20

UNIVERSIDADE DE SÃO PAULO
INSTITUTO DE FÍSICA

**DETERMINAÇÃO DA CONCENTRAÇÃO DE ^{222}Rn E
FILHOS EM AMBIENTES FECHADOS COM
DETECTORES PLÁSTICOS**

ALMY ANACLETO RODRIGUES DA SILVA

SBI-IFUSP

305M810T3352

DISSERTAÇÃO DE MESTRADO
Apresentada ao Instituto de Física
da Universidade de São Paulo como
parte dos requisitos para obtenção
do Título de Mestre em Ciências.

Orientadora:

PROF^a. Dra. ELISABETH MATEUS YOSHIMURA

Banca Examinadora:

PROF ^a . Dra. Elisabeth M. Yoshimura	(IFUSP)
PROF ^o . Dr. Júlio César Hadler Neto	(IFGW/UNICAMP)
PROF ^o . Dr. Américo A. R. S. Kerr	(IFUSP)

SÃO PAULO

2000

Prof. Presidente da Comissão de Pós-Graduação

539.77
S586d
M
ex. 1

FICHA CATALOGRÁFICA

**Preparada pelo Serviço de Biblioteca e Informação
do Instituto de Física da Universidade de São Paulo**

Silva, Almy Anacleto Rodrigues da
Determinação da concentração de ^{222}Rn e filhos em
ambientes fechados com detectores plásticos.

São Paulo, 2000.

Dissertação (Mestrado) - Universidade de São Paulo.
Instituto de Física – Departamento de Física Nuclear.
Orientador: Prof^a. Dr^a. Elisabeth Mateus Yoshimura

Área de Concentração: Desintegração Nuclear e
Radioatividade

Unitermos: 1. Radônio; 2. Detector plástico; 3. LR115;
4. CR39; 5. Plate-Out; 6. Radiação Ambiental

USP/IF/SBI-020/2000

***Dedico esse trabalho e tudo quanto de bom minhas mãos ou minhas idéias
possam produzir***

À minha mãe

*A maior riqueza que levo comigo é a lembrança de sentir seu colo,
sua voz, seu carinho e seu amor.*

Minha maior riqueza é a lembrança que tenho de você...

Ao meu pai

*O Senhor me ensinou, me mostrou o certo e o errado, os exemplos que
eu deveria seguir, jamais faltou com amor, com carinho e atenção.*

Meu pai, o exemplo que quero seguir é ser o pai que o Senhor foi...

À minha esposa, Eliane

*Você sempre me incentivou, me apoiou e acreditou em mim. Além
disso, mostrou que eu poderia sonhar mais alto do que eu sonhava.*

A você, amiga, namorada e linda esposa, meu maior agradecimento.

*“O verdadeiro amor nunca se desgasta,
quanto mais se dá, mais se tem.”*

Antoine de Saint-Exupéry

*O tempo jamais poderá extinguir de
nosso coração a imagem daqueles que
souberam cativar nossa amizade.*

*Bagulho e Cacareco,
quando ainda assinavam Almy e Kleber*

A G R A D E C I M E N T O S

Agradeço à minha família pelo amor e carinho que me deram, por ajudar em minha educação e formação, e por sempre incentivar meus estudos.

À Maria Isabel que me acolheu como filho quando mais precisei...

À Valdeci, à Lelé, à Beth, ao Marcos e ao meu amigo Valdenor por muito me ajudar a alcançar meus objetivos, mas principalmente pelo carinho e amor doado.

Ao Marcelo, não, ao Marcelo ainda não, espera só um pouquinho, “deixa eu resolver uma coisa antes”.

Ao pessoal do Laboratório de Dosimetria, pelo café de manhã e chá de tarde, pelas reformas e mudanças, pelas limpezas, pelas discussões no corredor... Coisas aparentemente pequenas mas que favorecem a integração e o companheirismo.

À Carla e ao Mihara pelo companheirismo desde os tempos da graduação.

Ao Beto pela disposição em nos ajudar, durante boa parte da Iniciação Científica, quando mal sabíamos diferenciar editor de texto de planilha eletrônica.

À Nancy e ao Edu pelo estímulo e pela torcida para que esse momento chegasse logo.

Ao Prof. Robilotta, que lecionando sabe mostrar como ninguém o que significa estudar.

À Marília por atender nosso pedido e nos doar boa parte do que conhecemos de Física das Radiações.

À Emico por demonstrar sempre acreditar em minha pessoa, por sua conversa agradável, e sua disposição de sempre nos ensinar algo mais.

Meia hora depois... Ao Marcelo pelas sugestões e interesse demonstrado neste trabalho, pela amizade cultivada desde a Iniciação Científica, pela parceria nas alegrias e pelo apoio nas dificuldades.

À Beth pela oportunidade que me deu em fazer parte do grupo de dosimetria, por todo ensino e orientação sempre dedicada, além da confiança que demonstrou por mim. A você o meu maior reconhecimento.

Agradeço também a contribuição dessas pessoas que tornaram possível a realização deste trabalho:

Prof. Francisco Hiodo (IAGUSP), por permitir o uso do laboratório, pelas sugestões e pelo interesse demonstrado por esse trabalho;

Prof. João D. T. Arruda Neto por permitir o uso do microscópio;

Prof. Júlio e Pedro (UNICAMP) pelas sugestões e orientações que se transformaram em uma contribuição significativa para a realização deste trabalho;

Sandro pelo empenho e disposição em me ensinar e realizar as medidas na UNICAMP, também por toda colaboração que tornou possível a concretização deste trabalho;

As pessoas que permitiram a exposição dos detectores em suas residências;

Os funcionários do IFUSP, especialmente a Gina, pela atenção e pela disposição em nos ajudar;

CNPq pelo auxílio financeiro.

ABSTRACT

The presence of high indoor concentration of ^{222}Rn and daughters has been object of various studies and discussion about the actual health problem that these radioelements may cause.

The aim of this work is to collaborate with the dosimetry of ^{222}Rn and daughters, developing a low cost and easy to use methodology to determine the indoor alpha emission concentration. This methodology is based on passive detection with CR39 and LR115 solid state nuclear track detectors (SSNTD).

This work considered the plate-out effect, a characteristic of radon daughters that renders their deposition on walls, soil, ceiling, furniture and materials in general, causing a reduction in activity of radon daughters in the air surrounding these surfaces. LR115 plastics, whose response to self plate-out effects is negligible, proved to be the best form to carry out this detection, when low cost and easyness of use are considered. Its calibration was done in ambients where CR39 measurements of concentration were available, with a method that also considers the plate-out effect.

A study of the characteristics of LR115 detector was performed and the etching conditions that turn maximum its response were found. Various criteria for counting the tracks were tested, to choose the one that allows the easiest track identification and a good efficiency, with less subjectivity. The results showed consistency with others found in literature.

A relative calibration between the two detectors was done by simultaneous indoor exposures in controlled environments and in dwellings, where the environmental factors are more important. The results obtained in these two conditions showed a significant difference between the calibration factors (ratio between the track density and the alpha emission concentration) obtained: $(0,69 \pm 0,04)$ cm and $(0,43 \pm 0,03)$ cm respectively. It was also noticed an increase of LR115 response with the track density for ^{241}Am exposures. These outcomes point out to a supralinear behavior of the detector response in high track density situations or to other factors inherent to all detection and calibration system.

The calibration factor obtained for dwelling exposure is more appropriated to use in monitoring of ^{222}Rn and daughters when the plate-out effects are considered. An application in some residences was made and the alpha emission concentration varied between (21 ± 7) and (228 ± 21) Bq/m³.

ÍNDICE

1 - Introdução	1
1.1 - Motivação	1
1.2 - Radiação ambiental	2
1.2.1 - Contribuição do radônio e filhos	3
1.2.2 - Associação entre radônio e doenças de pulmão	4
1.3 - O Radônio	7
1.3.1 - Contaminação ambiental por ^{222}Rn e filhos	9
2 - Técnicas de detecção de ^{222}Rn e filhos	13
2.1 - Detecção ativa de ^{222}Rn	13
2.2 - Detecção ativa dos filhos do ^{222}Rn	14
2.3 - Detecção passiva do ^{222}Rn	14
2.4 - Detecção passiva dos filhos do ^{222}Rn	17
2.5 - Opção pela detecção passiva	17
2.5.1 - Detectores TL	18
2.5.2 - Detectores plásticos	19
2.6 - Detectores plásticos utilizados neste trabalho	21
2.6.1 - LR115	21
2.6.2 - CR39	22
2.7 - Exposição dos detectores	23
2.8 - Formação de traços em detectores plásticos	24
2.8.1 - Produção do dano no detector	24
2.8.2 - Formação do traço - ataque químico	26
2.9 - Tipo e características dos traços nos detectores LR115	29
2.10 - Incertezas na contagem de traços	36
2.11 - Metodologia experimental	37
2.11.1 - Sistemas de irradiação	37
2.11.1.1 - Fonte de ^{241}Am	37
2.11.1.2 - Fonte de ^{222}Rn e filhos	38
2.11.1.3 - Exposição em ambientes	39
2.11.2 - Métodos experimentais aplicados ao LR115	39
2.11.2.1 - Banho para revelação	40
2.11.2.2 - Sistema de visualização dos traços	40
3 - Características do detector LR115	42
3.1 - Curva de ataque	42
3.1.1 - Curva de ataque em ^{241}Am	43
3.1.2 - Curva de ataque em atmosfera contendo ^{222}Rn e filhos	44
3.1.2.1 - Análise das curvas de ataque e critérios de contagem	45
3.2 - Procedimento para ataque químico	49
3.3 - Estabilidade ao ataque químico	52
3.4 - Linearidade da resposta	53
3.5 - Variação da resposta com a energia	55
3.6 - Estabilidade dos detectores à exposição ambiental	59
4 - "Plate-out"	60
4.1 - Influência do "plate-out" na densidade de traços em SSNTDs	61
4.2 - Influência do "plate-out" na medida da atividade	62
4.3 - Detecção do ^{222}Rn e filhos com CR39 considerando o "plate-out"	63
4.3.1 - Distinção de energias alfa com o uso do CR39	64
4.3.2 - Medida da concentração dos emissores alfa presentes no ar	66

4.3.3 - Procedimento de leitura com o CR39	70
4.4 - Detecção de ^{222}Rn e filhos com o uso de LR115	71
5 - Calibração do LR115	75
5.1 - Calibração relativa do LR115 através de medidas com CR39	75
5.1.1 - Calibração na campânula e sala de fontes	77
5.1.2 - Calibração em ambientes de convívio humano	80
5.2 - Comparação dos resultados campânula-ambientes	82
5.3 - Calibração em fonte de ^{241}Am	84
5.4 - Aplicação	85
6 - Conclusões e considerações finais	87
Sugestões de trabalhos futuros	90
Referências bibliográficas	91

CAPÍTULO 1

INTRODUÇÃO

1.1 - Motivação

Este trabalho foi desenvolvido no Laboratório de Dosimetria do Instituto de Física da Universidade de São Paulo e faz parte de um amplo projeto de levantamento das doses, devido às radiações ionizantes, às quais a população da cidade de São Paulo está exposta.

O grupo de pesquisa do Laboratório de Dosimetria tem desenvolvido trabalhos na área de proteção radiológica objetivando em geral o aprimoramento das técnicas de medidas, estudo de novos materiais dosimétricos e dos efeitos biológicos das radiações. No laboratório já está estabelecido, também, um serviço baseado em um sistema de determinação de doses por termoluminescência, para monitoração pessoal de trabalhadores sujeitos às radiações gama e X.

O projeto para determinação das doses de radiação recebidas pela população envolve medidas da radiação gama, principalmente do solo e materiais de construção, de nêutrons de origem cósmica sobre a cidade de São Paulo e, também, o levantamento das doses recebidas em exposições médicas de procedimentos radiológicos nos hospitais da capital.

Neste contexto surgiu a motivação para este trabalho que visa o desenvolvimento de uma metodologia para detecção de ^{222}Rn e filhos, o que vai contribuir para o levantamento das doses devido às radiações gama, beta e alfa em ambientes fechados.

1.2 - Radiação ambiental

A população em geral está exposta a radiação ionizante proveniente de diversas fontes: radionuclídeos naturais presentes no solo, na água, no ar e nos materiais de construção; radiação cósmica que atinge a Terra; radionuclídeos artificiais liberados em explosões de artefatos ou acidentes nucleares; descarte e armazenamento de rejeitos radioativos; tubos de raios X e radioisótopos artificiais usados com propósitos médicos. Essas exposições correspondem à quase totalidade da radiação de fundo que recebemos constantemente. As doses¹ resultantes são baixas e podem variar bastante de um local para outro, devido a variações na composição do solo, na posição geográfica (altitude, latitude, longitude), no tipo de moradia, nas condições sócio econômicas e, até mesmo, nos hábitos culturais.

Ainda não há consenso geral sobre os danos causados pela radiação em baixas intensidades. Há duas correntes conflitantes: a primeira, que é adotada pela maioria dos órgãos reguladores do uso da radiação, é de que qualquer dose de radiação, por menor que seja, pode causar danos; a segunda sugere que baixas doses, além de não causarem danos, podem produzir efeitos benéficos (Ste-88). De qualquer forma, a discussão será mais quantitativa e objetiva se forem conhecidas as doses e se estudos epidemiológicos forem direcionados para o conhecimento dos efeitos da radiação no corpo humano. Os efeitos danosos da radiação para doses altas e intermediárias ficaram melhor conhecidos com as estimativas de doses obtidas em altas exposições, como por exemplo, estudos epidemiológicos em mineiros e sobreviventes das explosões de bombas atômicas (Ja-88).

A preocupação com qualquer tipo de exposição, mesmo de baixa intensidade, é grande. Há limites de dose bastante baixos, fixados para as pessoas que podem ser expostas devido à proximidade ou à permanência em instalações radiativas (Com-88, In-91). Tais limites para a população chegam, em alguns locais,

¹ Grandeza associada ao dano produzido pela radiação, chamada de dose absorvida (D) e definida pelo quociente entre a energia média dE depositada pela radiação ionizante e a massa dm de um pequeno volume do material.

a ser menores que a dose recebida em função da radiação natural. Os limites de dose são recomendados ou estipulados de forma a reduzir riscos de incidência de doenças devido ao uso da radiação.

Uma análise quantitativa das reais condições dos níveis de dose a que a população está exposta fornece diretrizes para estimativas dos riscos com os quais as pessoas estão convivendo, além de servir de base para estudos epidemiológicos (por exemplo estudo da incidência de câncer de pele, de pulmão ou de leucemia) e análises sobre os efeitos de acidentes radioativos ou nucleares que possam vir a ocorrer.

1.2.1 - Contribuição do radônio e filhos

Seja qual for a hipótese sobre os efeitos da radiação a níveis baixos, prevê-se que a presença de altos níveis de radiação em ambientes fechados deve aumentar os riscos de aparecimento de algum tipo de câncer (Ja-88). Desta forma, tem ganho importância a preocupação com altas concentrações de radônio (gás inerte e radioativo proveniente do decaimento do rádio) em ambientes fechados. Esse elemento é a principal fonte de exposição à radiação gama e alfa (Me-92) a que a população está exposta. A contaminação ambiental devido à presença de radônio e seus filhos no ar, em ambientes de convívio humano, é a mais insalubre do ponto de vista da população (Pa-91).

O radônio, por ser um gás inerte, responde a gradientes de temperatura e pressão e torna-se móvel no solo ou nos materiais de construção. Sendo um elemento com meia-vida relativamente alta (3,8 dias para o ^{222}Rn), ele pode se difundir para os ambientes. Quando escapa para um ambiente com baixa ventilação, sua concentração pode tornar-se muita alta. Pessoas que respiram nessa atmosfera inalam ar contendo átomos de radônio e também átomos metálicos de meia-vida relativamente curta, originados do decaimento radioativo do radônio (Kh-93). Os filhos do radônio, que são carregados eletricamente no instante de sua formação

(Ma-88), normalmente não se mantêm livres por muito tempo: eles se juntam a aerossóis, vapores d'água e outras substâncias presentes no ar.

O radônio, ao ser inalado, é devolvido quase que totalmente ao ambiente durante a expiração, pois não participa de reações químicas com facilidade. Devido à sua meia-vida relativamente alta é pequena a probabilidade de que ele decaia enquanto estiver no pulmão (Pa-91, Kh-93), já seus filhos, que são inalados da mesma forma, quando entram no aparelho respiratório fixam-se nos tecidos do pulmão (El-98) e, ao decair, depositam grande quantidade de energia em tais tecidos. Desta forma a exposição do aparelho respiratório à radiação, principalmente à radiação alfa², pode contribuir para o surgimento de células cancerígenas.

1.2.2 - Associação entre radônio e doenças de pulmão

A preocupação com efeitos da inalação de radônio e filhos iniciou-se a partir das investigações de males sofridos por trabalhadores de minas. A incidência de doenças pulmonares em mineiros é reportada desde o século XVI. Um exemplo são as regiões das montanhas da Boêmia e Saxônia que foram mineradas por centenas de anos, tornando-se conhecidas pela incidência de uma doença chamada “Bergkrankheit” ou doença da montanha. Hoje a doença é reconhecida como sendo o câncer de pulmão (Kh-93).

Com o aumento das minerações de urânio nos anos 40, um correspondente aumento nos casos de câncer de pulmão em mineiros levantou a hipótese da associação entre câncer de pulmão e a inalação de radônio (Kh-93). Nos anos 50, quando foi estabelecida a correlação entre câncer de pulmão e a inalação de radônio, foi demonstrado que os verdadeiros responsáveis pela deposição de energia no aparelho respiratório são, na verdade, os filhos do radônio (in Pa-91).

² Por ser uma radiação com alto grau de transferência linear de energia, o fator de ponderação para as partículas alfa é 20, enquanto que para raios gama e elétrons o mesmo é 1.

O primeiro trabalho sobre medidas de radônio em residências foi feito em 1956, na Suécia. Nos anos 70, quando houve a conscientização de que residências também poderiam apresentar altas concentrações de radônio e filhos, iniciou-se a preocupação, do ponto de vista da saúde pública, com a insalubridade da inalação de radônio e filhos.

O fato de terem sido encontradas residências com concentrações de radônio da mesma ordem de grandeza que as encontradas em minas, e o histórico de males sofridos por mineiros, motivou o levantamento de estimativas de riscos de desenvolvimento de câncer devido à inalação de radônio e filhos nas moradias. A maioria das estimativas deriva de extrapolações lineares de estudos epidemiológicos feitos com trabalhadores de minas de carvão ou de urânio (Ja-88). Nessas estimativas são considerados fatores de correção adequados, já que as condições de exposição nas minas são muito mais severas que em residências. Nas minas há a presença de outros fatores, tais como a poeira, que pode conter radionuclídeos naturais e outras substâncias tóxicas, condições ambientais adversas de temperatura e umidade, e outras condições insalubres. Alguns exemplos de estimativas de risco estão expostas a seguir.

- i. Na Inglaterra, a estimativa do risco de desenvolvimento de câncer é da ordem de 0,3% (Me-92) para pessoas não fumantes e que estão sujeitas a concentrações médias de ^{222}Rn (20 Bq/m^3). Estimativas para pessoas fumantes, quando sujeitas à mesma concentração, sobem para níveis de 6% (Do-92). Baseando-se nessas estimativas, dos aproximadamente 40000 casos de câncer na Inglaterra, prevê-se que 2000 casos sejam devido à inalação de ^{222}Rn e filhos (Me-92).
- ii. Nos Estados Unidos, a EPA (Environmental Protection Agency) estima em 14000 os casos anuais de mortes por câncer de pulmão causados pela exposição ao ^{222}Rn em residências (Bos-98). Essa estimativa é baseada na média anual de concentração de ^{222}Rn (55 Bq/m^3). Esse órgão assume que a relação exposição-efeito é linear a baixas exposições, o que é consistente com

estudos epidemiológicos feitos com mineiros mas é contestado por outras análises (Co-95).

