

**UNIVERSIDADE FEDERAL DE PERNAMBUCO
DEPARTAMENTO DE ENERGIA NUCLEAR**

**COMISSÃO NACIONAL DE ENERGIA NUCLEAR
CENTRO REGIONAL DE CIÊNCIAS NUCLEARES DO NORDESTE**

Programa de Pós-Graduação em Tecnologias Energéticas e Nucleares

EDUARDO JORGE PAVÃO ERVEDOSA

**ESTUDO DE PROPRIEDADES ELÉTRICAS DE FILMES
SEMICONDUCTORES DE POLIETILENO COM NEGRO DE
FUMO SUBMETIDOS À RADIAÇÃO GAMA-NÊUTRON**

**Orientador: Prof. Dr. Luiz Antônio
Pereira dos Santos**

**Coorientador: Prof. Dr. Frederico
Antônio Genezini**

Recife

2018

EDUARDO JORGE PAVÃO ERVEDOSA

**ESTUDO DE PROPRIEDADES ELÉTRICAS DE FILMES
SEMICONDUCTORES DE POLIETILENO COM NEGRO DE
FUMO SUBMETIDOS À RADIAÇÃO GAMA-NÊUTRON**

Tese submetida ao Programa de Pós-Graduação em Tecnologias Energéticas e Nucleares, para obtenção do título de Doutor em Ciências, Área de Concentração: Dosimetria e Instrumentação Nuclear.

**Orientador: Prof. Dr. Luiz Antônio
Pereira dos Santos**

**Coorientador: Prof. Dr. Frederico
Antônio Genezini**

Recife

2018

Catálogo na fonte
Bibliotecário Carlos Moura, CRB-4 / 1502

E73e Ervedosa, Eduardo Jorge Pavão.
Estudo de propriedades elétricas de filmes semicondutores de polietileno com negro de fumo submetidos à radiação gama-nêutron. / Eduardo Jorge Pavão Ervedosa. - Recife: O Autor, 2018.
81 f. : il., tabs.

Orientador: Prof. Dr. Luiz Antônio Pereira dos Santos.
Coorientador: Prof. Dr. Frederico Antônio Genezini.

Tese (doutorado) – Universidade Federal de Pernambuco. CTG. Programa de Pós-Graduação em Tecnologias Energéticas e Nucleares, 2018.
Inclui referências bibliográficas.

1. Polietileno. 2. Gama-nêutron. 3. Semicondutores. I. Santos, Luiz Antônio Pereira dos, orientador. II. Genezini, Frederico Antônio, coorientador. III. Título.

CDD 621.48 (21. ed.)

UFPE
BDEN/2018-13

Estudo de propriedades elétricas de filmes semicondutores de polietileno com negro de fumo submetidos à radiação gama-nêutron

Eduardo Jorge Pavão Ervedosa

APROVADA EM:21.02.2018

ORIENTADOR: Prof. Dr. Luiz Antônio Pereira dos Santos

COORIENTADOR: Prof. Dr. Frederico Antônio Genezini

COMISSÃO EXAMINADORA:

Prof. Dr. Luiz Antônio Pereira dos Santos - CRCN-NE/CNEN

Prof. Dr. Carlos Alberto Brayner de Oliveira Lira - DEN/UFPE

Prof. Dr. Marcelo Andrade Filgueiras Gomes - DF/UFPE

Prof. Dr. José Albino Oliveira de Aguiar - DF/UFPE

Prof. Dr. Ramón Enrique Ramayo González - DF/UFRPE

Prof. Dr. Frederico Antônio Genezini - IPEN/CNEN

Visto e permitida impressão

Coordenador(a) do PROTEN/DEN/UFPE

AGRADECIMENTOS

A Deus por me manter firme ao longo do processo, sem desistir, mesmo nas horas mais difíceis;

Ao professor Luiz Antônio e ao professor Frederico Genezini por todo suporte e orientação, sem os quais nunca teria conseguido chegar a esse momento;

À toda minha família e amigos que são a base de tudo e torcem por mim acima de qualquer coisa;

Aos professores Marcelo Gomes, Carlos Brayner e Marcos Pereira, integrantes do meu comitê de acompanhamento, que indicaram com maestria os caminhos possíveis para conclusão deste trabalho;

Aos meus amigos bolsistas do CRCN que acompanharam a luta de todo dia, sempre com palavras de incentivo e encorajamento;