- iii. Os resultados de levantamentos feitos em vários países apontam para uma estimativa de que 3 a 15 % do total das taxas de câncer de pulmão observados nas populações possam ser associados à contaminação ambiental de ^{222}Rn e filhos (Ja-88).

Embora haja grandes incertezas envolvidas nessas estimativas, a exposição ao radônio é reconhecida como um fator de risco para o desenvolvimento de câncer de pulmão. Tanto que a Agência Internacional para Pesquisas sobre o Câncer da Organização Mundial de Saúde classificou esses radionuclídeos como carcinogênicos, isto é, baseadas em estudos em humanos, há evidências suficientes sobre a contribuição desses elementos à carcinogênese (Boc-98). Desta maneira o radônio é considerado a segunda mais importante causa de câncer de pulmão, após o hábito de fumar.

Como consequência da ausência de uma resposta quantitativa para a real probabilidade de incidência de câncer devido a exposição a determinada concentração de radônio e filhos, agências de vários países têm estabelecido diferentes limites de ação (limites nos quais os proprietários devem tomar providências para reduzir a quantidade de radônio e filhos nas residências). Por exemplo, enquanto nos Estados Unidos esse limite é de 148 Bq/m^3 na Grã-Bretanha e na Suécia ações devem ser tomadas para residências com níveis acima de 370 Bq/m^3 . Em outros países há recomendações de diferentes limites para os níveis de referência e de ação (Kh-93).

Essa situação no Brasil não é vista na mesma ótica dos países da Europa e América do Norte, principalmente devido ao clima tropical³. Entretanto, não há ainda medidas nem levantamentos suficientes da concentração média existente nas residências para que se possa fazer quaisquer estimativas. Também não se pode

³ Conforme veremos adiante, uma substancial maneira de retirar o radônio e filhos de ambientes fechados é aumentar a taxa de ventilação.

descartar a possibilidade de que, dependendo da região, da composição do solo⁴ e dos hábitos culturais, possa haver concentrações altas de radionuclídeos naturais em residências no país, podendo em alguns casos ser da mesma ordem de grandeza dos níveis de referências de países da Europa e da América do Norte.

1.3 - O Radônio

O radônio foi primeiramente identificado como substância única em 1900, quatro anos após a descoberta da radioatividade por Henry Becquerel em Paris. Ernest Rutherford, no início de 1900, enquanto trabalhava com óxido de tório, verificou que, em adição à ionização das radiações alfa e beta, havia um gás ionizante difundindo-se de camadas espessas dos componentes de tório. O gás foi chamado de *emanação de tório* e, mais tarde, de *torônio*. Alguns meses depois, ainda em 1900, Fritz Dorn observou um gás radioativo similar enquanto estudava sais de rádio, e chamou-o de *emanação de rádio*. Mais tarde, esse gás passou a ser chamado de *radônio*. A descoberta da *emanação do actínio*, em 1903, é creditada a A. Debierne e F. Giesel. Os filhos do radônio foram primeiramente identificados na forma de íons na atmosfera por F. Geitel (Wi-90).

O termo *emanação (Em)* para esses gases radioativos foi primeiramente uma sugestão de Rutherford. Em 1923, o Comitê Internacional de Elementos Químicos aprovou os nomes: “Radon” (^{222}Rn), “Thoron” (^{220}Rn) e “Actinon” (^{219}Rn) para os gases radioativos provenientes das séries do urânio (U^{238}), tório (Th^{232}) e actínio (U^{235}), respectivamente. Tais elementos compõem os isótopos radiativos naturais, alfa emissores de número atômico 86, como resume a tabela 1.1.

Série	Isótopo	Meia vida
^{238}U	^{222}Rn	3,82d
^{232}Th	^{220}Rn	55,6s
^{235}U	^{219}Rn	4,0s

Tabela 1.1: Isótopos de número atômico 86 das séries naturais.

⁴ No solo brasileiro, a grande concentração de tório pode também resultar uma concentração maior de ^{220}Rn (torônio) em relação a outros países.

Os anos do final do século XIX e início do século XX são reconhecidos como uma época de grandes avanços nas teorias da radioatividade, quando oito pesquisadores ganharam prêmios Nobel por suas pesquisas sobre radiação. Incluem-se nesses pesquisadores o casal Pierre e Marie Curie além de Henry Becquerel que receberam o prêmio Nobel, em 1903, pelas descobertas do polônio (1898) e da radioatividade (1896), respectivamente. O trabalho de Marie Curie na descoberta do rádio (1900), o qual resultou em outro prêmio Nobel em 1911, forneceu subsídios fundamentais para que Dorn descobrisse o radônio.

Poucos anos após a descoberta do rádio, verificou-se que rochas e outros materiais retirados do solo apresentavam emissões de partículas alfa e beta, além de raios gamas. Tais emissões eram provenientes de radioelementos naturais como, entre outros, o urânio e o tório presentes na crosta terrestre. Notou-se, a partir daí, que tais elementos poderiam ser agrupados em famílias, mostrando a existência das séries radioativas naturais (^{238}U , ^{232}Th e ^{235}U).

Figura 1.1: Série radioativa do ^{238}U .

As séries naturais apresentam algumas características em comum. Por exemplo, cada série inicia-se com um elemento natural de meia-vida bastante longa

e termina em isótopos estáveis do chumbo. Os números de massa dos primeiros elementos de cada série também podem ser representados por 4 vezes um inteiro mais um número inteiro menor que 4, fato que permite também denominar as séries naturais por grupos: $4n + 2$ (^{238}U), $4n + 3$ (^{235}U) e $4n$ (^{232}Th). Outra característica em comum é o fato de todas elas apresentarem isótopos naturais de radônio, todos provenientes de isótopos de rádio. A figura 1.1 mostra a série radioativa do ^{238}U que dá origem aos átomos de ^{222}Rn , que devido à sua meia-vida relativamente alta, comparada à dos outros isótopos de radônio, contribuem com maiores níveis de contaminação ambiental.

1.3.1 - Contaminação ambiental por ^{222}Rn e filhos

As séries radioativas naturais são as responsáveis pela formação dos isótopos de radônio. Entretanto, a contaminação ambiental, ou seja, a presença de radônio e filhos no ar, se origina fundamentalmente do fato de o radônio ser um gás inerte e, como tal, apresentar uma configuração eletrônica que limita ligações químicas. Sua natureza física também contribui para sua presença na atmosfera, pois, uma vez formado nas proximidades da superfície terrestre ou nos materiais de construção, o radônio fica livre para se difundir ou ser guiado por meio de gradientes de pressão (Kh-93, Wi-90).

Além do solo, os átomos de radônio presentes no ar também se originam nos materiais de construção (tijolos, concreto, cerâmica, etc) que compõem o ambiente, isso porque os materiais de construção são fabricados com componentes retirados do solo, o que torna possível a presença de radionuclídeos naturais nesses materiais (Le-98, Pap-84). Note-se que este fato é a causa da presença de concentrações moderadas de radônio e filhos mesmo em apartamentos, que não contam com a contribuição direta do solo (Le-98).

A quantidade relativa de isótopos de radônio na atmosfera depende basicamente da quantidade de urânio e tório no solo. A abundância relativa de

urânio por peso é dada por aproximadamente: ^{238}U - 99,28% e ^{235}U - 0,71% (Wi-90), desta forma, é esperado que a presença de ^{222}Rn predomine sobre a de ^{219}Rn na atmosfera. Por outro lado, enquanto o ^{238}U apresenta uma concentração média de 5 ppm na crosta terrestre o ^{232}Th apresenta-se em média com uma concentração de 11 ppm. Na maioria dos tipos de rochas, a quantidade de ^{232}Th excede a de ^{238}U por um fator entre 3 e 5, entretanto, em termos de atividade por quilograma de material colhido no solo, o ^{232}Th apresenta uma razão apenas 20% superior à de ^{238}U (Wi-90).

Embora as atividades de urânio e tório sejam equivalentes na crosta terrestre, normalmente o risco devido à exposição ao ^{220}Rn é considerado desprezível, por ser baixa sua concentração na atmosfera, principalmente por sua meia-vida curta (55,6 s). Entretanto, em certas situações, a exposição ao torônio pode causar dose semelhante àquela produzida pelo ^{222}Rn , principalmente em regiões, como é o caso do Brasil, onde o solo ou materiais de construção de origem natural apresentam grande quantidade de tório (Nuc-98, Str-84).

Isótopo	Meia-Vida	E_{α} (MeV)	E_{β} (max) (MeV)
^{222}Rn	3,823 d	5,49	-
^{218}Po	3,05 min	6,00	-
^{214}Pb	26,8 min	-	0,72
^{214}Bi	19,7 min	-	1,78
^{214}Po	164 μs	7,69	-
^{210}Pb	21 a	-	0,02
^{210}Bi	5,01 d	-	1,16
^{210}Po	138,4 d	5,31	-
^{206}Pb	estável	-	-

Tabela 1.2: Decaimento radioativo do ^{222}Rn , mostrando as características de seus filhos.

O decaimento do ^{222}Rn presente na atmosfera gera a contaminação ambiental por filhos de ^{222}Rn . A Tabela 1.2 mostra algumas características desses elementos. Conforme pode ser observado, nesta tabela, os primeiros elementos

(^{218}Po , ^{214}Pb , ^{214}Bi e ^{214}Po) têm meias-vidas curtas, o que contribui para que as atividades desses filhos, quando presentes em ambientes, sejam comparáveis à do próprio ^{222}Rn . Isso não ocorre com os demais filhos devido à presença na série do ^{210}Pb , de meia-vida longa. Assim, do ponto de vista de proteção radiológica, a série só é geralmente considerada até o ^{214}Po .

Conforme visto anteriormente, os filhos do ^{222}Rn seguem um comportamento diferente do ^{222}Rn : têm uma tendência de se ligarem a substâncias presentes no ar, ou, quando muito próximos à superfícies materiais, podem depositar-se sobre móveis e paredes. Quando eles se fixam a aerossóis presentes no ar, com massas e tamanhos variados, seu deslocamento é ditado pelo deslocamento de tais aerossóis. Essas diferenças no comportamento de ^{222}Rn e filhos são fatores que dificultam o equilíbrio de atividades, que se esperaria se não houvesse tais perturbações.

Outro fator de desequilíbrio é a taxa de ventilação (trocas de ar com o meio externo) do ambiente: quanto maior a taxa de ventilação menor é a atividade de filhos de radônio, pois a ventilação atua principalmente na retirada desses elementos (Pa-91). A ventilação se constitui também na forma mais simples de reduzir a contaminação ambiental do ^{222}Rn e filhos. Como o acúmulo de ^{222}Rn no interior de ambientes é tão mais crítico quanto menor for a taxa de ventilação, é grande a importância dada a essa contaminação em países frios, onde os ambientes permanecem fechados por muito tempo, principalmente no inverno.

Com essas colocações, os níveis de contaminação ambiental parecem ser balanceados entre as taxas de emissão e de ventilação. Entretanto, há indicações de que o principal fator que influencia tais níveis é a taxa de emissão de ^{222}Rn e não a taxa de ventilação, o que quer dizer que, mesmo em locais bem ventilados, pode haver altos níveis de contaminação (in Pa-91).

Além da taxa de ventilação, outros fatores ambientais (como poluição, distribuição de aerossóis, temperatura e umidade) podem influenciar na distribuição e mobilidade de radônio e filhos nos ambientes internos, prejudicando também a

medida de suas concentrações. Espera-se que as técnicas de detecção sejam pouco dependentes desses fatores, sob pena de que as medições só sejam confiáveis em situações ambientais equivalentes às obtidas durante a calibração do sistema.

As técnicas de medida das concentrações de ^{222}Rn e filhos serão melhor vistas no próximo capítulo, bem como os procedimentos experimentais utilizados neste trabalho, com o qual se espera contribuir para a monitoração de ^{222}Rn e filhos com uma metodologia simples e de baixo custo, que procura levar em consideração os efeitos que afetam o comportamento do radônio e filhos presentes no ar de ambientes fechados.

CAPÍTULO 2

TÉCNICAS DE DETECÇÃO DE ^{222}Rn E FILHOS

As técnicas de medida do ^{222}Rn utilizam basicamente as emissões alfa, beta e gama de sua cadeia radioativa. Essas técnicas podem ser divididas de acordo com os procedimentos de medida em dois grupos: detecção ativa e detecção passiva.

As medidas por detecção ativa avaliam a atividade do ^{222}Rn e filhos forçando a passagem de ^{222}Rn pelos detectores através de bombeamento. Para medidas por detecção passiva coloca-se detectores no ambiente a ser analisado e aguarda-se um certo tempo, em geral alguns meses, para que o ^{222}Rn e filhos sejam detectados através de sua difusão na atmosfera (To-98). Essas duas formas de detecção podem ser utilizadas tanto para medidas em conjunto do ^{222}Rn e filhos quanto para a medida só do ^{222}Rn ou só de seus filhos.

As características das técnicas de medidas variam fortemente se o objeto de medida for somente o ^{222}Rn ou seus filhos devido às diferenças nas propriedades físico-químicas de cada um (To-98). Enquanto o ^{222}Rn é um gás quimicamente inerte, seus filhos são íons metálicos que se juntam a aerossóis ou podem sofrer os efeitos do “plate-out”, um processo de deposição dos filhos do radônio sobre superfícies em geral (ver capítulo 4).

2.1 - Detecção ativa do ^{222}Rn

Na detecção ativa do ^{222}Rn é coletada uma certa quantidade de ar do ambiente a ser analisado. Para eliminar-se os filhos do ^{222}Rn , presentes na amostra, é feita uma filtragem ou então, espera-se de 3 a 4 horas para que eles decaiam.

Depois deste procedimento só restam na amostra de ar o ^{222}Rn e filhos que se formaram após a filtragem. Conhecendo-se a eficiência do sistema de detecção, o volume coletado e a fração de átomos do ^{222}Rn que decaem no intervalo de tempo da medida, pode-se obter a concentração de ^{222}Rn no ambiente analisado. Os principais detectores desse método são as células de Lucas, câmaras de ionização e electretos (Ge-96).

2.2 - Detecção ativa dos filhos do ^{222}Rn

A detecção ativa dos filhos de ^{222}Rn se baseia na utilização de filtros que os absorvem durante o processo de bombeamento da amostra de ar. Os filtros são levados até o sistema de detecção, geralmente um espectrômetro alfa, para análise. Dessa forma é possível obter a atividade alfa dos filhos do ^{222}Rn presentes na amostra.

Outra técnica, que está em desenvolvimento, baseia-se no uso de campos eletrostáticos negativos que atraem os filhos do ^{222}Rn até o sistema de detecção (Ii-88). Estimativas apontam que 88% dos átomos de ^{218}Po são criados com uma carga elétrica positiva (Ma-88). Os sistemas de detecção podem ser detectores plásticos de traço (ver seção 2.5.2) ou detectores termoluminescentes (TL).

2.3 - Detecção passiva do ^{222}Rn

A detecção passiva somente do ^{222}Rn se baseia nas suas características de adsorção, difusão e permeabilidade em diferentes materiais (To-90, To-98, Kh-93).

No processo de adsorção uma camada fina do gás adere à superfície dos sólidos: o carvão ativado é o componente mais utilizado para medidas dessa forma. Para a detecção coloca-se o carvão em contato com o ambiente e depois é feita a análise em um espectrômetro gama (Co-83, Co-86, Ge-84) onde são verificadas as emissões gama dos filhos dos ^{222}Rn (Tabela 2.1) (Ai-85, We-92). O carvão ativado

também pode ser utilizado em combinação com outros detectores passivos, como por exemplo os detectores TL e de traço.

O uso de coletores de carvão ativado para determinação de concentração de ^{222}Rn teve início na década 80 (Co-83, Ge-84) como opção para um método de rápida detecção, de baixo custo com facilidade de uso e possibilidade de reuso.

Elemento	Meia-vida (min)	Energia (MeV)	Intensid. relativa %
^{214}Pb	26,8	0,24	8
		0,29	19
		0,35	37
^{214}Bi	19,7	0,61	46

Tabela 2.1: Algumas emissões gama dos filhos do ^{222}Rn e respectivas energias e intensidades relativas, utilizadas na detecção de ^{222}Rn e filhos com o uso de carvão ativado.

Devido à meia-vida do ^{222}Rn (3,8 dias), o tempo de exposição ao ambiente deve ser de poucos dias (2 a 7 dias) e as medidas devem ser feitas em laboratório logo após a exposição (Co-86, To-98). Esse detector também é muito dependente das condições ambientais, como umidade e poluição (Co-86). Também deve ser considerada a necessidade de um sistema de espectroscopia gama de alta resolução que pode aumentar os custos deste procedimento. Tais condições afetam significativamente as pesquisas em larga escala.

Figura 2.1: Recipiente para medida de ^{222}Rn e filhos.

Baseado no fenômeno de difusão, um recipiente muito utilizado para medida somente do gás ^{222}Rn é composto basicamente de uma estrutura tubular

(Figura 2.1) com comprimento suficiente (tipicamente 30 cm ou mais) para que o torônio decaia, durante sua difusão, antes de atingir a outra extremidade do tubo onde é colocado um detector de traço (ou detector plástico). Nesse tipo de detector, partículas alfa formam, através de danos moleculares, estruturas aproximadamente cilíndricas, chamadas de traços latentes, que se tornam visíveis ao microscópio óptico quando o detector é submetido a um tratamento químico. A quantificação é feita relacionando a quantidade de traços produzidos com a concentração de ^{222}Rn e filhos presentes no local monitorado.

Figura 2.2: Recipiente contendo membrana permeável ao ^{222}Rn e filhos.

Um recipiente semelhante pode ser utilizado, para medidas só de ^{222}Rn , a partir da permeabilidade de alguns materiais a esse gás. Um detector de traço é colocado no fundo do recipiente e, a outra extremidade é recoberta por uma membrana fina com permeabilidade relativamente alta ao ^{222}Rn . Emprega-se, por exemplo, um filme de polietileno, com espessura da ordem de dezenas de micrometros que apresenta baixa permeabilidade a vapor d'água e que retêm os demais isótopos e filhos do ^{222}Rn (Figura 2.2), na verdade a presença da membrana provoca um atraso na entrada de isótopos de radônio dentro do recipiente, esse atraso faz com que somente o ^{222}Rn consiga penetrar no recipiente no seu tempo de existência. Conhecendo-se as características do recipiente (volume) e da membrana (espessura, área e coeficiente de difusão), bem como o fator de calibração do

detector plástico, é possível relacionar a densidade de traços no detector com a concentração de ^{222}Rn no ambiente analisado (Fl-80, Fl-88, Kh-93, To-98).

Em outra forma de detecção passiva (Pa-91) são utilizadas duas placas de acrílico colocadas paralelamente, a uma certa distância (aprox. 4 mm), com um detector plástico calibrado colocado entre elas. O procedimento de filtragem utiliza a propriedade que os filhos do ^{222}Rn têm de se depositar em estruturas (“plate-out”). As placas devem ter uma dimensão suficiente para que não haja filhos do ^{222}Rn , provenientes do ambiente, sobre o detector. Assim os traços verificados serão devido ao ^{222}Rn e aos filhos produzidos e que decaíram entre as placas. Admitindo-se o equilíbrio secular, pode-se relacionar a densidade de traços com a atividade de ^{222}Rn entre as placas.

2.4 - Detecção passiva dos filhos do ^{222}Rn

Essa forma de detecção é a mais utilizada e a de menor custo: para a detecção é colocado um detector plástico no ambiente estudado sem nenhuma barreira para o ^{222}Rn ou para seus filhos. Para a medida somente dos filhos do ^{222}Rn , é necessário um método para distinção dos traços devido ao ^{222}Rn e a seus filhos, utilizando uma análise sofisticada de cada traço, ou então, deve ser idealizado um método para estimar, a partir da atividade total obtida, a atividade somente do ^{222}Rn , com um dos processos vistos anteriormente. Um problema que deve ser levado em conta é que devido às características do ^{222}Rn e de seus filhos, principalmente no que se refere aos efeitos do “plate-out”, não é possível utilizar um mesmo fator de calibração para detecção do ^{222}Rn e de seus filhos (Capítulo 5, Pa-91).

2.5 - Opção pela detecção passiva

Para a escolha da técnica de monitoração do ^{222}Rn deve-se levar em conta vários fatores relacionados à própria técnica de medida e às características do

^{222}Rn , de seus filhos e do ambiente monitorado. Também a escolha do método está relacionada com os objetivos do estudo a ser realizado.

Os métodos ativos são, em geral, utilizados para medidas em tempo curto e para investigações detalhadas do local monitorado. Esses métodos comportam-se melhor para medidas da concentração dos filhos do ^{222}Rn e são mais úteis na investigação extensiva em número limitado de ambientes (Kh-93, To-98). Os resultados podem ser obtidos durante a medida, porém, podem não ser reprodutíveis pois a concentração de ^{222}Rn e filhos é fortemente dependente das condições ambientais do local analisado (Pa-91). Os custos dos equipamentos e os gastos necessários para realização do estudo também podem ser elevados em relação a outros métodos.

Os métodos passivos são empregados em medidas de longo tempo de integração, portanto, os resultados obtidos representam médias temporais. São mais utilizados para estudos em larga escala devido ao baixo preço e facilidade de uso (Kh-93, To-98).

Neste trabalho preferiu-se a utilização de um método passivo, com o uso de detectores plásticos LR115 e CR39, levando-se em consideração os objetivos do estudo, o baixo custo e a facilidade de uso. A principal meta a ser atingida foi o desenvolvimento de um método confiável que permita, futuramente, fazer um levantamento extenso das condições de contaminação ambiental devido ao ^{222}Rn e filhos em ambientes fechados na cidade de São Paulo.

2.5.1 - Detectores TL

Em conjunto com o carvão ativado, ou mesmo complementando o uso de detectores plásticos, procurou-se também uma alternativa com o uso de detectores termoluminescentes (TL) de LiF e CaSO_4 . Tais detectores apresentam uma resposta em forma de luz, quando estimulados termicamente, após exposição à radiação alfa, beta ou gama.

Os detectores TL apresentam grande sensibilidade, facilitando a determinação de baixas doses. Outra vantagem é que eles têm pouca dependência com as condições ambientais tais como umidade e temperatura.

O uso em conjunto de detectores TL e carvão ativado permitiria um aumento no tempo de exposição utilizado para a detecção com o carvão ativado, pois os detectores TL permaneceriam todo o tempo no coletor avaliando a intensidade de emissões gama e beta dos filhos, de meia-vida curta, do ^{222}Rn .

Uma desvantagem desse método é que, devido à grande sensibilidade dos detectores TL, a radiação gama natural seria responsável por grande parte da dose recebida pelos detectores, assim é também necessário um método para detecção independente dessa componente.

Os resultados obtidos com detectores TL expostos a uma atmosfera de ^{222}Rn e filhos mostraram que grande parte da resposta é devido à irradiação com as partículas beta emitidas pelos filhos do ^{222}Rn . A calibração desses detectores para irradiação em campos mistos (α , β , γ) impõe um estudo mais aprofundado, que fugiria dos objetivos deste trabalho, no momento.

2.5.2 - Detectores plásticos

Os detectores plásticos, muitas vezes chamados de SSNTD (Solid State Nuclear Track Detector), se constituem na técnica passiva mais utilizada nas pesquisas em detecção de atividade de ^{222}Rn e de seus filhos. O estudo dos SSNTDs iniciou-se no final da década de 50, com os trabalhos de E.C.H Silk e R.S. Barnes (Fl-75) que motivaram vários estudos, culminando na descoberta de que as trajetórias de partículas pesadas carregadas em sólidos poderiam ser reveladas com soluções alcalinas formando traços visíveis ao microscópio óptico.

O uso de soluções para revelar traços deveu-se aos constantes insucessos na visualização de traços em mica com microscópios eletrônicos. O feixe eletrônico do microscópio geralmente provocava o “fading” dos danos (desvanecimento de

imagem) que, nesse caso, seria uma restauração da estrutura molecular antes do ataque químico, implicando na perda da informação nele contida.

Os trabalhos pioneiros de Fleischer, Price e Walker (Fl-75), desenvolvidos nos anos 60, mostraram que a mica poderia ser atacada quimicamente para produzir um alargamento do traço, permitindo assim sua visualização ao microscópio óptico.

Esses trabalhos impulsionaram essa área de pesquisa a partir da percepção que, além da mica e outros minerais, outros sólidos e plásticos (nitrato de celulose e policarbonatos) poderiam apresentar traços reveláveis com um ataque químico (Fl-75).

O princípio para detecção é baseado na formação do traço latente devido aos danos na estrutura molecular provocados pela passagem de partículas alfa, prótons ou fragmentos de fissão que incidem sobre o detector. A partir de um tratamento químico adequado, esse traço torna-se visível ao microscópio óptico, permitindo a contagem de traços presentes. A monitoração do ^{222}Rn é efetuada relacionando o número de traços existentes no detector com a concentração de emissores alfa presentes no ambiente, através de calibração em ambientes de concentração conhecida (Fl-75, Kh-93).

Esses detectores apresentam, em geral, grande eficiência, confiabilidade, e baixo “background” devido à radiação natural. Também têm pequena dependência com as condições de umidade e temperatura do ambiente monitorado, não são sensíveis às radiações gama, beta ou ultravioleta, e também, em geral, não apresentam “fading” (Kh-93, To-90).

Há grande facilidade de utilização e exposição desses detectores. Junto a essas características, o fato de serem de baixo custo, em comparação com outros métodos, os tornam bastante convenientes para pesquisas em larga escala (To-90).

A maior desvantagem dos SSNTDs é a baixa quantidade de dados quando a contagem é feita manualmente com microscópio óptico. Tal desvantagem pode ser minimizada com o uso de métodos semi-automáticos de contagem.

2.6 - Detectores plásticos utilizados neste trabalho

2.6.1 - LR115

O LR115 (Kodak-Pathé) é um nitrato de celulose ($\text{C}_5\text{H}_8\text{O}_9\text{N}_2$ com composição percentual estimada de 24,76% de C; 3,44% de H; 61,80% de O e 10% de N) disponível comercialmente (Dosirad-France) em dois tipos: O LR115-Tipo I produzido em lâminas de 6 μm de espessura e o LR115-Tipo II produzido em lâminas de 12 μm e densidade de $1,67 \text{ g.cm}^{-3}$.

Tais lâminas, que correspondem à parte efetivamente sensível do detector, são montadas sobre uma base de poliéster de 100 μm . Essa formação impõe ao detector um lado preferencial para exposição. Fisicamente o LR115 apresenta-se como um plástico bastante flexível e de cor avermelhada.

O LR115-Tipo II (usado neste trabalho) só apresenta sensibilidade para partículas alfa com energias entre aproximadamente 1 e 4 MeV (Da-86, Jo-81, Pl-92). Os valores obtidos para o ângulo crítico⁵ situam-se entre 40 e 60 graus (Jo-81, Nik-92, Pl-90) e dependem da energia da partícula e do tratamento químico utilizado. Essas restrições diminuem bastante a eficiência do detector quando comparada com a do CR39, embora, como será visto adiante, o limite superior da faixa de sensibilidade em energia do detector o torne muito conveniente para detecção dos filhos do ^{222}Rn quando são considerados os efeitos do “plate-out”.

A cor avermelhada do detector diminui o contraste entre os traços e a superfície do detector, porém este problema é minimizado com o auxílio de filtros verdes durante a visualização.

Uma desvantagem desses detectores diz respeito à identificação dos traços. A superfície do detector, após atacada quimicamente, mostra um aspecto com várias figuras bastante circulares e muito parecidas com traços que não

⁵ Ângulo crítico é o valor máximo do ângulo, entre a direção da partícula incidente e a normal ao detector, a partir do qual o traço formado pela partícula não pode ser revelado ao observador (seção: 2.8.2).

perfuraram o detector (traços produzidos por partículas alfa de baixa energia). Tais figuras são chamadas de figuras de ataque (nesta definição também são incluídas figuras relacionadas a defeitos, sujeira ou danos produzidos na manipulação ou no ataque químico do detector) e não devem ser levadas em conta na contagem. Esse problema é minimizado com a definição de um critério de contagem onde são considerados somente os traços que seguem um padrão previamente determinado.

2.6.2 - CR39

O polímero comercialmente conhecido como Columbia Resin 39 (CR39) é o detector plástico de maior eficiência e que apresenta o contraste ideal para visualização dos traços. É também o plástico que apresenta melhor resistência contra danos causados pelas condições ambientais e é totalmente amorfo o que ajuda na regularidade dos traços (Pa-91).

O CR39 foi desenvolvido e produzido inicialmente para aplicações como material para lentes. Entretanto, devido à sua boa uniformidade de resposta, alta sensibilidade e ótimas qualidades ópticas (Ca-78) tornou-se o detector de traço mais utilizado hoje em dia.

O CR39 é um plástico opticamente transparente preparado a partir da polimerização do monômero líquido conhecido como di alil carbonato de dietileno glicol ($\text{C}_{12}\text{H}_{18}\text{O}_7$), resultando na formação de uma rede tridimensional consistindo de cadeias de polialil ligadas a carbonato de dietileno glicol. Essas cadeias são os elementos básicos do polímero, que determinam a estrutura do plástico e seu comportamento frente ao ataque químico no processo de revelação dos traços. O ataque quebra as ligações do carbonato e libera cadeias na forma de polialil álcool que se dissolve e se difunde para os traços atacados (St-87).

Quimicamente o CR39, com composição estimada de 48,6% de H, 32,4% de C e 18,9% de O, apresenta-se como uma macromolécula insolúvel e

resistente a recombinações mesmo a altas temperaturas caracterizando-se como um polímero “thermoset”. Essa propriedade evita o “fading”, permitindo a integração durante tempos longos (meses) (Fr-93).

O CR39 é sensível às partículas alfa com energia da ordem de keV até dezenas de MeV (Ab-81), permite medidas de comprimento de traços e ângulo de incidência. Há estudos que permitem inclusive viabilizar a medida de energia das partículas (Ha-95, Pa-91).

Embora o CR39 apresente grande eficiência, sua resposta e sua reprodutibilidade podem variar de ambiente para ambiente o que aparentemente desqualifica o uso desse detector. Entretanto trata-se de uma influência externa devido às condições ambientais. Por exemplo, na monitoração dos filhos do ^{222}Rn o efeito do “plate-out” atua consideravelmente na distribuição de emissores alfa presentes no ambiente, exigindo uma análise detalhada de cada traço presente (Pa-91).

2.7 - Exposição dos detectores

A forma mais utilizada para exposição dos detectores é bastante simples. Uma lâmina do detector plástico é colocada no ambiente, voltada para a atmosfera que se deseja medir. A parte sensível do detector fica sujeita a partículas alfa provenientes de torônio, filhos do torônio, radônio e filhos do radônio. O detector também sofre a deposição dos filhos do radônio e do torônio em sua superfície. Essa forma de exposição é comumente chamada de “bare detector dosimeter” (Kh-93, Ni-99, To-90).

Com o uso do CR39 é necessário distinguir entre os traços produzidos pelas partículas alfa emitidas pelos elementos presentes no ar daquelas emitidas pelos elementos presentes no detector devido à influência do “plate-out” (ver capítulo 4). Com o detector LR115 não é necessária essa distinção pois como ele apresenta um limite superior para detecção de partículas alfa de aproximadamente

4 MeV, os traços latentes devido às partículas emitidas pelos filhos do radônio presentes em sua superfície não serão transformados em traços observáveis. Desta forma a densidade de traços presente no LR115 é diretamente relacionada à quantidade de alfa emissores distribuídos no ambiente (Ab-81, Kh-93, Ni-99, To-90).

2.8 - Formação de traços em detectores plásticos

2.8.1 - Produção do dano no detector

O estudo dos mecanismos de formação dos traços nos SSNTDs ocorreu durante o desenvolvimento operacional desses detectores, ou seja, somente após o início de sua utilização é que começaram a ser propostos modelos para o aspecto físico da formação de um traço. A seguir é descrito o modelo mais aceito atualmente.

Uma partícula pesada e eletricamente carregada (próton, fragmento de fissão, alfa) quando incide sobre o detector provoca um desarranjo em sua estrutura desde a superfície até uma distância igual ao alcance máximo da partícula no material. Tal distância pode se estender por vários micrometros dependendo da energia da partícula (Pa-91). Este desarranjo descreve a trajetória da partícula dentro do detector, formando uma estrutura aproximadamente cilíndrica com diâmetro da ordem de angstroms (En-80, Fl-75, Pa-91, To-90, To-98).

O desarranjo molecular formado, correspondente ao dano sofrido e que contém a informação obtida pelo detector, é chamado de traço latente pois não pode ser notado antes de um tratamento químico adequado. Durante este tratamento o traço latente é ampliado formando os traços (buracos e figuras cônicas) que podem ser vistos ao microscópio óptico.

A formação do traço latente ocorre através de dois processos: 1) criação e 2) relaxação do defeito, subdivididos em diversas etapas (Il-89, To-90).

2.8.2 - Formação do traço – Ataque químico

Como foi visto anteriormente, o traço latente não pode ser notado antes de um tratamento adequado. Esse tratamento, que é chamado de ataque químico, é uma espécie de “revelação” do detector. A figura 2.4 mostra o princípio de detecção dos SSNTDs e o processo de revelação que permite o alargamento e a conseqüente visualização do traço.

Figura 2.4: Etapas do processo de detecção do SSNTD, produção do traço latente e a influência do ataque químico na formação do traço.

O objetivo do ataque químico não é apenas aumentar o diâmetro do traço para possibilitar sua visualização, mas também fornecer condições que facilitem, quando necessário, a determinação de seus parâmetros (dimensão, profundidade, formato, opacidade, etc). Este tratamento também é fundamental para ajustar a observação do traço de acordo com o método de medida utilizado.

O ataque químico consiste, basicamente, em um banho do detector em uma substância alcalina a uma temperatura e tempo adequados. Esta substância atua

no detector corroendo homogeneamente sua superfície a uma velocidade de ataque (V_b) que é dependente da temperatura e da concentração da substância (Du-84). Após um tempo t de ataque uma camada $h = V_b.t$ do detector é extraída (En-80).

A substância penetra também nas trajetórias que formam os traços latentes presentes no detector. Na direção do traço a corrosão ocorre a uma velocidade V_t , de forma que uma extensão L , dada por: $L = V_t.t$ (En-80), é corroída ao longo do traço. Há também uma corrosão em suas paredes e, conseqüentemente, o alargamento do traço.

Há duas condições que devem ser satisfeitas para que um traço latente possa ser revelado.

1. A velocidade de ataque ao longo do traço latente deve ser superior à velocidade de ataque superficial, caso contrário o dano é removido. Esta condição é facilmente satisfeita pois, em geral, a velocidade ao longo do traço (V_t) é maior que a taxa de remoção superficial (V_b) devido a uma menor resistência da região onde ocorreu o dano molecular em relação à superfície do detector (Pa-91).
2. A remoção superficial, durante o ataque químico, implica na existência de um ângulo crítico (θ_c) de detecção, definido entre a direção do dano e a normal à superfície do detector. A direção do traço latente deve formar um ângulo de incidência menor que o ângulo crítico. Os danos provocados com direções que formam ângulos acima do ângulo crítico (direções mais rentes à superfície do detector) são removidos devido ao ataque superficial (Fr-93). A figura 2.5 mostra dois casos de incidência de partículas: no primeiro caso, o traço se formaria na direção definida por Φ (em relação à superfície do detector) mas a quantidade de material retirada do detector na direção normal ($V_b.t$) é maior que a profundidade do traço latente ($V_t.t.\text{sen}\Phi$) e ele não se forma. O segundo caso representa a condição crítica para a formação do traço, caso em que Φ representa o complemento do ângulo crítico.

Figura 2.5: Geometria para formação do traço: (a) Para ângulos de incidência menores que $\arcsin(V_b/V_t)$, a superfície do material é removida a uma taxa maior que a componente normal de V_t e, portanto, não é possível a formação do traço; (b) Situação de ângulo crítico, abaixo do qual os traços são formados (FL-75).

Devido à penetração da substância reveladora também nas imperfeições existentes no detector, são reveladas figuras de ataque que se confundem muitas vezes com os próprios traços. Outras imperfeições (que independem do ataque químico) assim como o aspecto resultante no detector após o ataque também impõem uma dificuldade adicional na observação ao microscópio óptico.

Deve-se também lembrar que ocorrem danos no detector durante sua fabricação, ou ainda posteriormente, por meios mecânicos decorrentes de sua manipulação e armazenamento. Também durante o armazenamento o detector é submetido à radiação natural que pode interagir com o mesmo. Esses danos correspondem à maior parte do “ruído de fundo” (“background”), responsável por uma densidade de traços que não tem relação com a atividade alfa de interesse (Fr-93). Sempre que esse fundo for significativo deve ser descontado para que se evite erros sistemáticos. A análise do “ruído de fundo” é feita com o ataque químico e contagem de um detector não exposto.

Conforme visto nesta seção, o ataque químico dos detectores SSNTDs é um ponto crítico no processo de dosimetria de radônio e filhos, pois é somente a

partir desse ponto que as informações contidas no detector são reveladas ao observador.

Como o ataque químico faz uma corrosão no detector, é preciso que todas variáveis que nele influam sejam monitoradas para que haja reprodutibilidade e estabilidade na resposta dos detectores. Um ataque químico feito de forma errada ou não controlada pode danificar o detector implicando na perda de suas informações. O estabelecimento de um procedimento para ataque químico é, portanto, fundamental para que se possa garantir boa qualidade dos dados experimentais (ver capítulo 3).

2.9 - Tipo e características dos traços nos detectores LR115

Conforme visto anteriormente, a superfície do detector LR115 após o ataque químico apresenta várias figuras de ataque e um aspecto que prejudica a identificação correta dos traços. Quando a identificação e contagem são feitas de forma manual é necessário seguir um critério de contagem para que se minimize os erros associados a essa identificação (Jo-93). Assim é importante conhecer os tipos e as características das variadas formas em que se apresentam os traços.

A forma que assume um traço latente após o ataque químico depende da energia e do ângulo de incidência da partícula que o produziu. Essa dependência faz com que os traços não sigam um padrão único nas exposições ambientais, onde partículas com várias energias e vários ângulos de incidência chegam ao detector.

O tamanho e a opacidade do traço resultante está associado à energia da partícula alfa. Quanto mais energéticas são as partículas que produzem os traços latentes mais escuros e pequenos eles serão. Energias muito altas, mesmo acima do limite máximo de sensibilidade em energia ($E > 4 \text{ MeV}$), produzem traços que podem ser identificados, mas por serem muito pequenos ficam muito parecidos com figuras de ataque ou outros danos provocados no detector. Esses traços não são considerados no critério de contagem, mas como o tamanho a partir do qual se

considera um traço é um critério subjetivo, baseado na experiência e comparações de leituras, os traços muito pequenos produzem erros de identificação que influenciam a contagem.

Os traços produzidos por partículas emitidas por elementos que estão muito próximos ao detector também são dessa natureza, caso, por exemplo, dos filhos do radônio que são afetados pelo efeito do “plate-out”. Portanto, deve ser minimizada sua contagem a fim de que se elimine ao máximo os efeitos do “plate-out” sobre o LR115.

Traços produzidos por partículas alfa menos energéticas ($E < 2 \text{ MeV}$) são maiores e mais claros. À medida que a energia da partícula diminui, a borda do traço se torna cada vez menos definida e, para energias próximas ao limite mínimo de sensibilidade ($E \approx 0,5 \text{ MeV}$), a borda do traço praticamente desaparece tornando-o muito parecido com as figuras próprias do detector, formadas durante o ataque químico. Tais traços são os de mais difícil identificação e, conseqüentemente, responsáveis pela maior parte do erro associado à identificação dos traços na contagem.