Ao professor Evaldo e todo pessoal do Instituto de Radioproteção e Dosimetria do Rio de Janeiro pela atenção e disponibilidade na irradiação das amostras;

Ao Instituto de Pesquisas Energéticas e Nucleares por todo suporte, acolhimento e ajuda na irradiação das amostras;

Aos professores do Proten que tive a oportunidade de conviver e que me ajudaram com ensinamentos e orientações;

À Kalydja e Nilvânia secretárias da pós-graduação, pela atenção e presteza;

Ao IFPE por me possibilitar o afastamento para capacitação, me permitindo a dedicação em tempo integral ao doutorado;

Ao Departamento de Energia Nuclear.

RESUMO

ESTUDO DE PROPRIEDADES ELÉTRICAS DE FILMES SEMINCONDUTORES DE POLIETILENO COM NEGRO DE FUMO SUBMETIDO À RADIAÇÃO GAMA-NÊUTRON.

Atualmente diversos tipos de materiais semicondutores são estudados por meio de irradiação para fins de alterar suas propriedades elétricas com propósito de aplicações na indústria e medicina. Filmes de compósitos semicondutores de polietileno dopado com *carbon black* (carbono amorfo), os quais tem vasta utilização na indústria eletrônica, foram expostos aos feixes de radiação gama e nêutron para fins de analisar o comportamento elétrico com base no eletromagnetismo clássico, teoria de percolação e seu comportamento fractal. Análises experimentais do comportamento elétrico com base nessas teorias são apresentados como resposta aos feixes de radiação gama, nêutron e gama-nêutron, em irradiadores típicos e em um reator nuclear de pesquisa. A característica de estrutura amorfa do material sofre alterações significativas quando analisado do ponto de vista de alteração do expoente fractal tanto pelos feixes de radiação gama como pelos nêutrons, embora efeitos iniciais distintos ocorram para cada tipo de irradiação. O estudo conclui que essa forma de análise do material pode ser utilizada como estimador do fluxo de partículas durante o processo de irradiação se o limite de saturação do efeito não for alcançado.

Palavras-chave: polietileno. gama-nêutron. semicondutores.

ABSTRACT

Currently several types of semiconductor materials are studied by means of irradiation for changing their electrical properties for the purpose of applications in industry and medicine. Polyethylene doped with Carbon black it is a semiconductor composite film (amorphous material), which is widely used in the electronics industry. The films were exposed to gamma and neutron beams for analyzing electrical behavior based on classical electromagnetism, percolation theory and their fractal behavior. Experimental analysis of electrical behavior based on these theories is presented as a response to gamma, neutron and gamma-neutron radiation in typical irradiators and in a nuclear research reactor. The amorphous structure characteristic of the material has significant changes if analyzed from the point of view of alteration of the fractal exponent by both gamma and neutron beams, although distinct initial effects occur for each type of irradiation. The study concludes that such a method of analysis can be used as an estimator of particle flow during the irradiation process if the saturation limit of the effect is not reached.

Key Words: polyethylene. gamma-neutron. semiconductors.

LISTA DE ILUSTRAÇÕES

Figura 1 – Gráfico da secção de choque de espalhamento do átomo de a) hidrogênio e b) carbono em função da energia do nêutron incidente.	18
Figura 2 – Bandas de energia permitidas, separadas por bandas proibidas.	28
Figura 3 – Energias permitidas para um potencial periódico.	28
Figura 4 – Variação da condutividade elétrica do polietileno de alta densidade em função da concentração do material dopante.	31
Figura 5 – Variação da condutividade elétrica do PELBD em função da concentração de negro de fumo.	32
Figura 6 – Variação da condutividade elétrica dos filmes PET em função da dose de radiação gama.	39
Figura 7 – Condutividade elétrica das amostras em função da dose de radiação gama.	40
Figura 8 – Filmes de carbono de diferentes espessuras.	43
Figura 9 – Contato elétrico nos filmes de carbono.	44
Figura 10 – Contato elétrico nos filmes de carbono de 500 nm.	45
Figura 11 – Contato elétrico nos filmes de polietileno.	46
Figura 12 – Posições de irradiação do reator IEA-R1.	47
Figura 13 – Tubo de alumínio para irradiação das amostras.	47
Figura 14 – Amostra de filmes de polietileno com substrato de PMMA.	49
Figura 15 – Amostras de polietileno com o contato elétrico.	50
Figura 16 – Amostra irradiadas no IRD.	51
Figura 17 – Local de Irradiação das amostras no IRD.	51
Figura 18 – Irradiador gama GC-220.	52
Figura 19 – Amostra sem o substrato de PMMA.	53
Figura 20 – Amostra cortada em tiras.	53
Figura 21 – Envelope contendo as amostras.	55
Figura 22 – Resistência elétrica dos filmes ao longo de 83 dias.	59
Figura 23 – Variação média da resistência das amostras: a) área de 196mm ² , b) área de 100mm ² , c) em tiras de 3 cm.	65
Figura 24 – Amostra deteriorada pós-irradiação.	66