O formato da borda é definido pelo ângulo de incidência. Em geral, quando a partícula tem uma incidência normal à superfície do detector, os traços apresentam formas quase circulares e, com o aumento do ângulo de incidência, os traços ganham um formato elipsoidal.

Dependendo da energia das partículas os traços também podem perfurar a superfície sensível do detector. Partículas alfa com energias entre aproximadamente 1,5 e 3,5 MeV, quando incidem verticalmente, acabam perfurando o detector, produzindo traços muito bem identificados.

Outros formatos também são encontrados com a maior variação de ângulo de incidência e energia. Por exemplo, podem ser identificados traços produzidos por partículas que chegaram ao detector com grande inclinação: se a energia da partícula é relativamente baixa, os traços são bem identificados, pois na direção de incidência a borda fica bem definida; por outro lado, quando a energia é

alta, os traços ficam muito finos e pequenos, dificultando a identificação, tais traços também são responsáveis por uma parcela considerável de erro associado à contagem.

No CR39 os traços seguem um comportamento semelhante em relação à dependência com a energia e ângulo de incidência das partículas que os produzem. As características dos traços apresentadas por esse detector estão melhor descritas no capítulo 4.

As figuras 2.6 a 2.14 exemplificam a maioria dos tipos e características dos traços no LR115, as figuras 2.15 e 2.16 mostram traços produzidos no CR39.

Figura 2.6: Aparência do detector LR115 não irradiado após o ataque químico.

Figura 2.7: Vários tipos de traços produzidos com exposição em câmara com ^{222}Rn e filhos.

Figura 2.8: Traços escuros e pequenos produzidos por partículas alfa de energias entre 3,5 e 4 MeV - exposição em fonte superficial de ^{241}Am .

Figura 2.9: Traços produzidos por partículas alfa com energias no limite superior de detecção (4 MeV) - exposição em fonte superficial de ^{241}Am .

Figura 2.10: Traços produzidos por partículas alfa com $E < 1,5$ MeV, que não perfuram o detector - exposição em fonte superficial de ^{241}Am .

Figura 2.11: Traço produzido por partícula alfa de baixa energia $E < 0,5$ MeV cuja borda perde a definição.

Figura 2.12: Traços bem circulares produzidos por partículas alfa com energia $\approx 2,5$ MeV - exposição em fonte superficial de ^{241}Am .

Figura 2.13: Traços produzidos por partículas alfa de diversas incidências angulares e diversas energias - fonte pontual de ^{241}Am .

Figura 2.14: Sujeira e danos em detector LR115.

Figura 2.15: Tipos de traços observados nos detectores CR39, irradiados em câmpnula com ^{222}Rn e filhos.

Figura 2.16: Tipos de traços observados nos detectores CR39, irradiados em câmpnula com ^{222}Rn e filhos.

2.10 - Incertezas na contagem de traços

A análise de um detector de traço requer a contagem de um grande número de campos para que o resultado apresente uma estimativa para sua incerteza relativamente bem dimensionada (Jo-93). Nessas condições uma boa estimativa para o resultado final da análise seria considerá-lo como sendo a média do número de traços por campo com a incerteza dada pelo desvio padrão da média.

Se a formação de um traço em um campo qualquer do detector seguir as condições de uma distribuição de Poisson, o resultado final de uma amostra de detector plástico também pode ser caracterizado apenas pelo número de traços verificados nos campos analisados, já que a incerteza, nesse caso, pode ser estimada pela raiz quadrada do número de traços.

Como os traços são o resultado final de desintegrações nucleares, cujo decaimento é explicado pela estatística de Poisson, é de se esperar que a distribuição dos traços na superfície do detector obedeça a estatística de Poisson. Entretanto, isto só ocorre no caso de os átomos radioativos estarem homogeneamente distribuídos no ar, ou pelo menos, no volume crítico de detecção do SSNTD durante a exposição.

Conforme veremos adiante, a distribuição de radônio e filhos no ar sofre vários efeitos do ambiente de forma que não é possível garantir que eles estejam homogeneamente distribuídos. Para que a distribuição dos traços no detector seja de Poisson, os efeitos que afetam a homogeneidade da distribuição dos átomos de radônio e filhos no ar devem ser mínimos.

Uma análise experimental dos erros estatísticos associados à quantidade de traços presentes no detector pode mostrar se não se está subestimando ou superestimando os erros ao assumir essa contagem como de Poisson. Essa avaliação foi efetuada com ajustes dos dados experimentais à distribuição de Poisson utilizando-se o método dos mínimos quadrados e uma expansão linear dessa função (Va-94).

Os testes de qui-quadrado realizados para várias distribuições de traços, em detectores LR115, sugerem ser satisfatória a hipótese de que tais distribuições obedeçam a estatística de Poisson. Entretanto, para detectores com baixa densidade de traços, os valores de qui-quadrado não indicaram bom ajuste. Nesses casos, a baixa quantidade de dados desfavorece a aplicação da expansão linear da função de Poisson.

Uma outra comparação pode ser feita entre as incertezas dadas pela estatística de Poisson e pela variância dos dados. Nessa avaliação os resultados de cada incerteza mostraram-se equivalentes mesmo para baixas densidades de traços.

Com base nesses resultados optou-se pela representação da contagem como a soma dos traços verificados em cada campo do detector, com sua incerteza dada pela raiz quadrada desse total.

2.11 - Metodologia experimental

2.11.1 - Sistemas de irradiação

2.11.1.1 - Fonte de ^{241}Am

Os testes com exposições a partículas alfa (5,48 MeV) emitidas por ^{241}Am ($T_{1/2}=1,58 \times 10^5$ dias) foram realizadas com uma fonte superficial de 6 μm de espessura incorporada em uma placa de 0,3 mm de alumínio⁶ (Figura 2.17). A atividade da fonte é de $(5,2 \pm 0,5)$ kBq, sua superfície tem uma área de 49 cm^2 e uma taxa de emissão superficial (ângulo sólido 2π sr) de aproximadamente 2500 partículas alfa por segundo.

Os detectores são expostos no ar com auxílio de um suporte de acrílico constituído de uma base circular (6,5 cm de diâmetro e 0,9 cm de espessura) que se apóia na superfície da fonte (Figura 2.17). Uma placa igual à da base é usada para

⁶ Produzida por Amersham Buchler GmbH & Co KG

colocação dos detectores e um parafuso de nylon, solidário a esta placa, permite a exposição em várias distâncias e, portanto, em vários espectros de energia alfa devido às perdas de energia pelas partículas no ar.

Figura 2.17: Arranjo experimental para exposição em fonte de ^{241}Am .

No centro da base do suporte há uma abertura de 0,8 cm de diâmetro que permite a colimação das partículas que chegam ao detector. Para a exposição, os detectores são colados à placa, alinhados com o furo da base. A distância entre a base e a superfície do detector é obtida com auxílio de um paquímetro. Os detectores são sempre expostos paralelamente à superfície da fonte, deste modo os traços são, em sua quase totalidade, circulares, devido à penetração das partículas com incidência normal à superfície do detector.

A maior parte das exposições foi realizada a uma distância de 2,7 cm da superfície da fonte (energia de aproximadamente 2,5 MeV), pois com o espectro aí obtido têm-se as melhores condições para observação e identificação dos traços.

2.11.1.2 - Fonte de ^{222}Rn e filhos

As exposições em atmosfera de ^{222}Rn e filhos foram efetuadas em uma câmpula composta de uma redoma de vidro (17,2 cm de diâmetro e 25 cm de

altura) e uma base de alumínio, com volume interno de aproximadamente 6 litros. A redoma é fixada sobre a base no centro da qual se coloca uma fonte aberta de ^{226}Ra com $1,1 \times 10^5$ Bq de atividade. A partir do decaimento do ^{226}Ra é formada uma atmosfera aproximadamente constante e em equilíbrio de ^{222}Rn e filhos.

Nessas condições os detectores são expostos a partículas alfa com energias entre aproximadamente 0 e 7,7 MeV que podem penetrar em sua superfície com ângulos entre 0° e aproximadamente 90° em relação à normal ao detector. Todas exposições dos plásticos LR115 e CR39 foram feitas colando-os à meia altura na parede interna da redoma de vidro, e com a parte sensível voltada para o centro da redoma.

2.11.1.3 - Exposições em ambientes

As exposições em ambientes controlados, ou seja, com menor variação dos fatores ambientais (ventilação, umidade, variações de temperatura, etc.), foram feitas em porões que permaneceram fechados na maior parte do tempo de exposição. As instalações utilizadas foram um porão na Unicamp e um no IFUSP.

Para a melhor comparação entre os dois detectores escolhidos (CR39 e LR115) foram utilizados também ambientes de convívio humano onde há maior influência dos fatores ambientais. As residências utilizadas estão localizadas em São Paulo, Campinas e Rio Claro. Para todas exposições os detectores foram colados a uma parede (“bare detector”) e situados na sala ou no quarto das residências a aproximadamente 1,5 m do solo.

2.11.2 - Métodos experimentais aplicados ao LR115

Os itens a seguir são métodos experimentais aplicados somente aos detectores LR115. Os métodos aplicados ao CR39 estão descritos no capítulo 4 e também em Paulo (Pa-91).

2.11.2.1 - Banho para revelação

A revelação dos detectores é feita em um banho-maria (banho de bocas - Quimis-Q334) constituído de um tanque de aço inox (volume de $15 \times 50 \times 30 \text{ cm}^3$). O aquecimento é feito por uma resistência tubular controlada por um termostato tipo bulbo capilar com precisão de $\pm 1,5^\circ\text{C}$.

Para a revelação os detectores são colocados em um recipiente imerso no tanque com uma solução de NaOH 2,5 N a 60°C durante 110 min. O detector é colocado sempre na posição horizontal e com sua parte sensível voltada para cima. Conforme será visto adiante, testes realizados com os detectores na posição horizontal e vertical não mostraram diferenças significativas no ataque químico, entretanto, a presença de estruturas físicas muito próximas à superfície sensível do detector afeta o ataque e inutiliza o detector.

As temperaturas da água e da solução são verificadas com auxílio de um termômetro de mercúrio. Após a revelação os detectores são lavados com água corrente a temperatura ambiente e com solução de álcool etílico.

Para controle e possível medida do “ruído de fundo”, uma lâmina do detector do mesmo lote, guardado protegido da radiação do ambiente, foi revelada junto com os detectores de interesse.

2.11.2.2 - Sistema de visualização dos traços

O sistema de contagem dos traços é “manual” e feito com um microscópio Leitz-Dioplan. O microscópio contém um tubo de observação binocular com aumento de 1,25 vezes, oculares com aumento de 10 vezes e objetivas com aumentos de 4, 10, 20, 40 e 63 vezes. Na análise dos detectores LR115 é utilizada a objetiva de 40 vezes resultando em um aumento total de aproximadamente 500 vezes.

A contagem é feita considerando os traços presentes dentro de um campo circular, sendo também considerados os traços que estão presentes sobre a borda do campo desde que a maior parte do traço esteja dentro do campo. A área do campo foi determinada com auxílio de uma escala micrométrica (2 mm, 200 divisões – Leitz Wetzlar) e resulta em $(6,88 \pm 0,23) \times 10^{-4} \text{ cm}^2$ para a objetiva de 40 vezes.

Para uma melhor visualização e análise dos traços é utilizado um filtro verde e a intensidade da luz é regulada, através da variação da tensão de alimentação, entre 6 e 9 V. Esta variação ocorre devido a algumas diferenças encontradas na densidade óptica dos detectores revelados.

CAPÍTULO 3

CARACTERÍSTICAS DO DETECTOR LR115

3.1 - Curva de ataque

Os parâmetros para o ataque químico de detectores plásticos, geralmente, são recomendados pelos fabricantes. Entretanto, como tais parâmetros nem sempre são os ideais para o sistema de visualização utilizado, cada experimentador deve procurar a configuração de ataque que otimize a resposta do detector e o sistema de detecção como um todo (Na-80, Pa-91). Dependendo do método de leitura utilizado, há a necessidade ou não de que o detector seja bastante corroído.

Os parâmetros recomendados pelo fabricante para o LR115 são: solução de NaOH (2,5 N) a 60°C durante 90 minutos, nessas condições o detector é corroído a uma taxa de aproximadamente $0,046 \mu\text{m}.\text{min}^{-1}$. Não foram feitos testes visando alterar a concentração e a temperatura da solução, pois a maioria dos pesquisadores (Da-86, Pa-91, Ra-86, So-86) usam os valores recomendados. Também foi verificado (Du-84) que o uso da concentração de 2,5 N resulta em traços mais regulares, e que, além disso, a resposta do detector em relação ao ataque químico atinge saturação com o aumento da concentração. Quanto à temperatura sua influência está mais ligada à rapidez com que se deseja o ataque (Fa-84).

Numa situação de visualização “manual”, como a deste trabalho, uma boa escolha do tempo de ataque pode facilitar o processo de leitura. Um dos itens a ser analisado na escolha é a distinção entre os traços e as figuras espúrias: um tempo mais longo permitirá uma melhor visualização dos traços, porém transformará figuras de ataque provenientes de defeitos do detector parecidas com traços, já um

tempo muito curto não produz figuras de ataque, porém dificulta a visualização dos traços provenientes de partículas alfa. Deve ser escolhido o tempo de ataque que permita uma melhor identificação dos traços, a partir da determinação de um critério de contagem.

A influência do tempo de ataque químico, em geral, é analisada através da construção de uma curva de resposta do detector em função do tempo de ataque, a qual é chamada de curva de ataque.

3.1.1 - Curva de ataque em ^{241}Am

A curva de ataque foi efetuada primeiramente com os detectores expostos à fonte superficial de ^{241}Am . Os detectores foram irradiados nas mesmas condições para minimizar variações no número e na energia das partículas incidentes. O tempo de exposição foi fixado em 3 horas.

Gráfico 3.1 - Curva de ataque: Densidade de traços apresentada por detectores irradiados em ^{241}Am variando-se o tempo de ataque químico, a contagem foi efetuada em 24 campos de $1,06 \times 10^{-2} \text{ cm}^2$.

O ataque químico foi realizado com NaOH 2,5 N a 60°C. O tempo de ataque foi variado entre 60 e 140 minutos, também foram tratados 3 detectores sem exposição com tempos de ataque de 50, 90 e 130 minutos para verificação do fundo. Em todo o trabalho foram utilizadas lâminas de um mesmo lote de LR115 fabricado em junho de 1998.

Conforme pode-se observar no gráfico 3.1, nas condições de irradiação utilizadas, o tempo de ataque não influi significativamente na densidade de traços. Esta constância se verifica porque, como as energias e os ângulos de incidência das partículas estão em faixas restritas, a quantidade e as características dos traços latentes são parecidas em todos detectores, formando densidade de traços aproximadamente igual em todas exposições. As diferenças verificadas na observação dos traços se resumem ao seu diâmetro e formato.

3.1.2 - Curva de ataque em atmosfera contendo ^{222}Rn e filhos

A curva de ataque foi repetida em uma situação onde há partículas alfa com várias energias e vários ângulos de incidência, parâmetros que mais influenciam a resposta do detector em função do tempo de ataque. A curva de ataque em atmosfera de ^{222}Rn foi elaborada com a exposição conjunta de 10 detectores na campânula contendo uma fonte de ^{226}Ra . Os detectores foram fixados na parede da campânula a uma mesma altura e expostos durante uma semana. O ataque químico foi efetuado com solução de NaOH a 2,5 N e 60°C, o tempo de ataque foi variado entre 60 e 150 minutos.

Para a construção da curva de ataque os detectores foram analisados com quatro critérios diferentes de contagem. Isso porque, no processo de otimização das leituras, é importante definir também um critério de contagem que melhor se adapte ao sistema.

Na leitura de uma amostra de detector plástico nem toda figura que é vista no campo do microscópio pode ser identificada, com certeza como um traço

devido a partículas alfa. O ideal é realizar a identificação baseando-se na comparação com outros traços e na experiência de leitura. Mas, o mais importante é definir um critério de contagem a ser seguido que possa minimizar as incertezas na identificação e reduzir sua subjetividade, a partir da definição de um padrão de contagem.

Os quatro critérios testados são descritos abaixo.

1. Contar tudo, com aspecto de traço, que aparece no campo visual, com a objetiva de 40 vezes. A maior incerteza de identificação com esse critério se deve à presença de figuras de ataque bem circulares e com vários diâmetros: aquelas com diâmetros maiores são muito parecidas com traços de partículas alfa que incidiram sobre o detector com baixa energia.
2. Contar apenas os traços bem regulares com uma borda bem definida e com certa profundidade, para excluir da contagem as figuras de ataque. A objetiva utilizada foi de 40 vezes e a intensidade de luz no microscópio foi ajustada para deixar o detector bem claro e difuso. A incerteza maior nesse critério é devido aos traços originados de partículas alfa de baixa energia que acabam não sendo bem identificados devido à intensidade de luz.
3. Contar com objetiva de 10 vezes somente os traços que perfuraram o detector, esse critério diminui a eficiência do detector devido a uma restrição maior no alcance e portanto na energia das partículas incidentes.
4. Contar apenas os traços bem regulares, com objetiva de 20 vezes e com filtro vermelho.

3.1.2.1 - Análise das curvas de ataque e critérios de contagem

O gráfico 3.2 mostra a densidade de traços obtida em função do tempo de ataque para o critério de contagem número 3 (contagem apenas dos traços que perfuraram os detectores com objetiva de 10 vezes). Verifica-se que para tempos curtos a densidade de traços é baixa, o que indica pouca eficiência no ataque. Para

tempos maiores a densidade tem um crescimento bastante acentuado, tendendo à saturação.

Gráfico 3.2: Curva de ataque - Critério 3: Densidade de traços apresentada por detectores expostos em atmosfera de ^{222}Rn e filhos, variando-se o tempo de ataque químico. A contagem foi efetuada em 16 campos de $1,06 \times 10^{-2} \text{ cm}^2$.

A densidade baixa para tempos curtos era esperada pois com esse tratamento há uma grande restrição quanto a energias de partículas que fazem traços que perfuram o detector. O aumento acentuado para tempos longos não é característica do detector. O que ocorre nesse caso é uma dificuldade na identificação dos traços devido ao aumento utilizado no microscópio, já que, para tempos mais longos, há muitas figuras de ataque próprias do detector que são caracterizadas como traço nesse critério.

Um maior aumento no microscópio possibilitaria uma melhor identificação dos traços, mas, além de não eliminar o problema na identificação, tornaria mais evidente a diminuição da eficiência do detector, pois o número de campos necessários para a análise do detector aumentaria em relação aos demais critérios, para manter a precisão.

Gráfico 3.3: Curva de ataque - Critérios 1 e 2: Densidade de traços apresentada por detectores expostos em atmosfera de ^{222}Rn e filhos variando-se o tempo de ataque químico. Contagem dos traços em 100 campos de $(6,88 \pm 0,23) \times 10^{-4} \text{ cm}^2$.

A análise com os critérios de contagem números 1 e 2 foi efetuada contando os traços, da mesma amostra de LR115, com objetiva de 40 vezes do microscópio. A curva de ataque resultante para cada critério pode ser vista no gráfico 3.3.

Como pode ser observado, a curva de ataque para os dois critérios segue um comportamento semelhante: uma resposta praticamente constante mostrando que a sensibilidade de detecção não é muito afetada pelo tempo de ataque entre os intervalos estudados, o critério de contagem que conta todos os traços mostra uma sensibilidade maior, o que já era esperado.

O gráfico 3.4 mostra a densidade de traços em função do tempo de ataque para o critério 4. O comportamento da densidade de traços com o tempo de tratamento químico, foi muito semelhante ao obtido no critério 3 (gráfico 3.2). As dificuldades aqui também são relacionadas à identificação dos traços. Para tempos curtos, muitos traços deixam de ser contados devido à presença do filtro. Com o

aumento do tempo de ataque esse efeito vai se tornando menos importante caracterizando o aumento acentuado da densidade de traços para tempos longos.

Gráfico 3.4: Curva de ataque - Critério 4: Densidade de traços apresentada por detectores expostos em atmosfera de ^{222}Rn e filhos variando-se o tempo de ataque químico.

A presença do filtro de luz dificulta bastante o processo de contagem e só isso já seria motivo para a eliminação desse critério. Entretanto, visou-se com essa experiência escolher um critério que eliminasse ao máximo a influência das imperfeições e das figuras de ataque na densidade de traços no detector.

Essas experiências mostram o esforço despendido para melhorar a qualidade dos dados obtidos a partir de uma contagem com visualização manual. Como se vê, nesse tipo de contagem a análise criteriosa do observador e uma boa experiência de leitura são requisitos fundamentais para a qualidade e reprodutibilidade dos dados. Na verdade, para cada experimento, faz-se necessário uma espécie de “calibração” ou adaptação do observador ao critério de contagem escolhido. Esta “calibração”,

durante o trabalho, foi feita, antes de cada experiência, através de um estudo dos tipos de traços presentes no detector e do aspecto de sua superfície após o ataque químico, permitindo assim a adequação do observador à contagem apenas dos traços considerados no critério de contagem definido. Também vale notar que pode haver pequenas diferenças entre contagens feitas por observadores distintos devido à subjetividade implícita na identificação dos traços.

Para as análises nos detectores LR115 adotou-se o critério 2 onde a contagem é feita contando apenas os traços regulares no aumento de 40 vezes na objetiva. O tempo de ataque escolhido é de 110 minutos pois facilita a identificação e contagem dos traços sem danificar o detector.

3.2 - Procedimento para ataque químico

Como visto anteriormente, o ataque químico é um ponto crítico na detecção de ^{222}Rn e filhos via detectores plásticos. A partir da adoção de um procedimento para o ataque químico, os fatores que nele influem podem ser controlados e reproduzidos de forma a garantir a qualidade dos resultados e a regularidade do detector.

Este procedimento foi estabelecido durante os primeiros testes com os detectores LR115 e em cada etapa buscou-se a otimização do processo visando também o ataque conjunto de grande número de detectores.

Além dos parâmetros próprios do ataque químico (concentração e temperatura da solução e tempo de ataque) é necessário definir outros fatores para um processamento adequado dos detectores.

- Forma de aquecimento e controle da temperatura

O aquecimento da solução alcalina foi testado com uma placa aquecedora e com um banho-maria. Neste último, o controle da temperatura é mais eficiente, e sua verificação pode ser feita com um termômetro de mercúrio em uma das

extremidades do banho-maria após o equilíbrio de temperatura entre a água e a solução.

- Recipiente para solução e detectores

Os recipientes utilizados para conter a solução e os detectores influem na transferência do calor, conseqüentemente no equilíbrio da temperatura, e também são os responsáveis pela quantidade de detectores que podem ser tratados de cada vez. Utilizou-se neste trabalho frascos de béquer, dois suportes de acrílico (um para ataque com os detectores na vertical e outro na horizontal) e uma bacia plástica.

Nos testes realizados com frascos de béquer, eram usados frascos de 50 ml preenchidos com 20 a 30 ml de NaOH. Os resultados foram bons, mas o uso em larga escala era prejudicado pois para cada detector tratado era necessário um frasco.

O suporte de acrílico para o ataque químico de até 20 detectores na posição horizontal, consiste de uma placa de $9,0 \times 14,5 \text{ cm}^2$ e 1,0 cm de espessura. Para evitar que os detectores se desloquem, durante o ataque químico, foram coladas verticalmente a esta base três peças retangulares finas, também de acrílico, que formam quatro fileiras onde os detectores são distribuídos. Os testes realizados com esse suporte mostraram uma diferença significativa na densidade óptica dos detectores (os plásticos mostravam uma cor mais escura) comparada com os tratados em béquer. Verificou-se que a peça dificulta a transferência de calor entre a água e a solução, prejudicando o equilíbrio térmico.

A alternativa para um ataque mais produtivo e que mantivesse as mesmas características do ataque em frascos de béquer foi o uso de uma bacia de plástico, onde o equilíbrio de temperatura é bastante eficiente. A solução alcalina e os detectores são colocados dentro da bacia plástica com dimensões de $16,0 \times 10,5 \times 4,0 \text{ cm}^3$, podendo ser realizado o ataque conjunto de aproximadamente 15 detectores.

- Posicionamento dos detectores

O ataque químico retira da superfície do SSNTD produtos não completamente solúveis em água. Tais produtos se depositam sobre o detector e, muitas vezes, durante a lavagem não se desprendem totalmente do plástico. Embora já tenha sido verificado (Fa-84) que o ataque químico na posição vertical diminui a deposição desses produtos, não foram verificadas diferenças significativas, neste trabalho, quanto ao resultado do ataque com os detectores na horizontal ou na vertical, provavelmente devido à lavagem do detector também com solução de álcool etílico e água após o ataque químico.

Para o ataque químico na posição vertical foi feito um suporte de acrílico composto de uma base de $9,0 \times 14,5 \text{ cm}^2$ e 1,0 cm de espessura, na qual foram fixadas cinco placas também de acrílico (0,5 cm de espessura, 1,5 cm de altura e 14,5 cm de comprimento) com uma distância de 1,3 cm entre cada par. Essas placas contêm ranhuras com uma profundidade de 0,15 mm de cada lado, onde os detectores podem ser encaixados. Os detectores tratados com essa peça mostraram um descolamento lateral, na parte sensível, exatamente na posição onde eram presos ao suporte, ou seja, a região do detector que ficou dentro das ranhuras do suporte. Quando os detectores eram colocados na horizontal, esse tipo de dano só ocorria quando um detector se sobrepunha a outro. Assim foi escolhida a posição horizontal para o ataque químico, onde é melhor o controle para se evitar esse tipo de dano.

O procedimento estabelecido para o ataque segue as seguintes etapas.

Primeiro aguarda-se a estabilização da temperatura da água do banho-maria. Coloca-se a bacia preenchida até a metade com a solução alcalina de NaOH a uma concentração de 2,5 N dentro do banho-maria para o aquecimento da solução. Após a solução alcançar uma temperatura estável de 60°C coloca-se os detectores, devidamente identificados, dentro da solução, com a face sensível voltada para

cima. Após o tempo de ataque (110 minutos) coloca-se os detectores dentro de um suporte para lavagem.

A lavagem é feita com água corrente à temperatura ambiente durante, no mínimo, 30 minutos. Depois é feita mais uma lavagem com uma solução 1:1 de água e álcool etílico à temperatura ambiente durante, no mínimo, 2 minutos. Após a lavagem os detectores são colocados para secar naturalmente ou podem ser secos com um lenço de papel.

3.3 - Estabilidade ao ataque químico

Durante os primeiros testes de ataque químico com detectores LR115, foi verificado que, em certas partes, os detectores não mostravam regularidade, principalmente nas laterais e cantos das lâminas. Visualizando ao microscópio óptico, essa irregularidade se mostrava como um descolamento da parte sensível do detector.

Alguns autores reportaram este fato anteriormente (Pa-91) como sendo consequência de algum problema na fabricação do detector. Entretanto, neste trabalho, verificou-se que este problema também está relacionado à posição dos detectores durante o ataque químico.

Conforme foi visto na seção anterior, durante o desenvolvimento do procedimento para o ataque químico, foi testada a colocação dos detectores nas posições vertical e horizontal. Nos testes na posição horizontal a descolagem só ocorreu quando havia a presença de alguma estrutura próxima à superfície do detector. Por exemplo, se um detector se sobrepunha a outro, devido a algum movimento durante o ataque químico, prejudicava a revelação do detector que estava embaixo dele. Para tratamento na posição vertical, como é necessário algum suporte para segurar os detectores, sua estrutura fica próxima à superfície sensível do detector, e ocorre uma descolagem mais freqüente.

Para uma melhor análise e confirmação das circunstâncias onde ocorre a descolagem, foi feito o ataque químico de dois detectores (um irradiado e outro não) na posição horizontal e com a face sensível para baixo, nessa situação os detectores ficaram totalmente danificados. Outros dois detectores irradiados foram tratados da mesma forma, porém com tempos mais curtos (25 e 50 minutos), para a verificação da influência da descolagem nos traços devido a partículas alfa. Mesmo com tempos de ataque mais curtos os resultados foram semelhantes e os detectores ficaram danificados.

Essas observações, junto com os testes realizados com detectores nas posições vertical e horizontal, mostram que a presença de estrutura física próxima ao detector prejudica sua revelação, danificando as informações nele contidas. Deste modo os detectores LR115 devem ser tratados sempre na posição horizontal e com a face sensível voltada para cima, também deve-se evitar que os detectores se sobreponham.

3.4 - Linearidade da resposta

Uma característica importante em qualquer detector de radiação é que sua resposta apresente linearidade em relação à quantidade de radiação recebida, pelo menos para os níveis a que se destina.

O estudo da linearidade do LR115 foi efetuado inicialmente com exposições à fonte superficial de ^{241}Am . Todos os detectores foram irradiados nas mesmas condições para minimizar variações no número e na energia das partículas incidentes. O tempo de exposição, compreendido entre 30 minutos e 50 horas, foi variado de forma a garantir desde exposições pouco acima do fundo normalmente encontrado no detector até grandes densidades de traços.

A leitura foi efetuada em campos escolhidos nas proximidades do centro dos detectores. O gráfico 3.5 mostra a densidade de traços regulares obtida em função do tempo de exposição.

Gráfico 3.5: Linearidade em fonte de ^{241}Am - Densidade de traços observada variando-se o tempo de exposição a uma fonte de ^{241}Am com os detectores colocados a 2,7 cm de distância. Contagem efetuada em 100 campos de $(6,88 \pm 0,23) \times 10^{-4} \text{ cm}^2$.

Para os tempos mais longos de exposição esperava-se uma espécie de saturação da resposta pois partículas distintas podem incidir sobre uma mesma posição do detector sobrepondo traços (Kh-93). Durante a leitura foi verificada a presença de traços sobrepostos (Figura 3.1), entretanto, no critério de contagem utilizado, não há discriminação desses traços desde que apresentem uma certa regularidade e, sempre que possível são considerados todos os traços sobrepostos.

Conforme pode-se verificar no gráfico 3.5, o LR115 apresenta uma resposta bastante linear para exposição nesta fonte de ^{241}Am até exposições de aproximadamente 20 h ou 2×10^4 traços por centímetro quadrado, o que é salientado pela reta apresentada, que resulta em um ajuste por mínimos quadrados até essa exposição (linha cheia). Para as exposições com tempos maiores há um sensível aumento de sua resposta, que pode ser visto no gráfico pelo outro ajuste a partir desse ponto (linha tracejada). Esse ajuste indica que a densidade de traços cresce

com uma potência de 1,16 do tempo de irradiação, indicando um comportamento supralinear.

As condições de observação nesse experimento, ilustradas na figura 3.1, foram bastante cômodas, pois os traços perfuraram o detector. Dessa forma o efeito supralinear, observado para altas densidades, deve ser creditado ao próprio detector e não a mudanças no critério de contagem ou a condições ambientais.

Figura 3.1: Detector exposto a partículas alfa de ^{241}Am mostrando traços sobrepostos. Durante a contagem é considerada a quantidade total de traços que seguem o critério 2.

A linearidade, para baixas densidades, também é verificada quando o detector é exposto a uma atmosfera uniforme de ^{222}Rn e filhos (Na-80), tal característica garante a possibilidade de uso de um fator de calibração para relacionar a concentração de emissores alfa no ar e a densidade de traços presentes no detector, relação essa que será vista no capítulo 5.

3.5 - Variação da resposta com a energia

Como foi visto anteriormente, as partículas alfa provenientes de ^{222}Rn e filhos podem chegar ao detector com energias desde muito baixas até aproximadamente 7,7 MeV. O LR115, entretanto, não é sensível a partículas alfa de

qualquer energia. O detector apresenta sensibilidade em uma faixa restrita de energias, ou seja, só é possível transformar traços latentes em traços observáveis se esses forem produzidos por partículas alfa que atingiram o detector com energias dentro dessa faixa.

O limite máximo de energia na qual o detector é sensível está relacionado com o decréscimo no poder de freamento conforme a energia das partículas aumenta. Quando ele se torna muito pequeno, a densidade de ionização é muito baixa e não é depositada a quantidade mínima de energia necessária para a formação do traço. O limite mínimo também depende da deposição de energia, porém, está mais relacionado com as condições de ataque químico (Nik-92).

Essa restrição de energias afeta diretamente a eficiência do detector. Ela define, juntamente com o ângulo crítico do detector e com o alcance das partículas no ar, um volume crítico: só são detectadas partículas emitidas por ^{222}Rn e filhos presentes nesse volume.

Os valores de energia obtidos experimentalmente para os limites mínimos e máximos do LR115 situam-se muito próximos de 1,5 e 4 MeV (Da-86, Jo-81, Pl-92). Há algumas variações nesses valores que são independentes da natureza do detector, elas estão mais relacionadas aos critérios de consideração de traços e às condições de ataque químico utilizadas.

Uma estimativa desses limites, para a condição de ataque químico utilizada nesse trabalho, foi obtida a partir da relação entre a densidade de traços apresentada por detectores expostos à fonte de ^{241}Am e a energia com que as partículas alfa atingem a superfície do detector. Para tanto, doze lâminas de LR115 ($1,5 \times 1,5 \text{ cm}^2$) foram expostas por três horas em distâncias que variaram entre 0,7 e 4,5 cm da superfície da fonte. As exposições foram feitas em uma sala com temperatura controlada.

Durante a leitura foram considerados somente os traços situados no centro do detector (diâmetro $\approx 0,35 \text{ cm}$), região onde a concentração de traços é mais homogênea.

A energia das partículas foi determinada através da curva que relaciona a energia com o alcance das partículas alfa no ar, dada por Bethe (Be-55) para uma temperatura de 15°C, e adaptada por Paulo (Pa-91) para a determinação da energia residual com que as partículas atingem o detector nas temperaturas de 5, 10, 20 e 30°C. As curvas obtidas por Paulo (gráfico 3.6) representam a energia que as partículas têm ao longo da sua trajetória através do ar.

Gráfico 3.6: Energia residual das partículas alfa em função da distância percorrida no ar, para diversas temperaturas (Pa-91).

O gráfico 3.7 mostra a curva obtida para a resposta do detector em função da energia com que as partículas atingiram sua superfície. A resposta do detector foi analisada em termos da densidade de traços multiplicada pelo quadrado da distância entre as superfícies do detector e da fonte, o que compensa aproximadamente a perda na densidade de traços devido à diminuição do ângulo sólido de exposição.

Do gráfico 3.7 percebe-se que, nas condições de ataque químico e critérios de consideração de traços utilizadas neste trabalho, o detector LR115 apresenta sensibilidade praticamente constante para energias entre 0,5 e 4 MeV, para exposições com incidência normal.

Gráfico 3.7: Densidade de traços, corrigida pelo ângulo sólido de exposição, em função da energia das partículas alfa da fonte de ^{241}Am ao atingir o detector. As contagens foram feitas em 150 a 250 campos de $(6,88 \pm 0,23) \times 10^{-4} \text{ cm}^2$.

Conforme foi visto anteriormente, o valor para o limite máximo de energia é compatível com os observados na literatura. Entretanto, o valor para o limite mínimo está 1 MeV abaixo de outros dados experimentais. Contribuem para a diminuição deste valor, e conseqüente aumento da sensibilidade, principalmente as condições de ataque químico e o critério de contagem de traços, mas também, o fato de o detector ser novo, a contagem ser manual e os ângulos de incidência bastante restritos.

A contagem dos traços seguiu o critério definido anteriormente, embora este critério tenha sido definido em condição de exposição a ^{222}Rn e filhos (que fornece uma situação mais parecida com aquela encontrada em exposições

ambientais, inclusive com figuras de ataque e possíveis danos ao detector). A exposição com partículas alfa da fonte de ^{241}Am com incidência praticamente normal fornece uma situação bem mais cômoda para a contagem, assim é possível visualizar e identificar traços produzidos por partículas fora dos limites definidos, principalmente para partículas mais energéticas. Entretanto, nesses casos, procurou-se seguir o critério e desconsiderar aqueles traços muito pequenos que não são levados em conta quando das exposições ambientais.

3.6 - Estabilidade dos detectores à exposição ambiental

Para a detecção de ^{222}Rn e filhos em exposições ambientais são necessários, geralmente, alguns meses de exposição. Deste modo o detector deve apresentar estabilidade e confiabilidade para exposições tão longas, quando vários fatores ambientais nele influem. Após as exposições ambientais a que foram submetidas os detectores LR115 foram observadas pequenas variações na densidade óptica e no padrão resultante no detector com relação aos detectores expostos em condições de laboratório. Entretanto, em todos os casos, foi possível a adoção do critério de identificação dos traços definido anteriormente, o que mostra a boa integridade e confiabilidade do detector a exposições ambientais de longa duração.

CAPÍTULO 4

"PLATE-OUT"

Ao longo deste trabalho foi descrita a necessidade de haver homogeneidade da concentração de emissores alfa no ambiente para uma medida adequada da atividade de ^{222}Rn e filhos. O principal fator que atua nessa concentração e contribui para possíveis heterogeneidades é o fenômeno do "plate-out", uma propriedade que os filhos do radônio têm de se depositar em superfícies como móveis, paredes, solo, teto e meios materiais em geral, e no próprio detector ("autoplate-out").

O "plate-out" pode ser explicado, basicamente, através do processo de difusão das partículas e substâncias suspensas no ar e pelas características físico-químicas dos filhos do radônio: durante sua difusão, tais elementos colidem com as paredes e meios materiais e, por serem elementos metálicos e terem facilidade de promover ligações químicas, ficam retidos. Desta forma superfícies materiais atuam como absorvedores dos filhos do radônio ao longo do tempo, havendo uma taxa de deposição associada ao "plate-out". Somente a concentração dos filhos do radônio no ar é afetada pois, por ser elemento nobre e, portanto, de difícil associação, o radônio não apresenta os efeitos do "plate-out".

A diminuição na atividade dos filhos do radônio ocorre principalmente nas proximidades das paredes e superfícies, ela é tão maior quanto mais perto os elementos estiverem das paredes e é proporcional à probabilidade de retenção do elemento quando ocorre a colisão (Pa-91).

O fato de os filhos do radônio terem uma existência finita, condicionada a seu decaimento radioativo, contribui para a limitação dos efeitos do "plate-out" às

regiões próximas às estruturas. Com o aumento da distância entre a posição do elemento e a parede, é menor a probabilidade de que esse elemento alcance a estrutura durante seu tempo de existência. Quando considerado somente o movimento devido à difusão dos filhos do radônio, pode ser definida uma distância máxima efetiva (DME) onde podem ocorrer os efeitos do "plate-out". Para distâncias maiores que a DME é possível supor equilíbrio entre o radônio e seus filhos presentes no ar (Pa-91). As contribuições de outros fatores ambientais que afetam o movimento do radônio e seus filhos no ar podem impor uma dificuldade a mais para sua monitoração, conforme será visto adiante.

As principais características do "plate-out" são, portanto, a existência de uma taxa de deposição dos filhos do radônio sobre as superfícies materiais e, conseqüentemente, a depleção na quantidade de emissões alfa devido aos filhos do radônio nas vizinhanças das superfícies. Essas características mostram que o "plate-out" é um dos responsáveis pela quebra do equilíbrio de atividades entre o ^{222}Rn e seus filhos, pois promove uma retirada de filhos do ^{222}Rn do ar. Como essa retirada não é, necessariamente, igual para todos os filhos do ^{222}Rn , ela contribui para a falta de homogeneidade na atividade alfa principalmente na região onde os efeitos do "plate-out" são mais significativos.