Figura 25 – Variação média da resistência das amostras de diferentes áreas.....	67
Figura 26 – Variação média da resistência das amostras de tiras em função do tempo de exposição.....	69
Figura 27 – Variação média em tiras em função do tempo total de exposição.....	70
Figura 28 – Gráfico da resistência elétrica em função da aresta para a irradiação com gama nas doses: a) 19kGy; b) 60kGy ; c) 200kGy; d) 1100kGy.....	72
Figura 29 – Gráfico da resistência em função da aresta para os tempos de irradiação de: a) 20min; b) 40min; c) 60min.....	74

LISTA DE TABELAS

Tabela 1 – Velocidades mais prováveis dos nêutrons térmicos	15
Tabela 2 – Reações nucleares induzidas por nêutrons.....	17
Tabela 3 – Tempo de irradiação das amostras de polietileno fixadas com fita adesiva.....	48
Tabela 4 – Tempo de irradiação das amostras de polietileno sem contato elétrico	56
Tabela 5 – Variação da resistência elétrica das amostras produzidas via sputtering.	58
Tabela 6 – Valores das resistências elétricas pós-irradiação com nêutrons rápidos	60
Tabela 7 – Valores das resistências elétricas pós-irradiação com nêutrons térmicos.	61
Tabela 8 – Resistências elétricas pós-irradiação das amostras com aresta 14mm.....	62
Tabela 9 – Resistências elétricas pós-irradiação das amostras com aresta 10mm.....	62
Tabela 10 – Resistências elétricas pós-irradiação das amostras em tiras	63
Tabela 11– Variação média das resistências elétricas em função da dose.	64
Tabela 12 – Valores das resistências elétricas pós-irradiação das amostras quadradas.....	66
Tabela 13 – Valores das resistências elétricas pós-irradiação das amostras em tiras.	68
Tabela 14 – Cálculo de α antes e após a irradiação com gamma.....	71
Tabela 15 – Cálculo de α antes e após a irradiação com nêutrons.....	73

SUMÁRIO

1 INTRODUÇÃO	12
2 REVISÃO DE LITERATURA.....	14
2.1 Nêutrons.....	14
2.1.1 Introdução	14
2.1.2 Características e Classificação dos Nêutrons	14
2.1.3 Reatores Nucleares como Fonte de Nêutrons	16
2.1.4 Interação de Nêutrons com a Matéria	16
2.1.4.1 Interação de Nêutrons Lentos com a Matéria	17
2.1.4.2 Interação de Nêutrons Rápidos com a Matéria	17
2.1.5 Secção de Choque	19
2.1.6 Detectores de Nêutrons	21
2.2 Condutividade Elétrica	24
2.2.1 Modelo do Elétron Livre.....	24
2.2.2 Teoria de Bandas dos Sólidos	26
2.3 Filmes Finos de Carbono	29
2.3.1 Introdução	29
2.3.2 Filmes Finos de Polietileno com Carbon Black.....	30
2.3.3 Condutividade Elétrica em Filmes Finos de Carbono	32
2.3.4 Resistores Fractalizados e Caminhada Aleatória	33
2.3.5 Efeito da Irradiação de Filmes Finos, de Materiais Poliméricos, em um Reator Nuclear	36
2.3.6 Efeito da Irradiação nas Propriedades Elétricas de Filmes de Materiais Poliméricos	38
3 MATERIAL E MÉTODOS	42
3.1 Testes Preliminares	42
3.1.1 Filmes de Carbono Produzidos Via Sputtering na Universidade Federal de Alagoas	42
3.1.1.1 Filmes de 7 mm por 7 mm	42
3.1.1.2 Filmes de 10 mm x 10 mm e 14 mm x 14 mm	44
3.1.2 Filmes de Polietileno	45
3.2 Irradiação com Fonte de Nêutrons e Gama	49
3.2.1 Irradiação com Fonte de Nêutrons	49
3.2.2 Irradiação com Radiação Gama	52
3.3 Irradiação com Filmes de Polietileno sem Contato Elétrico no IPEN.....	55
3.4 Análise da Relação da Resistência Elétrica com a Dimensão das Amostras.	56
4 RESULTADOS	58
4.1 Testes Preliminares	58
4.1.1 Irradiação de Filmes de Carbono Produzidos Via Sputtering.....	58
4.1.1.1 Irradiação de Filmes 7 mm x 7 mm	58
4.1.1.2 Filmes 10 mm x 10 mm e 14 mm x 14 mm.	59
4.1.2 Irradiação de Filmes de Polietileno	60
4.2 Irradiação com Fonte de Nêutrons e Gama	60
4.2.1 Irradiação com Fonte de Nêutrons	60
4.2.2 Irradiação com Radiação Gama	62