A falta de homogeneidade e de equilíbrio deve ser considerada para uma monitoração adequada de ^{222}Rn e filhos. Quando esta for realizada com detectores plásticos, o "plate-out" se faz presente também na densidade de traços através da deposição dos filhos do ^{222}Rn sobre o detector.

4.1 - Influência do "plate-out" na densidade de traços em SSNTDs

A densidade de traços presentes nos detectores plásticos, após um tempo de exposição, é relacionada com a quantidade de emissões alfa que ocorreram nesse tempo dentro do volume crítico de detecção. Levando em conta a ocorrência do efeito de "plate-out" pode-se considerar que tal densidade se deve a duas

componentes: a primeira devido aos filhos do ^{222}Rn que se depositaram no detector e a segunda devido ao ^{222}Rn e filhos presentes no ar.

A primeira componente é dependente da taxa de deposição dos filhos do ^{222}Rn sobre a superfície do detector ("plate-out"), taxa essa que, por sua vez, é bastante dependente das condições ambientais. A segunda componente depende da distribuição espacial do ^{222}Rn e filhos no ar, que também é função das condições ambientais (Pa-91).

Para detectores sensíveis às duas componentes, ou seja, se ambas contribuem para a densidade de traços, como é o caso do CR39, a presença do "plate-out" pode acarretar em uma superestimativa da atividade alfa presente no ar, já que há uma retirada dos filhos do ^{222}Rn do ar (diminuição da atividade) e uma deposição sobre o detector. Deste modo aumenta a probabilidade de detecção de uma partícula que, se emitida no ar, poderia não ser detectada, resultando em um aumento na densidade de traços. Por outro lado, nos detectores que não são sensíveis a partículas provenientes de elementos depositados na superfície do detector, caso do LR115, pode haver subestimativa da atividade no ar. Neste caso não seriam considerados os elementos que foram retirados do ar pelo efeito do "plate-out", resultando na diminuição da densidade de traços em relação à que seria registrada se o "plate-out" não fosse importante (Pa-91).

4.2 - Influência do "plate-out" na medida da atividade

A necessidade de se considerar os efeitos do "plate-out" para uma monitoração adequada de ^{222}Rn e filhos, independente do tipo de detector que será usado, impede a determinação de um único fator de calibração para medida de ^{222}Rn e filhos. O método de calibração mais simples, usado em detectores plásticos, é verificar a densidade de traços após a exposição em uma atmosfera conhecida. Ele não pode ser aplicado quando se pretende considerar os efeitos do "plate-out", mesmo que se conheça as condições ambientais, pois o "plate-out" atua de forma

diferente de ambiente para ambiente. Assim existe uma falta de reprodutibilidade desse efeito que acarreta uma falta de reprodutibilidade dos detectores sensíveis ao "plate-out" (Pa-91).

O desconhecimento das condições ambientais e da distribuição espacial de ^{222}Rn e filhos dificulta a previsão de como o "plate-out" atua na densidade de traços, assim o método para detecção de ^{222}Rn e filhos deve ser elaborado de forma que se minimize a dependência em relação aos fatores ambientais. Um método possível é fazer a distinção entre os traços resultantes do "plate-out" e aqueles provenientes de elementos presentes no ar. Nas seções seguintes será visto um método que permite tal desenvolvimento com o uso de detectores CR39 e LR115.

No caso do LR115, como não se formam traços devido a emissões dos filhos do ^{222}Rn depositados sobre sua superfície, a distinção dos traços pode ser colocada em segundo plano, entretanto, a dificuldade em relação ao comportamento do "plate-out" em diferentes tipos de ambientes continua. Assim, a consideração dos efeitos do "plate-out" é feita de forma indireta a partir de uma calibração do LR115 em relação ao método de medida da concentração de ^{222}Rn e filhos desenvolvido para o CR39.

4.3 - Detecção do ^{222}Rn e filhos com CR39 considerando o "plate-out"

Conforme já visto, a determinação da concentração de ^{222}Rn e filhos com detectores plásticos é feita, geralmente, a partir do conhecimento de um fator de calibração que relaciona a densidade de traços com esta concentração. Para tanto se supõe a presença de uma distribuição homogênea de ^{222}Rn e filhos no ambiente.

A densidade de traços é resultado da integração de todas as emissões alfa que produzem traços observáveis no detector. No CR39 essa densidade tem duas contribuições importantes: uma devido ao ^{222}Rn e filhos presentes no ar e outra devido aos filhos do ^{222}Rn que foram depositados no detector via "plate-out" (Bi-88).

Na seção anterior foi visto que o "plate-out" acontece em qualquer condição ambiental, já seus efeitos somente ocorrem em espaço limitado do ambiente. A distância, a partir da parede, na qual ele é importante, depende de fatores como: ventilação, campos eletrostáticos, mobilidade e distribuição de aerossóis. Desta forma, mesmo com uma homogeneidade na distribuição de ^{222}Rn (não afetada pelo "plate-out"), não é possível garantir que seus filhos estejam também distribuídos uniformemente no ar ambiente (Ha-94).

Na presença dos efeitos do "plate-out", a adoção de um fator de calibração que não leve em conta as condições ambientais pode provocar erros grosseiros nas medidas da concentração de ^{222}Rn e filhos. Da mesma forma o uso de um único fator para detecção de ^{222}Rn e filhos, quando os detectores são sensíveis aos filhos do ^{222}Rn depositados em sua superfície, caso do CR39, também acarreta erros (Ha-94).

Para monitoração adequada de ^{222}Rn e filhos, usando o CR39, é necessário um método que permita a distinção entre os traços produzidos por partículas de diferentes energias: aquelas emitidas pelos filhos do ^{222}Rn depositados no detector (alfas de maior energia) e aquelas emitidas por ^{222}Rn e filhos presentes no ar (alfas que perdem parte da energia no ar). Essa distinção pode ser realizada no CR39 a partir de informações obtidas sobre a forma e a opacidade dos traços.

A técnica apresentada nesta seção baseia-se em dois pontos importantes: a consideração dos efeitos do "plate-out" e o uso do formato dos traços produzidos no CR39 como forma de distinguir as energias das partículas. Essa técnica foi desenvolvida por Hadler e Paulo (Bi-88, Ha-91, Ha-94, Ha-95) e foi utilizada neste trabalho para calibração dos detectores LR115.

4.3.1 - Distinção de energias alfa com o uso do CR39

Os traços presentes nos SSNTDs têm uma forma aproximadamente elíptica. Essa característica permite a definição de novos parâmetros quando são

medidos o diâmetro maior ($D_{>}$) e o diâmetro menor ($D_{<}$) da figura formada pelo traço. Duas grandezas podem ser definidas:

$$S = D_{>} \cdot D_{<} \quad \text{Equação 4.1}$$

$$e = D_{>}/D_{<} \quad \text{Equação 4.2}$$

A grandeza S fornece informação a respeito do tamanho do traço, enquanto que e pode ser interpretado como a excentricidade da "elipse" e, portanto, refere-se à forma do traço.

A distribuição dos valores de S para os traços de um detector exposto a ^{222}Rn e filhos permite a separação desses traços usando seu tamanho como referência. Para partículas alfa com energia acima de 2 MeV, a área do traço formado é aproximadamente proporcional à perda de energia pela partícula no detector ($-dE/dx$). Assim partículas de maior energia produzem traços de áreas menores, enquanto que partículas menos energéticas produzem traços de áreas maiores (Ha-91).

Para partículas com $E < 2$ MeV a proporcionalidade entre S e $-dE/dx$ não é esperada porque, para tais energias, o comprimento do traço latente é comparável à camada superficial do CR39 dissolvida pelo ataque químico (Ha-91). Assim, as partículas com energias nessa faixa produzem traços pequenos e claros.

A proporcionalidade entre S e $-dE/dx$ para $E > 2$ MeV permite diferenciar traços devido ao "plate-out" daqueles produzidos por partículas emitidas no ar. Esse resultado é otimizado se for feita uma restrição angular na consideração dos traços, tal restrição é obtida a partir da grandeza e .

Quando se considera somente os traços mais circulares ($e \approx 1$), o histograma dos valores de S (Gráfico 4.1) mostra duas regiões separáveis por um valor crítico (S_c). Dependendo da quantidade de traços, são definidos claramente dois picos. Na região relativa a valores maiores de S ($S > S_c$) estão os traços produzidos por partículas que perderam parte de sua energia no ar, ou seja,

partículas emitidas por ^{222}Rn e filhos presentes no ar. Para $S < S_c$ observa-se um pico devido a partículas alfa emitidas pelos filhos do ^{222}Rn , presentes no detector, e a partículas emitidas no ar e que perderam grande parte de sua energia até atingir o detector (Ha-94). O valor de S_c é determinado para cada detector pelo final desse pico, ou, quando ocorre a presença de dois picos bem determinados, S_c é obtido pelo vale entre eles.

Gráfico 4.1: Frequência do número de traços em cada intervalo de S . Os traços com $S > S_c$ são devido a elementos presentes no ar. O pico com $S < S_c$ refere-se a traços produzidos por elementos que se depositaram sobre o detector ("autoplate-out").

4.3.2 - Medida da concentração dos emissores alfa presentes no ar

A medida da concentração dos filhos do ^{222}Rn no ar e depositados no detector inicia-se a partir da medida dos parâmetros S e e . Esses parâmetros podem ser obtidos a partir de modelos matemáticos detalhados que descrevem a formação dos traços.

No critério adotado só se consideram traços que apresentam $e \leq 1,10$ (Ha-94), pois dessa forma os traços devido aos filhos do ^{222}Rn depositados no detector podem ser diferenciados dos demais.

Os traços separados por esse critério são agrupados em três tipos:

1. **Tipo a:** Os traços maiores, aqueles presentes na segunda região ($S > S_c$) do histograma (S maiores).
2. **Tipo b:** Os traços presentes no primeiro pico (S menores) e que são mais escuros que os do tipo a.
3. **Tipo c:** Os traços presentes no primeiro pico e que são mais claros que os do tipo a.

Os traços tipo b correspondem a partículas alfa emitidas pelos filhos do ^{222}Rn presentes no detector, via "plate-out". Os traços tipo a e tipo c correspondem às emissões de ^{222}Rn e filhos ocorridas no ar.

Note-se que, pela classificação acima, no primeiro pico do histograma de S há traços tipo b e tipo c. A presença desses dois tipos de traços no mesmo pico impõe nova separação porque estão presentes traços produzidos por partículas de diferentes energias. Tanto partículas com energia $E > 4 \text{ MeV}$ quanto aquelas com $E < 0,5 \text{ MeV}$ produzem traços com áreas pequenas (Ha-94). Para tal separação faz-se uso da opacidade do traço, que se relaciona diretamente com a sua profundidade no detector.

As partículas alfa mais energéticas, emitidas por filhos do ^{222}Rn presentes no detector, produzem traços mais escuros e portanto com maior opacidade. Traços produzidos por partículas menos energéticas são bem claros e, portanto, de menor opacidade (Ha-94). Um histograma (gráfico 4.2) da opacidade, somente dos traços localizados no primeiro pico de S , torna possível a separação entre os traços produzidos por partículas de baixa energia daqueles produzidos por partículas mais energéticas, resultantes da presença do efeito do "plate-out". O valor de corte no histograma da opacidade (Op_c) é obtido por método similar ao do histograma de S , com a definição de duas regiões que, novamente dependendo da

quantidade de traços, formam dois picos bem definidos. No histograma da opacidade, verifica-se normalmente o corte para valores entre 0,30 e 0,35.

A distinção completa entre traços, devido ao "plate-out" e aos elementos presentes no ar, é feita, portanto, a partir da análise dos histogramas de S e da opacidade. Dessa análise obtém-se a contagem dos traços tipo a e tipo c que está relacionada com a concentração de emissores alfa presentes no ar.

Gráfico 4.2: Frequência do número de traços, presentes no primeiro pico de S, em cada intervalo da opacidade (Op). Os traços com $Op < Op_c$ são devido a partículas alfa que perderam grande parte de sua energia antes de atingir o detector, provenientes de elementos presentes no ar.

Definindo p como o número de traços tipos a e c por cm^2 que segue o critério adotado ($e \leq 1,10$), tem-se a quantidade que corresponde a uma integração das emissões alfa que ocorreram no ar dentro do volume crítico de detecção,

durante o tempo de medida t_e (dias ou anos). A concentração (A medida em unidades de $t_e^{-1} \cdot \text{cm}^{-3}$) de emissões alfa pode então ser relacionada com ρ pela equação 4.3, onde χ é o fator de calibração.

$$\rho = A \cdot t_e \cdot \chi \quad \text{Equação 4.3}$$

Note-se que a quantidade A não pode ser relacionada diretamente com a concentração das atividades dos radioelementos presentes no ambiente, já que há uma quebra do equilíbrio radioativo da série pelas condições ambientais. Para se obter as atividades de cada radionuclídeo é necessário o conhecimento do fator de equilíbrio em cada situação (Sw-83).

A partir da medida do volume crítico, que é bastante dependente do critério de contagem utilizado ($e \leq 1,10$), é possível calcular numericamente o fator de calibração (χ) que relaciona a densidade de traços e a concentração de emissões alfa presente dentro desse volume.

Os detalhes dessa calibração para o CR39 estão descritos em Hadler e Paulo (Ha-94). Para o cálculo da concentração de emissões alfa presente no ar foi encontrado o seguinte fator de calibração:

$$\chi = (0,160 \pm 0,016) \text{ cm} \quad \text{Equação 4.4}$$

Esse fator de calibração é pouco dependente das condições ambientais. Ele pode ser aplicado independentemente dos efeitos do "plate-out", se os mesmos só forem significativos até uma DME (Distância Máxima Efetiva) de 3 cm (Ha-95). Nessas condições esta técnica pode ser aplicada na avaliação e comparação de medidas obtidas com detectores menos sensíveis aos efeitos do "plate-out", como é o caso do LR115.

4.3.3 - Procedimento de leitura com o CR39

As análises do CR39 foram realizadas em conjunto com o grupo de pesquisa do professor Júlio C. Hadler no IFGW-UNICAMP. As imagens dos campos foram produzidas nessa instituição com um sistema de visualização e aquisição de imagens composto por um microscópio Leica (modelo DMRBE), uma câmara CCD Sony (modelo IRIS) e um monitor Sony (modelo HR Trinitron). O microscópio é controlado pelo programa Leica App 3.02 e as imagens adquiridas pelo programa Sigma Scan Pro (Jandel Scientific).

A medida da concentração de emissões alfa presente no ar com o CR39 envolve as seguintes etapas.

1. A exposição é feita com o detector colado à parede ("bare detector") e as condições de ataque químico são: 6,25N NaOH, 70° C, 400 min.
2. Para a análise automática, os campos que contêm traços que seguem o critério $e \leq 1,10$ são salvos como imagens pelo sistema de visualização.
3. Nas imagens capturadas, os traços são analisados com o programa CRtran para medida e cálculo de seus parâmetros (D_+ , D_- , S , e , Op).
4. Para a separação dos traços tipo a (S maiores) é feito o histograma dos valores de S , e da análise do histograma é obtido um valor crítico de S (S_c) que corresponde ao vale na figura (gráfico 4.1). A quantidade de traços com $S > S_c$ é considerada como os traços tipo a.
5. Com os traços remanescentes (pico 1 do gráfico 4.1) faz-se o histograma dos valores da opacidade. Novamente é definido um vale na figura (Op_c) para separação dos traços claros e escuros (gráfico 4.2). A quantidade de traços pequenos e claros ($Op < Op_c$) é considerada como os traços tipo c.
6. A soma (N) dos traços tipo a e tipo c representa as emissões alfa provenientes de ^{222}Rn e filhos presentes no volume crítico de detecção. A densidade de traços (ρ) é então obtida pela seguinte relação:

$$\rho = \frac{N}{n.C} \quad \text{Equação 4.5}$$

Onde n é o número de campos analisados e C é a área de cada campo.

Durante a análise são considerados somente os traços que estão totalmente dentro dos limites do campo. É feita uma correção na densidade devido aos traços que são desprezados mas que têm uma parte dentro do campo. A concentração de emissões alfa no volume de detecção é então obtida pelas equações 4.3 e 4.4.

4.4 - Detecção de ^{222}Rn e filhos com o uso de LR115

Conforme foi visto na seção anterior a detecção de ^{222}Rn e filhos com CR39, levando em conta os efeitos do "plate-out", necessita de um sistema experimental que envolve a análise dos traços, por tamanho e opacidade. Também é necessário o desenvolvimento de um método para seleção de traços devido ao "plate-out".

A detecção passiva de ^{222}Rn e filhos com o uso de LR115 pode ser feita de forma mais simples, já que esse detector é menos sensível a partículas alfa provenientes de sua superfície. No caso do detector LR115, as partículas alfa com energia maior que 4 MeV, emitidas pelos filhos do ^{222}Rn depositados em sua superfície ou que estiverem em suas proximidades (distâncias menores que 2 cm), não são registradas. Os traços verificados no LR115 exposto em ambiente, mesmo que colado em uma parede, serão, em sua quase totalidade, devido ao ^{222}Rn e filhos presentes no ar, conforme a equação 4.6.

$$\rho_{LR115} = \rho_{Rn(ar)} + \rho_{Filhos(ar)} \quad \text{Equação 4.6}$$

A contagem de traços devido à presença de filhos do ^{222}Rn na superfície do detector ou em suas proximidades, pode ser minimizada definindo o melhor tempo de ataque e um critério de contagem que privilegie a medida do ^{222}Rn e filhos presentes no ar (energias mais baixas) e reduzindo ao máximo a contagem de traços devido ao "plate-out" (energias altas).

A influência dos efeitos do "plate-out" sobre a resposta do LR115 e a validade da equação 4.6 podem ser verificadas experimentalmente expondo lâminas de LR115 com distâncias variadas a partir de uma superfície. A figura 4.1 mostra o corte horizontal do arranjo experimental utilizado para esse propósito. Uma tira de 12 cm de LR115 foi exposta durante 30 dias em um porão onde a taxa de ventilação pode ser considerada desprezível. A tira foi exposta com uma inclinação de 25° , em relação à parede, para que houvesse a variação da distância entre regiões da tira e a parede e, para que as partículas emitidas por filhos do ^{222}Rn depositados em uma região não afetassem a densidade de traços em outras regiões.

Figura 4.1: Vista superior do arranjo experimental para variação da distância entre a tira de LR115 e a parede.

O gráfico 4.3 mostra a densidade de traços em função da distância à parede. As leituras foram realizadas em 200 campos de pequenas regiões da tira centralizadas em intervalos de 0,5 cm.

O comportamento praticamente constante da densidade de traços, em função da distância, mostra que a resposta do LR115 não é afetada pela presença do

"plate-out" e que a densidade de traços na superfície do detector é devido somente a partículas alfa emitidas em seu volume crítico. Além disso, a resposta indica uma concentração constante, independente dos efeitos do "plate-out", em situações onde não há influências externas, apontando para uma concentração homogênea de ^{222}Rn e filhos no ar dentro do volume crítico de detecção. Em situações realistas, o "plate-out" pode afetar a concentração de filhos do ^{222}Rn nas proximidades de estruturas e do detector de forma não reprodutível. Assim para que a medida com o LR115 não resulte em uma subestimativa da concentração deve-se considerar tal efeito na sua análise.

Gráfico 4.3: Densidade de traços em função da distância à parede. A distância foi obtida por relação trigonométrica envolvendo o ângulo entre a tira e a parede, e o comprimento da tira até o centro da região medida.

Com base nesses resultados, a calibração do LR115 poderia ser feita através de exposições em ambientes de concentração conhecida, porém com informações sobre os efeitos do "plate-out", o que é ainda muito difícil de se obter, uma vez que eles podem variar bastante com as condições ambientais do local.

O método, descrito na seção anterior, desenvolvido para o CR39 visa a medida da concentração de ^{222}Rn e filhos de forma que sejam minimizados os

efeitos devido ao desconhecimento das condições ambientais. Para o LR115 este método pode ser aproveitado e servir como calibrador primário, onde é feita uma calibração do LR115 em função das concentrações avaliadas pelo CR39. Deste modo as características da monitoração com LR115 devem seguir um comportamento semelhante às do CR39, com as mesmas condições e limitações.

Com essa calibração, a determinação da concentração de emissores alfa pode ser feita, simplesmente, a partir da medida da densidade de traços observada no detector LR115 após a exposição. O fator de calibração, assim como no caso do CR39, é pouco dependente das condições ambientais, podendo ser aplicado independente dos efeitos do "plate-out" se os mesmos só forem significativos até uma DME de 3 cm.

CAPÍTULO 5

CALIBRAÇÃO DO LR115

O procedimento de calibração consiste na determinação de um fator que relacione a densidade de traços apresentada pelo detector exposto, em um determinado tempo de exposição, com a concentração de ^{222}Rn e filhos presente no ambiente estudado.

O método mais usado para calibração de detectores de traços é a determinação do fator de calibração através de exposições em atmosfera conhecida de ^{222}Rn e filhos. Geralmente tal atmosfera não representa um ambiente realista e conta com condições ambientais favoráveis, ou seja, taxa de ventilação, umidade e temperatura controladas. Além disso, conforme foi visto no capítulo anterior, uma calibração onde se considera os efeitos do “plate-out” não pode ser feita dessa forma devido à variação que ocorre em tal efeito em diferentes condições ambientais.

Para uma monitoração adequada, a calibração dos detectores deve ser feita numa situação realista onde os efeitos do “plate-out” estão presentes. Como há dificuldades em se encontrar fontes padrão de ^{222}Rn ou ambientes com atividades conhecidas de ^{222}Rn e filhos e com informações sobre os efeitos do “plate-out”, optou-se por calibrar os detectores LR115 em função do método que envolve o uso do CR39, descrito no capítulo 4.

5.1 - Calibração relativa do LR115 através de medidas com CR39

O método de medida da atividade conjunta de ^{222}Rn e filhos, desenvolvido para o detector CR39, tem sido usado e testado há algum tempo,

obtendo-se bons resultados e boa reprodutibilidade, servindo aqui como alternativa, para o desenvolvimento da metodologia de medida de concentração de ^{222}Rn e filhos baseada no uso do LR115.

A calibração relativa do LR115 em função do CR39 foi feita a partir de exposições simultâneas dos dois detectores. A escolha dos locais para as exposições foi feita visando uma variedade de condições em diferentes ambientes fechados e de convívio humano, onde os fatores ambientais são mais importantes. As exposições conjuntas também foram feitas em situações controladas, como a campânula (contendo ^{222}Rn e filhos) e ambientes com pouca influência dos fatores ambientais (ventilação, umidade, temperatura, etc.), sendo escolhidos locais que permaneceram fechados na maior parte do tempo de exposição.

As exposições em ambientes de convívio humano fornecem um resultado mais apropriado para o uso em medidas de campo posteriores, já que nesse caso é mais evidente a influência dos fatores ambientais. Por outro lado, o resultado das exposições em situações controladas permite a avaliação do modelo e sua confiabilidade para a calibração em ambientes reais. O fator de calibração obtido deve ser uma constante e, portanto, ser pouco dependente de fatores ambientais, taxas de exposição ou outros fatores.

Na análise dos detectores LR115, diferentemente do método desenvolvido para o CR39, todos os traços observados foram considerados desde que seguissem o critério de identificação descrito anteriormente (seção 3.1.2), ou seja, não houve qualquer restrição quanto às características dos traços. Também foi necessário considerar a quantidade previamente existente de traços de fundo.

Os resultados da comparação entre os dois tipos de detectores foram separados em dois conjuntos de dados: os de exposição na campânula e sala de fontes, um local com baixa ventilação; e os de exposição em ambientes de convívio humano. Também se inclui um item a respeito da calibração do LR115 em condições bastante favoráveis, com exposições a partículas alfa provenientes da fonte de ^{241}Am com ângulo de incidência e energia em faixas restritas.

5.1.1 - Calibração na campânula e sala de fontes

Para os detectores calibrados na campânula, foram utilizadas duas lâminas de LR115 e uma de CR39, que ficaram expostas em períodos entre 1 e 7 dias com a campânula fechada durante todo o tempo de exposição. Duas outras exposições foram feitas durante 10 e 21 dias, mas nesses casos a campânula foi aberta 2 e 5 vezes respectivamente. Na análise desses detectores foi incluída uma exposição, realizada durante 105 dias, em uma sala do Laboratório de Dosimetria do IFUSP onde estão armazenadas fontes radioativas diversas, sendo local de acesso restrito e praticamente sem ventilação.

Nesse conjunto de detectores expostos na campânula o “fundo” foi verificado com o ataque químico de dois pedaços não expostos do detector retirados da mesma lâmina.

A tabela 5.1 mostra as condições e resultados observados para os detectores calibrados na campânula e sala de fontes. A tabela mostra as densidades de traços, medidas com CR39 (ρ_{CR39}) (equação 4.5) e com LR115 (ρ_{LR115}) e a concentração de emissões alfa (A) no volume crítico de detecção do CR39, obtida a partir das densidades nesse detector (equação 4.3). A relação entre a densidade de traços e o tempo de exposição no LR115 e a concentração de emissões alfa foi determinada pela equação 5.1, que fornece o fator de calibração (ϵ) para o LR115 em cada exposição, apresentado na última coluna da tabela. As incertezas foram calculadas pelas fórmulas usuais de propagação de incertezas.

$$\rho_{\text{LR115}} = A \cdot t_e \cdot \epsilon \quad \text{Equação 5.1}$$

t_e d	ρ_{CR39} 10^3 cm^{-2}	A^1		ρ_{LR115} 10^3 cm^{-2}	ϵ cm
		$10^3 \text{ cm}^{-3} \text{ d}^{-1}$	kBq/m^3		
1	$0,109 \pm 0,020$	$0,68 \pm 0,14$	$7,9 \pm 1,6$	$0,23 \pm 0,06$	$0,34 \pm 0,11$
2	$0,30 \pm 0,04$	$0,94 \pm 0,14$	$10,9 \pm 1,7$	$1,11 \pm 0,09$	$0,59 \pm 0,10$
3	$0,71 \pm 0,06$	$1,48 \pm 0,19$	$17,1 \pm 2,2$	$2,75 \pm 0,14$	$0,62 \pm 0,09$
4	$1,04 \pm 0,07$	$1,62 \pm 0,20$	$18,8 \pm 2,3$	$3,88 \pm 0,16$	$0,60 \pm 0,08$
5	$1,10 \pm 0,08$	$1,38 \pm 0,17$	$16,0 \pm 2,0$	$5,90 \pm 0,21$	$0,86 \pm 0,11$
6	$1,63 \pm 0,10$	$1,69 \pm 0,20$	$19,6 \pm 2,3$	$7,81 \pm 0,26$	$0,77 \pm 0,09$
7	$1,80 \pm 0,08$	$1,61 \pm 0,14$	$18,6 \pm 1,6$	$10,01 \pm 0,31$	$0,89 \pm 0,08$
10	$1,98 \pm 0,12$	$1,24 \pm 0,14$	$14,3 \pm 1,7$	$8,19 \pm 0,27$	$0,66 \pm 0,08$
21	$5,52 \pm 0,30$	$1,64 \pm 0,19$	$19,0 \pm 2,2$	$22,15 \pm 0,61$	$0,64 \pm 0,07$
105	$3,64 \pm 0,23$	$0,22 \pm 0,03$	$2,5 \pm 0,3$	$14,30 \pm 0,53$	$0,62 \pm 0,09$

Tabela 5.1: Calibração do LR115 em função do CR39 na campânula. Resultados para as densidades de traços no CR39 (ρ_{CR39}) e no LR115 (ρ_{LR115}) irradiados simultaneamente. As concentrações (A) foram determinadas a partir das densidades do CR39 e o fator de calibração (ϵ) obtido pela equação 5.1. A última linha corresponde ao detector exposto na sala de fontes do IFUSP. Na contagem dos traços foram considerados de 400 a 1600 campos para o CR39 e 200 campos, de cada lâmina, para o LR115.

Conforme pode ser visto na tabela 5.1 o detector exposto durante um dia na campânula mostra um fator de calibração muito pequeno em relação aos demais. Embora não esperado, esse resultado é possível de ser explicado analisando a condição de irradiação à qual o detector esteve exposto. Embora a medida da concentração de emissões alfa mostre uma atividade relativamente alta, o tempo de exposição foi muito pequeno para que a densidade de traços resultante no LR115 fornecesse um resultado mais confiável como ponto de calibração, pois, nessas condições, a quantidade de traços verificada é da mesma ordem de grandeza da contagem de fundo (aproximadamente 250 traços por centímetro quadrado).

Outro fato a ser considerado é que, conforme pode ser verificado no gráfico 5.1, a atividade dentro da campânula está em fase de crescimento, antes de alcançar o equilíbrio entre o ^{222}Rn e filhos. Nessa situação o comportamento da distribuição espacial de ^{222}Rn e filhos dentro da campânula pode contribuir para a resposta inadequada do LR115 ou do CR39.

⁷ O uso da unidade Bq foi feito para facilitar a comparação com outros resultados, apesar de A não representar a atividade de ^{222}Rn ou de seus filhos.

Gráfico 5.1: Concentração de emissões alfa medida com o CR39, em função do tempo de exposição na campânula.

O gráfico 5.2 mostra o comportamento da razão ($\rho_{\text{LR115}} / t_e$) entre a densidade de traços no LR115 e o tempo de exposição em função da concentração de emissões alfa (A) presente no ar, determinada com o CR39. O coeficiente angular deste gráfico fornece o valor médio para o fator de calibração do detector LR115. A reta indicada é o resultado do ajuste por mínimos quadrados, que apresentou um valor de χ^2_{red} igual 1,6 (neste ajuste foi excluído o ponto referente a exposição de 1 dia na campânula e se impôs coeficiente linear igual a 0). O resultado verificado para o fator de calibração do LR115 (ϵ) em situação controlada foi de: **(0,69 ± 0,04) cm**.

Gráfico 5.2: Densidade de traços por tempo de exposição no LR115 em função da concentração de emissões alfa determinada com exposições efetuadas na campânula. A reta no gráfico representa o ajuste por mínimos quadrados passando pela origem, excluindo o 1º ponto da tabela 5.1 (um dia de exposição na campânula - 2º ponto no gráfico).

5.1.2 - Calibração em ambientes de convívio humano

Para a calibração em ambientes de convívio humano, também foram expostos dois detectores LR115 e um CR39 em cada local, colados nas paredes, por aproximadamente seis meses, entre fevereiro e agosto de 1999. O fundo, nesses detectores, foi o resultado médio de contagens de fundo de sete pedaços de lâminas do mesmo lote de LR115 utilizado nas experiências.

As exposições foram realizadas em 10 residências sendo 9 casas térreas e um apartamento no primeiro andar de um prédio (detector No. 6). Também foram incluídos nessa análise os resultados para duas exposições (de 60 dias detector No. 11 e 34 dias detector No. 12) em um mesmo porão. Deve-se notar que esse local não representa um ambiente de convívio humano, apenas de acesso das pessoas,

sujeito, portanto, a condições de ventilação diferentes daquelas encontradas nas residências.

A tabela 5.2 mostra os resultados obtidas para essas exposições. O gráfico 5.3 mostra a razão ($\rho_{\text{LR115}} / t_e$) entre a densidade de traços medida com o LR115 e o tempo de exposição, em função da concentração de emissões alfa (A) determinada com o CR39. Da mesma forma que o gráfico 5.2, o coeficiente angular da reta ajustada representa o valor médio para o fator de calibração do LR115 em ambientes de convívio humano. A partir do ajuste por mínimos quadrados, que apresentou um valor de χ^2_{red} igual 1,7, encontrou-se o valor de $(0,43 \pm 0,03)$ cm para o fator de calibração do LR115 (ϵ) em exposições ambientais.

Detector	ρ_{CR39} cm ⁻²	A		ρ_{LR115} cm ⁻²	ϵ cm
		cm ³ d ⁻¹	Bq/m ³		
1	379 ± 42	12,5 ± 1,9	145 ± 22	784 ± 78	0,37 ± 0,07
2	535 ± 45	17,6 ± 2,3	204 ± 27	2078 ± 107	0,70 ± 0,10
3	262 ± 35	8,7 ± 1,5	101 ± 17	722 ± 63	0,49 ± 0,09
4	181 ± 29	6,0 ± 1,1	69 ± 13	457 ± 54	0,46 ± 0,10
5	288 ± 33	9,5 ± 1,4	110 ± 16	527 ± 55	0,33 ± 0,06
6	122 ± 23	4,0 ± 0,9	46 ± 10	181 ± 45	0,27 ± 0,09
7	332 ± 40	9,9 ± 1,6	115 ± 19	813 ± 78	0,41 ± 0,08
8	461 ± 42	15,2 ± 2,1	176 ± 24	1320 ± 107	0,48 ± 0,08
9	201 ± 31	6,7 ± 1,2	78 ± 14	544 ± 56	0,48 ± 0,10
10	208 ± 29	7,1 ± 1,2	82 ± 14	759 ± 64	0,60 ± 0,11
11	404 ± 39	42,0 ± 6,0	486 ± 69	1075 ± 87	0,43 ± 0,07
12	207 ± 27	38,0 ± 6,0	440 ± 69	451 ± 96	0,35 ± 0,06

Tabela 5.2: Calibração do LR115 em função do CR39 nas residências e porão (detectores Nos. 11 e 12). Resultados para as densidades de traços no CR39 e no LR115 irradiados simultaneamente. As concentrações (A) foram determinadas a partir das densidades do CR39 e o fator ϵ obtido pela equação 5.1. Na contagem dos traços foram considerados 1600 campos para o CR39 e 400 ou 500 campos, de cada lâmina, para o LR115.

Gráfico 5.3: Densidade de traços por tempo de exposição no LR115 em função da concentração de emissões alfa (A) determinada com exposições ambientais. A reta no gráfico representa o ajuste por mínimos quadrados passando pela origem.

5.2 - Comparação dos resultados campânula-ambientais

Os resultados em situações controladas e em ambientes de convívio humano mostraram uma diferença significativa. A maior eficiência para a calibração na campânula concorda com outros resultados onde foi verificado que a presença de densidade maior de traços aumenta a eficiência do detector (ver seção seguinte). Tal diferença também pode ser explicada com base nas condições a que os dois conjuntos de detectores estiveram expostos. A calibração do CR39, conforme visto anteriormente, é dependente da distância máxima efetiva (DME) para efeito do “plate-out”, assim diferenças nas condições ambientais que afetam a DME podem influenciar, em diferentes graus, as respostas dos dois detectores. Por outro lado, nas exposições em residências podem ocorrer mudanças no fator de equilíbrio entre a atividade de ^{222}Rn e as atividades de seus filhos, o que pode afetar de modo diferente as respostas do LR115 e do CR39, porém na calibração a

concentração de ^{222}Rn e filhos foi determinada sempre com o CR39.

A diferença nos resultados também pode ser creditada a erros na identificação dos traços. Embora o critério de identificação tenha sido definido de forma a minimizar a subjetividade do observador, em situações distintas como as encontradas nessas experiências pode-se usar rigor maior ou menor para identificação dos traços. Por exemplo, no caso da exposição na campânula, onde há todos os tipos de traços e em grandes quantidades, os traços, que por suas características (ângulo de incidência próxima ao ângulo crítico, ou produzidos por partículas de baixa energia) não deveriam ser contados, podem ser considerados por ocorrerem em grande quantidade, fato que pode produzir efeito inverso em baixas quantidades. Além disso, a produção de figuras de ataque, que influenciam a contagem dos traços, não deve ocorrer da mesma forma na campânula e nos ambientes, podendo assim contribuir para a diferença nos resultados.

Outro ponto a ser destacado, ainda com relação às diferenças de condições de exposição, diz respeito à estabilidade dos detectores à exposição em ambientes realistas. No CR39 por exemplo, os traços dos detectores expostos em ambientes apresentaram áreas maiores que aqueles expostos na campânula (os cortes nos histogramas de S apresentaram valores médios de $262\ \mu\text{m}^2$ nas exposições ambientais enquanto os expostos na campânula apresentaram essa média em $125\ \mu\text{m}^2$). Essas diferenças nas características dos traços, atribuídas às condições ambientais, podem também contribuir para diferenças nos fatores de calibração em cada situação. Com relação à estabilidade do LR115 à exposição no ambiente, uma eficiência menor desse detector poderia ser devido a uma menor resistência às condições ambientais e, conseqüentemente, uma menor integridade do traço latente (“fading”).

Embora haja diferenças entre os fatores de calibração do LR115 em condições distintas, os resultados dentro de cada conjunto de dados mostraram coerência interna. A análise da qualidade dos ajustes foi realizada pelo critério do qui-quadrado reduzido (χ^2_{red}). Os valores de χ^2_{red} encontrados (1,6 para a calibração

na campânula e 1,7 para a calibração em residências) indicam que as retas ajustadas estão adequadas aos pontos experimentais nos dois casos. Entretanto, na calibração efetuada na campânula esse resultado só é aceitável experimentalmente porque foi desconsiderado o resultado do detector exposto por um dia. Conforme se verificou anteriormente, essa desconsideração pode ser feita devido à baixa densidade de traços registrada nesse detector, que é comparável à densidade dos detectores não expostos.

Essas considerações permitem concluir que, levando em consideração as limitações da calibração do CR39 e sua validade em condições onde a DME não ultrapasse 3 cm, é possível o uso do modelo de calibração para o LR115 aqui proposto e sua aplicação em medidas da concentração de ^{222}Rn e filhos em ambientes fechados, onde é mais indicado o uso do fator $\varepsilon = (0,43 \pm 0,03)$ cm encontrado em situações realistas.

5.3 - Calibração em fonte de ^{241}Am

Do estudo das características do detector LR115 (capítulo 3), em particular o estudo da linearidade de sua resposta (gráfico 3.5), é possível obter uma eficiência absoluta de detecção do LR115 a partículas alfa. O gráfico 3.5 mostra a densidade de traços em função do tempo de exposição dos detectores à fonte de ^{241}Am . Sabendo-se a atividade superficial e assumindo a fonte como pontual (Bel-74, Wil-66) pode-se estimar a densidade de partículas alfa que chegam à área de interesse no detector. Da razão entre a densidade de traços medida e a densidade de partículas alfa que chega ao detector obtém-se a eficiência absoluta de detecção. O resultado mostra uma eficiência média de 88%, variando desde 75% para baixas densidades até 99% para as altas. Uma comparação imediata entre esse resultado e aqueles obtidos na campânula e nos ambientes não pode ser feita visto que as condições de irradiação são completamente diferentes. Entretanto é interessante notar que, assim como nas calibrações anteriores, nesse caso o detector também

mostra uma sensibilidade maior para altas densidades de traços, caracterizando um comportamento supralinear para exposições muito altas.

5.4 - Aplicação

O conhecimento do fator de calibração em ambientes de convívio humano permite a determinação da concentração de ^{222}Rn e filhos nesses ambientes. Com o intuito de exemplificar o procedimento de medida aqui desenvolvido, foram feitas exposições em outros ambientes para a determinação das concentrações presentes.

As condições para exposição foram as mesmas descritas para a calibração dos detectores em ambientes de convívio humano: aproximadamente seis meses de exposição (entre fevereiro e agosto de 1999) e dois detectores expostos em cada ambiente. A tabela 5.3 mostra os resultados obtidos para tais exposições.

A concentração de emissões alfa foi obtida simplesmente a partir da medida da densidade de traços presentes nos detectores expostos, usando para tal determinação a equação 5.1, onde $\varepsilon = (0,43 \pm 0,03)$ cm.