4.3	Irradiação com Filmes de Polietileno sem Contato Elétrico no IPEN.....	66
4.4	Análise da Relação da Resistência Elétrica com a Dimensão das Amostras.	71
5	CONCLUSÃO	75
	REFERÊNCIAS	77

1. INTRODUÇÃO

O uso de nêutrons para investigar as propriedades da matéria começou nos anos 50 com a exploração de todo conhecimento e instrumentação adquiridos, durante os esforços científicos do projeto Manhattan na década anterior. As aplicações eram essencialmente para estudar as propriedades físicas da matéria, em particular as transições de fase, estruturas magnéticas, fônons e principalmente as ligações do átomo de hidrogênio. Contudo nos últimos 20 anos, o uso de nêutrons tem se expandido e suas aplicações alcançam vários campos científicos como bioquímica, biologia, biotecnologia, ciências do meio ambiente e energia (LIANG *et al*, 2009).

A detecção de nêutrons tem papel fundamental no desenvolvimento e aplicação da radiação neutrônica nos diferentes segmentos. Os detectores mais conhecidos são os contadores proporcionais que utilizam o gás ^3He , que possui alta secção de choque para nêutrons térmicos. Seu *design* é simples e mecanicamente estável em uma larga faixa de condições ambientais, além de não degradar-se após anos de uso. O gás ^3He é subproduto do decaimento beta do trítio, usado no armazenamento do arsenal nuclear de alguns países como Estados Unidos e Rússia. Com a diminuição da estocagem do arsenal nuclear desses países, a oferta de gás ^3He tem declinado cada vez mais e em um futuro próximo outros tipos de detectores devem substituir os contadores proporcionais de He^3 utilizados hoje (KOUZES *et al*, 2011).

Neste contexto vários materiais têm sido testados com a finalidade de serem utilizados na detecção de nêutrons e de radiação de um modo geral. Filmes finos de materiais poliméricos, como polietileno, quando submetidos à irradiação em um reator nuclear podem apresentar várias alterações em suas propriedades físicas. Essas alterações podem representar um indício de que esses materiais venham a ser utilizados com esse propósito.

O polietileno, assim como muitos dos polímeros, possui baixa condutividade elétrica, sendo considerado isolante. Contudo sua condutividade pode ser aumentada drasticamente com a adição de dopantes como o *carbon black* ou negro de fumo, um tipo de carbono amorfo. Segundo Modine *et al* (1996), os polímeros com *carbon black*, inclusive o polietileno, à temperatura ambiente, passam a ser semicondutores. Os resultados encontrados

por Tawalbeh *et al* (2005) para o polietileno com *carbon black* mostram que seu comportamento elétrico é ôhmico, com sua resistividade dependendo da concentração de *carbon black*, e que a dependência da sua resistência elétrica com a temperatura é similar a de um semicondutor cristalino típico.

Harrison *et al* (1963) irradiaram vários polímeros, inclusive polietileno e verificaram o aumento da condutividade elétrica quando submetidos a radiação de nêutrons e gama em fontes pulsadas. Radwam (2007) irradiou filmes de polietileno tereftalato (PET) de 40 μ m de espessura com altas doses de radiação gama e observou um aumento da condutividade elétrica em função da dose recebida.

Dessa forma pretende-se analisar a influência da radiação neutrônica e gama por meio do estudo das propriedades elétricas de filmes de polietileno com negro de fumo (*carbon black*), e do comportamento fractal de sua estrutura. Amostras de diferentes formatos serão submetidas em diferentes fluxos a fim de testar a sensibilidade do material à radiação. De acordo com os resultados obtidos espera-se obter um diagnóstico sobre utilização do material na detecção de radiação.

2. REVISÃO DE LITERATURA

2.1 Nêutrons

2.1.1 Introdução

Idealizados por Rutherford por volta de 1920 e descobertos pelo ganhador do prêmio Nobel de 1935, James Chadwick, em 1932, os nêutrons são partículas elementares constituintes do núcleo atômico e sua descoberta foi de fundamental importância no desenvolvimento da teoria atômica atual. Desde sua descoberta, a importância e o número de aplicações dos nêutrons e da radiação neutrônica nas diferentes áreas cresceu de forma exponencial. Na área energética têm-se as usinas nucleares, na medicina têm-se a produção de radiofármacos e terapia. Na pesquisa por meio da técnica de difração de nêutrons, por exemplo, utilizadas em mineralogia, física da matéria condensada, química, ciência dos materiais, entre outras varias aplicações (LIANG *et al*, 2009).

2.1.2 Características e Classificação dos Nêutrons

Os nêutrons possuem massa de repouso de $1,675 \times 10^{-27}$ kg, que é praticamente igual a massa do próton, sendo menos de 1% maior. Não possuem carga elétrica, o que faz com que a forma de interação desde tipo de partícula com a matéria seja diferente das demais, uma vez que não interagem com o campo eletromagnético dos átomos. Apesar de não ter carga líquida, tem momento de dipolo magnético de $-1,931\mu_N$, onde μ_N é o magneton de Bohr, e, assim como todos os férmions, possui spin semi-inteiro. Os nêutrons são estáveis apenas no núcleo atômico, pois, quando livres, têm vida média de 14,7 min e decaem em um próton, um elétron e um antineutrino (AHMED, 2007).

Os nêutrons podem ser classificados quanto à sua energia cinética e, embora exista divergência entre os limites exatos de cada um dos intervalos atribuídos, de forma ampla é útil classifica-los desta forma.

São considerados térmicos os nêutrons com energia cinética inferior a 0,4 eV. Nessa condição, o comportamento dos nêutrons assemelha-se ao comportamento das moléculas em um gás e pode assim ser descrito pela teoria cinética dos gases (KAPLAN, 1983). Quando as condições de equilíbrio são alcançadas, os nêutrons seguem a distribuição de Maxwell de velocidades indicada na equação 1.

$$n(v)dv = 4\pi \cdot \left(\frac{m}{2\pi kT}\right)^{3/2} \cdot v^2 \cdot e^{-\frac{mv^2}{2kT}} dv \quad (1)$$

Na equação acima, n é o número total de nêutrons por unidade de volume;

$n(v) dv$ é o número de nêutrons por unidade de volume com velocidade entre v e $v + dv$;

m é a massa do nêutron;

k é a constante de Boltzmann que vale $8,6 \times 10^{-5}$ eV/K ou $1,381 \times 10^{-23}$ J/K;

T é a temperatura em Kelvin.

Por meio da distribuição de Maxwell é possível calcular a velocidade mais provável dos nêutrons para cada valor de temperatura. Alguns dos valores estão indicados na tabela 1.

Tabela 1 – Velocidades mais prováveis dos nêutrons térmicos.

Temperatura (°C)	Velocidade mais provável (m/s)	Energia correspondente a velocidade mais provável (eV)
0	2120	0,0235
20	2200	0,0252
27	2220	0,0258
127	2570	0,0344
227	2870	0,0431
327	3140	0,0517
427	3400	0,0603
527	3630	0,0689
727	4060	0,0861

Fonte: KAPLAN (1983 Modificado).

Quando possuem energia entre 0,4 eV e 200 keV os nêutrons são classificados como intermediários; já para energias superiores a 200 keV, os nêutrons são denominados rápidos (IAEA, 1985). Para energias superiores a 10 MeV, os nêutrons podem ser considerados relativísticos por suas altas velocidades que são frações consideráveis da velocidade da luz.