Residência	t_e dias	ρ_{LR115} cm^{-2}	A			
			$\text{cm}^{-3}\text{d}^{-1}$		Bq/m^3	
1	168	1424 $\pm$ 85	19,7 $\pm$ 1,8		228 $\pm$ 21	
2	180	1131 $\pm$ 81	14,6 $\pm$ 1,5		169 $\pm$ 17	
3	180	533 $\pm$ 55	6,9 $\pm$ 0,9		80 $\pm$ 10	
4	173	1427 $\pm$ 85	19,2 $\pm$ 1,8		222 $\pm$ 21	
5	168	132 $\pm$ 43	1,8 $\pm$ 0,6		21 $\pm$ 7	

Tabela 5.3: Resultados para as concentrações de ^{222}Rn e filhos medidas em ambientes fechados. As concentrações (A) foram determinadas a partir das densidades de traços no LR115 (ρ_{LR115}) e pela equação 5.1, onde $\varepsilon = (0,43 \pm 0,03)$ cm. Na contagem dos traços foram considerados 400 ou 500 campos de cada lâmina.

Examinando os resultados obtidos pode-se destacar que:

- O tempo de exposição de aproximadamente 6 meses é adequado para as medidas de interesse.

- Devido à baixa concentração existente na residência 5 (trata-se de um apartamento) verifica-se uma alta incerteza relativa (33%). Nessas situações deve-se aumentar a quantidade de traços contados (através do aumento do número de campos estudados), tanto no detector exposto quanto no usado para descontar o fundo, para reduzir-se a incerteza no resultado final. Deve-se notar também que, as incertezas relativas nos resultados das concentrações são limitadas pelo valor de 7% da incerteza no fator de calibração.
- Fazendo-se uma hipótese de que a taxa de emissões alfa é aproximadamente $1,8 \times A_0$ (Un-93), onde A_0 é a atividade de ^{222}Rn , pode-se comparar os resultados obtidos com os da literatura que, em geral, são dados somente pela concentração de ^{222}Rn . Percebe-se que os níveis encontrados são semelhantes aos de países onde há legislações rigorosas para o controle da quantidade de ^{222}Rn em residências (Ri-98).

CAPÍTULO 6

CONCLUSÕES E CONSIDERAÇÕES FINAIS

O desenvolvimento da metodologia, baseada no uso de detectores plásticos LR115, para detecção de ^{222}Rn e filhos em ambientes fechados levando em consideração os efeitos do “plate-out”, proposta inicial deste trabalho, demonstrou a aplicabilidade do método e a validade da calibração em relação a outros métodos. Obteve-se o fator de $(0,43 \pm 0,03)$ cm para a relação entre a densidade de traços e a concentração de emissões alfa.

Algumas características do detector LR115, obtidas neste trabalho, mostraram correspondência com outros resultados. A faixa de energia de partículas alfa à qual o detector é sensível foi estabelecida entre 0,5 e 4 MeV quando uma fonte praticamente monoenergética e colimada é utilizada. Esta faixa é mais ampla que as observadas na literatura.

O detector apresentou linearidade em sua resposta até densidades moderadas (2×10^4 traços por centímetro quadrado) que incluem as densidades geralmente encontradas para monitoração de ^{222}Rn e filhos em residências.

Uma supralinearidade na resposta foi verificada para altas densidades de traços, tanto para exposições em fonte de ^{241}Am quanto em atmosfera de ^{222}Rn e filhos, indicando possivelmente um fenômeno intrínseco ao sistema de detecção como um todo (plástico e observador).

Foi também verificada a importância de um pré-estabelecimento do critério de contagem para a leitura “manual” dos traços no detector LR115. Esse critério permite minimizar as incertezas na identificação dos traços e tenta formalizar um caráter mais objetivo para esta identificação, porém, cada observador

deve planejar previamente a definição de seu critério devido à subjetividade sempre presente na identificação dos traços.

Os resultados do ataque químico se mostraram reprodutíveis após o estabelecimento do procedimento para a revelação dos traços. O levantamento da curva de ataque, considerando o critério de identificação definido, mostrou que a densidade de traços se manteve aproximadamente constante para os tempos de revelação estudados, fato que permitiu escolher o tempo de ataque que otimiza a visualização “manual” dos traços.

A estabilidade e integridade do detector durante o ataque químico são garantidas se os parâmetros de ataque são devidamente controlados, entretanto, foi confirmado que podem ocorrer danos ao detector se outros fatores não forem observados, como por exemplo, a presença de estruturas físicas próximas à superfície do detector ou sua sobreposição durante o ataque químico. O detector mostrou-se também confiável quanto à sua estabilidade em exposições ambientais e prolongadas.

Nesse trabalho, procurou-se considerar os efeitos do “plate-out” (feito através das medidas das concentrações com CR39). Ainda que o LR115 minimize os efeitos do “plate-out” sobre sua superfície, não foram descartadas as influências impostas pelo fenômeno sobre a distribuição espacial dos filhos do ^{222}Rn próximo às estruturas. O fator de calibração obtido tem limitações semelhantes às aquelas descritas para o método usado para as medidas com CR39, ou seja, pouca dependência com as condições ambientais e validade restrita para situações onde a distância máxima efetiva (DME) dos efeitos do “plate-out” não ultrapasse 3 cm.

Constatou-se também uma diferença significativa entre os valores para os fatores de calibração obtidos, a partir desse modelo, em duas situações distintas: atmosfera com altas concentrações de ^{222}Rn e filhos e exposições ambientais realistas. Conforme visto no estudo da linearidade do LR115 em exposição ao ^{241}Am , há evidências de resposta supralinear para altas densidades de traços. Esses resultados precisam de maiores estudos a fim de certificar se se trata de uma

característica do LR115 ou da validação do método de calibração em situações de altas densidades. Tais diferenças confirmam que, para monitoração de ^{222}Rn e filhos em ambientes de convívio humano, há a necessidade de calibração em ambientes realistas.

As medidas efetuadas em cinco residências, como aplicação do método, demonstraram que pode haver em São Paulo níveis da mesma ordem de grandeza que em outros países, onde há legislação rigorosa para se reduzir a quantidade de ^{222}Rn em residências.

Outro ponto a notar é que os resultados alcançados nesse trabalho se referem a medidas da concentração de emissões alfa, incluindo aí a quantidade de ^{222}Rn e filhos em conjunto. Para o levantamento de doses em ambientes devido à contaminação ambiental por ^{222}Rn e filhos, um outro passo deve ser dado a fim de se estimar a atividade somente dos filhos do ^{222}Rn , que são os verdadeiros responsáveis pela dose absorvida nos tecidos humanos.

SUGESTÕES DE TRABALHOS FUTUROS

- Estudo da supralinearidade apresentada pelo LR115 em situações que causam grande densidade de traços.
- Comparação do método desenvolvido com outras técnicas em uso em diversas situações de irradiação.
- Extensão da metodologia para detecção isolada de ^{222}Rn e estimativa do fator de equilíbrio, com objetivo de se avaliar a concentração dos filhos do ^{222}Rn .
- Aplicação do método para levantamento extensivo das condições de contaminação ambiental devido a ^{222}Rn e filhos.
- Uso dessa metodologia em conjunto com outras técnicas que avaliam a dose gama e beta para o levantamento das doses a que a população está exposta em ambientes fechados.

REFERÊNCIAS BIBLIOGRÁFICAS

Ab-81 - F. Abu-Jarad, C. K. Wilson & J. H. Fremlin - *"The registration of the alpha-particles from polonium isotopes plated-out on the surface of the plastic detectors LR-115 and CR-39"* - Nucl. Tracks **5** (3), pp.285-290, 1981.

Ai-85 - M. J. Aitken - *"Thermoluminescence dating"* - Academic Press, 1985.

Be-55 - H. A. Bethe & J. Ashin - *"Passage of radiation through matter"* - from *"Experimental nuclear Physics"* volume 1 - edited by E. Segrè - John Wiley & Sons, 1955.

Bel-74 - M. Belluscio, R. De Leo, A. Pantaleo & A. Vox - *"Effects of finite dimensions in source-detector solid-angle evaluation"* - Nucl. Instrum. Meth. **114**, pp.145-147, 1974.

Bi-88 - G. Bigazzi, J. C. Hadler N. & S. R. Paulo - *"On indoor radon contamination monitoring with plastic nuclear track detectors: the influence of plate-out effect"* - Nucl. Tracks Radiat. Meas. **15** (1-4), pp.539-542, 1988.

Boc-98 - F. Bochicchio, F. Forastiere, D. Abeni & E. Rapiti - *"Epidemiologic studies on lung cancer and residential exposure to radon in Italy and other countries"* - Radiat. Prot. Dosim. **78** (1), pp.33-38, 1998.

Bos-98 - N. Boschi - *"A risk management strategy for radon: the US experience"* - Radiat. Prot. Dosim. **78** (1), pp.23-26, 1998.

Ca-78 - B. G. Cartwright, E. K. Shirk & P. B. Price - *"A nuclear-track-recording polymer of unique sensitivity and resolution"* - Nucl. Instrum. Meth. **153**, pp.457-460, 1978.

Ch-93 - L. T. Chadderton, S. A. Cruz & D. W. Fink - *"Theory for latent particle tracks in polymers"* - Nucl. Tracks Radiat. Meas. **22** (1-4), p.29-38, 1993.

Co-83 - B. L. Cohen & E. S. Cohen - *"Theory and practice of radon monitoring with charcoal adsorption"* - Health Phys. **45** (2), pp.501-508, 1983.

Co-86 - B. L. Cohen & R. Nason - *"A diffusion barrier charcoal adsorption collector for measuring Rn concentrations in indoor air"* - Health Phys. **50** (4), pp.457-463, 1986.

Co-95 - B. L. Cohen - *"Test of the linear-no threshold theory of radiation carcinogenesis for inhaled radon decay products"* - Health Phys. **68** (2), pp.157-174, 1995.

Com-88 - Comissão Nacional de Energia Nuclear - *"Diretrizes básicas de radioproteção"* - CNEN NE-3.01. Resolução CNEN 12/88, publicada no D.O.U. de 01 de agosto de 1988.

Da-86 - A. Damkjaer - *"The efficiency of cellulose nitrate LR 115 II for alpha particle detection"* - Nuclear Tracks **12** (1-6), pp.295-298, 1986.

Do-92 - R. Doll - *"Risks from radon"* - Radiat. Prot. Dosim. **42** (3), pp.149-153, 1992.

Du-84 - S. A. Durrani & P. F. Green - *"The effect of etching conditions on the response of LR115"* - Nucl. Tracks Radiat. Meas. **8** (1-4), pp.21-24, 1984.

El-98 - A. El-Hussein, A. A. Ahmed & A. Mohammed - "*Radiation dose to the human respiratory tract from inhalation of radon-222 and its progeny*" - Appl. Radiat. Isot. **49** (7), pp.783-790, 1998.

En-80 - W. Enge - "*Introduction to plastic nuclear track detectors*" - Nucl. Tracks **4** (4), pp.283-308, 1980.

Fa-84 - M. Fantini - "*Optimization of etching parameters when processing cellulose nitrate detectors for routine operations*" - Nucl. Tracks Radiat. Meas. **8** (1-4), pp.25-26, 1984.

Fl-75 - R. L. Fleischer, P. B. Price & R. M. Walker - "*Nuclear tracks in solids: principles and applications*" - Berkeley: University of California Press, 1975.

Fl-80 - R. L. Fleischer, W. R. Giard, A. Mogro-Campero, L. G. Turner, H. W. Alter & J. E. Gingrich - "*Dosimetry of environmental radon: methods and theory for low-dose, integrated measurements*" - Health Phys. **39** (December), pp.957-962, 1980.

Fl-88 - R. L. Fleischer - "*Radon in the environment - opportunities and hazards*" - Nucl. Tracks Radiat. Meas. **14** (4), pp.421-435, 1988.

Fr-93 - L. Frantin - "*Dosimetria de nêutrons*". Tese de doutorado, Instituto de Física da Universidade de São Paulo, IFUSP, 1993.

Ge-84 - A. C. George - "*Passive, integrated measurement of indoor radon using activated Carbon*" - Health Phys. **46** (4), pp.867-872, 1984.

Ge-96 - A. C. George - "*State-of-the-art instruments for measuring radon/thoron and their progeny in dwellings - a review*" Health Phys. **70** (4), pp.451-463, 1996.

Ha-91 - J. C. Hadler N., P. J. Iunes, A. M. Osorio & S. R. Paulo - "*Relationship between track size and energy for alpha particles in CR-39*" - Nucl. Tracks Radiat. Meas. **19** (1-4), pp. 313-317, 1991.

Ha-94 - J. C. Hadler N. & S. R. Paulo - "*Indoor radon daughter contamination monitoring: the absolute efficiency of CR-39 taking into account the plate-out effect and environmental conditions*" - Radiat. Prot. Dosim. **51** (4), pp.283-296, 1994.

Ha-95 - J. C. Hadler N., P. J. Iunes & S. R. Paulo - "*A possibility of monitoring indoor radon daughters by sing CR-39 as an alpha-spectrometer*" - Radiat. Meas. **25** (1-4), pp.609-610, 1995.

Ho-94 - W. Hofmann - "*Lung cancer risk at low doses: what can cellular radiobiology tell us?*" - Radiat. Prot. Dosim. **56** (1-4), pp.90-103, 1994.

Ii-88 - T. Iida, Y. Ikebe, T. Hattori, H. Yamanishi, S. Abe, K. Ochifuji & S. Yokoyama - "*An eletrostatic integrating ²²²Rn monitor with cellulose nitrate film for environmental monitoring*" - Health Phys. **54** (2), pp.139-148, 1988.

Il-89 - R. Ilic - "*Damage track detectors for alpha particle registration - track formation and detector processing*" - Proceedings of the International Workshop on Radon Monitoring in Radioprotection, Environmental Radioactivity and Earth Science, ICTP,

Triest, Italy, April 3-14, World Scientific Publishing. Co. Pte. Ltd, pp.133-144, 1989.

In-91 - International Commission on Radiological Protection - “*1990 Recommendations of the International Commission on Radiological Protection*” - ICRP publication 60. Pergamon Press, 1991.

Ja-88 - W. Jacobi - “*Lung cancer risk from environmental exposure to radon daughters. ICRP publication 50*” - Radiat. Prot. Dosim. **24** (1-4), pp.19-22, 1988.

Jo-81 - G. Jönsson - “*The angular sensitivity of Kodak LR-film to alpha particles*” - Nucl. Instrum. Meth. **190**, pp.407-414, 1981.

Jo-93 - G. Jönsson - “*Statistics and error considerations at the application of SSNTD-Technique in radon measurement*” - Nucl. Tracks Radiat. Meas. **22** (1-4), pp.347-349, 1993.

Kh-93 - H. A. Khan, I. E. Qureshi & M. Tufail - “*Passive dosimetry of radon and its daughters using solid state nuclear track detectors (SSNTDs)*” - Radiat. Prot. Dosim. **46** (3), pp.149-170, 1993.

Le-98 - J. K. C. Leung, M. Y. W. Tso & C. W. Ho - “*Behaviour of ^{222}Rn and its progeny in high-rise buildings*” - Health Phys. **75** (3), pp.303-312, 1998.

Ma-88 - W. H. Marlow - “*Electrical charge in radon daughter deposition : a critical review*” - Radiat. Prot. Dosim. **24** (1-4), pp.211-215, 1988.

Me-92 - J. Metters - “*Setting radon in context*” - Radiat. Prot. Dosim. **42** (3), pp.159-164, 1992.

Na-80 - H. Nakahara, H. Kudo, F. Akiba & Y. Murakami - “*Some basic studies on the absolute determination of radon concentration in the air by a cellulose nitrate track detector*” - Nucl. Instrum. Meth. **171**, pp.171-179, 1980.

Ni-99 - V. A. Nikolaev & R. Ilic - “*Etched track radiometers in radon measurements: a review*” - Radiat. Meas. **30**, pp.1-13, 1999.

Nik-92 - D. Nikezic, P. Marckovic & D. B. Uzarov - “*Calculating the calibration coefficient for radon measurements with the bare LR 115-II track detector*” - Health Phys. **62** (3), pp.239-244, 1992.

Nuc-98 - C. Nuccetelli & F. Bochicchio - “*The thoron issue: monitoring activities, measuring techniques and dose conversion factors*” - Radiat. Prot. Dosim. **78** (1), pp. 59-64, 1998.

Pa-91 - S. R. Paulo - “*Dosimetria ambiental de ^{222}Rn e filhos: medida da eficiência absoluta do CR-39 levando-se em conta os efeitos do plate-out e fatores ambientais*” - Tese de doutorado. Instituto de Física Gleb Wataghin da Universidade de Campinas, UNICAMP, 1991.

Pap-84 - C. Papastefanou, M. Manolopoulou & S. Charalambous - “*Exposure from the radioactivity in building materials*” - Health Phys. **47** (5), pp.775-783, 1984.

Pl-90 - J. Planinic & Z. Faj - *"Radon dose assessment by the LR-115 detector"* - Nucl. Tracks and Meth. **A292**, pp.176-178, 1990.

Pl-92 - J. Planinic - *"The efficiency and angular sensitivity of the LR-115 nuclear track detector to alpha particles"* - Nucl. Tracks and Meth. **B71**, pp.95-98, 1992.

Ra-86 - A. Rannou , L. Jeanmaire , G. Tymen , A. Mouden , E. Naour , N. Parmentier & H. Renouard - *"Use of cellulose nitrate as radon and radon daughters detectors for indoor measurements"* - Nucl. Tracks **12** (1-6), pp.747-750, 1986.

Ri-98 - S. Risica - *"Legislation on radon concentration at home and at work"* - Radiat. Prot. Dosim. **78** (1), pp.15-21, 1998.

So-86 - M. Sohrabi & S. Mahdi - *"Background heat treatment studies in LR-115"* - Nucl. Tracks **12** (1-6), pp.149-152, 1986.

St-87 - J. Stejny - *"The polymer physics of CR-39 - The state of understanding"* - Radiat. Prot. Dosim. **20** (1-2), pp.31-36, 1987.

Ste-88 - F. Steinhäusler - *"Radon spas: source term, doses and risk assessment"* - Radiat. Prot. Dosim. **24** (1-4), pp.257-259, 1988.

Str-84 - E. Stranden - *"Thoron (^{220}Rn) daughter to Radon (^{222}Rn) daughter ratios in thorium-rich areas"* - Health Phys. **47** (5), pp.785-785, 1984.

Su-88 - T. Sutej, R. Ilic & M. Najzer - *"Response of track-etch dosimeters to environmental radon"* - Nucl. Tracks Radiat. Meas. **15** (1-4), pp.547-550, 1988.

Sw-83 - G. A. Swedjemark - *"The equilibrium factor F"* - Health Phys. **45** (2), pp.453-462, 1983.

To-90 - L. Tommasino - *"The present state of track etch processes in radiation dosimetry"* - Radiat. Prot. Dosim. **34** (1-4), pp.1-4, 1990.

To-98 - L. Tommasino - *"Passive sampling and monitoring of radon and other gases"* - Radiat. Prot. Dosim. **78** (1), pp.55-58, 1998.

Un-93 - UNSCEAR - *"Ionizing Radiation: Sources and Biological Effects. Exposure to Natural Radiation Sources"* - New York: United Nations, 1993.

Va-94 - V. R. Vanin & P. Gouffon - *"Tópicos avançados em tratamento estatístico de dados em física experimental"* - Notas de aula, Instituto de Física da Universidade de São Paulo, IFUSP, 1994.

We-92 - G. A. M. Webb - *"Exposure to radon"* - Radiat. Prot. Dosim. **42** (3), pp.191-195, 1992.

Wil-66 - I. R. Williams - *"Monte Carlo calculation of source-to-detector geometry"* - Nucl. Instrum. Meth. **44**, pp.160-162, 1966.

Wi-90 - M. Wilkening - *"Radon in the environment"* - Studies in Environmental Science **40** - Elsevier Science Publishing Company Inc., 1990.