2.1.3 Reatores Nucleares como Fonte de Nêutrons

Os reatores nucleares são a fonte mais abundante de nêutrons. Ao interagir com núcleos mais pesados como ^{235}U e ^{239}Pu , o nêutron pode provocar a fissão desses elementos em dois fragmentos menores. Além da grande quantidade de energia liberada em uma única fissão, cerca de 200 MeV, 2 ou 3 nêutrons podem ser liberados. Em um reator comum de pesquisa de potência 10 MW ocorrem, em média, 3×10^{17} fissões por segundo, o que totaliza $7,5 \times 10^{17}$ nêutrons sendo emitidos no interior do reator a cada segundo. Obviamente, nem todos esses nêutrons estarão disponíveis para experimento devido à grande quantidade de material absorvedor de nêutrons que existe no interior do reator e da fuga dos mesmos (BECKURTS; WIRTZ, 1964).

O espectro de energia dos nêutrons emitidos pela fissão do ^{235}U começa em poucos keV e ultrapassa 10 MeV (TURNER, 2007). Embora seja possível encontrar nêutrons de diferentes energias no espectro de fissão do ^{235}U , em seu surgimento pós-fissão, os nêutrons entram em processo de termalização ao interagir com o meio. Materiais ricos em hidrogênio são usados para servir de moderador de nêutrons em um reator; como água, por exemplo. Após sucessivas colisões com os átomos do meio moderador, os nêutrons perdem energia e tendem a entrar na faixa térmica, o que é essencial para o funcionamento do reator uma vez que nessa faixa podem induzir mais facilmente novas fissões no ^{235}U (CURTISS, 1959).

2.1.4 Interação de Nêutrons com a Matéria

Os nêutrons, por não possuírem carga elétrica, podem percorrer distâncias apreciáveis entre os átomos antes de interagirem com a matéria. Contudo, ao se aproximar do núcleo, o nêutron pode sofrer espalhamento ou ser absorvido pelo núcleo. O tipo de reação predominante depende diretamente da energia que o nêutron possui (TURNER, 2007).

2.1.4.1 Interação de Nêutrons Lentos com a Matéria

Para nêutrons lentos, as interações importantes são o espalhamento elástico e a absorção destes pelo núcleo, que induz uma série de reações importantes na dosimetria de nêutrons. O espalhamento elástico consiste na colisão do nêutron com um núcleo, em geral no estado fundamental, e, após a interação, o núcleo permanece no estado fundamental e a energia cinética do sistema se conserva. Como pouca energia cinética pode ser transferida do nêutron lento para o núcleo, o espalhamento elástico é menos relevante que a absorção para esta faixa de energia (KNOLL, 2000). A absorção de nêutrons térmicos pelos núcleos alvos é de grande importância na dosimetria, pois a radiação emitida pós-absorção gerada nessas reações, em geral, pode ser detectada. Além da fissão do ^{235}U utilizada nos reatores nucleares, as reações mais importantes induzidas por nêutrons são:

Tabela 2 – Reações nucleares induzidas por nêutrons.

$^1\text{H}(\text{n},\gamma)^2\text{H}$	$^3\text{He}(\text{n}, \text{p})^3\text{H}$
$^6\text{Li}(\text{n}, \text{t})^4\text{He}$	$^{10}\text{B}(\text{n},\alpha)^7\text{Li}$
$^{14}\text{N}(\text{n}, \text{p})^{14}\text{C}$	$^{23}\text{Na}(\text{n},\gamma)^{24}\text{Na}$
$^{32}\text{S}(\text{n}, \text{p})^{32}\text{P}$	$^{113}\text{Cd}(\text{n},\gamma)^{114}\text{Cd}$
$^{115}\text{In}(\text{n},\gamma)^{116}\text{In}$	$^{197}\text{Au}(\text{n},\gamma)^{198}\text{Au}$

Fonte: TURNER (2007).

2.1.4.2 Interação de Nêutrons Rápidos com a Matéria

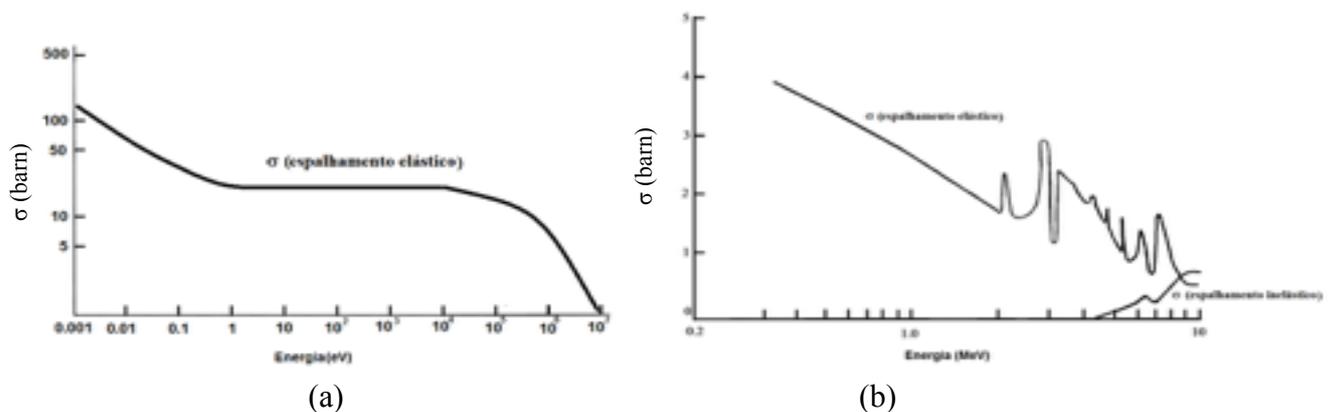
A probabilidade de absorção do nêutron pelo núcleo diminui rapidamente com o aumento da energia do nêutron. A importância do espalhamento aumenta para nêutrons rápidos devido à maior probabilidade de ocorrência e da maior quantidade de energia que pode ser transferida para o núcleo em cada colisão. O espalhamento do nêutron pelo núcleo pode ser elástico ou inelástico. No espalhamento elástico, como mencionado no tópico anterior, a energia cinética do sistema não é alterada; já no espalhamento inelástico ocorre diminuição da energia cinética do sistema e o núcleo alvo é deixado em um estado excitado.

Este excesso de energia é posteriormente liberado em forma de radiação gama. A medida que as colisões ocorrem, os nêutrons vão perdendo energia cinética e se aproximando da faixa térmica gradativamente. De acordo com a conservação da quantidade de movimento da mecânica clássica, núcleos leves como o hidrogênio, são mais eficientes no processo de moderação dos nêutrons do que núcleos mais pesados (KNOLL, 2000).

Nêutrons com energias acima de 100 eV são capazes de provocar danos por colisão direta. Esta é a principal forma de danos em materiais em um reator nuclear principalmente para energias próximas e até 2 MeV. Nêutrons com essa faixa energética dispersam núcleos de forma isotrópica, como colisões elásticas entre esferas rígidas. O espalhamento inelástico também ocorre deixando o núcleo em um estado excitado mas, tem secção de choque bem menor que o a do espalhamento elástico (THOMPSON, 1969).

A figura 1 ilustra a secção de choque para os núcleos de hidrogênio e carbono em função da energia do nêutron incidente.

Figura 1 – Gráfico da secção de choque de espalhamento do átomo de a) hidrogênio e b) carbono em função da energia do nêutron incidente.



Fonte: (a) RAUCH; ZEILINGER (1977 Modificado) e (b) THOMPSON, (1969 Modificado).

2.1.5 Secção de Choque

Como visto anteriormente, nêutrons de uma ampla faixa energética interagem com a matéria. Isso faz com que exista uma grande variedade de fenômenos que resultam desta interação, como absorção, espalhamento elástico e inelástico. A energia cinética do nêutron e o tipo do núcleo alvo são parâmetros que irão definir a probabilidade de ocorrer cada uma das reações. A probabilidade de um nêutron presente em um feixe interagir com o núcleo alvo é conhecida como secção de choque (σ). Assim como existe uma grande variedade de tipos de interações entre o nêutron e a matéria, existem vários tipos de seções de choque. Cada tipo de interação do nêutron pode ser mensurado a partir da secção de choque específica. Alguns tipos de secção de choque variam bruscamente de elemento para elemento, ou até mesmo de isótopo para isótopo, e outras nem tanto, principalmente quando se observam elementos próximos na tabela periódica (HUGHES *et al.*, 1957).

O conceito de secção de choque pode ser visto de forma simples por meio da equação 2:

$$r = \phi \cdot \sigma \cdot N \quad (2)$$

Na equação 2, r representa o número de determinado tipo de interação que ocorre por unidade de tempo;

ϕ representa o fluxo de nêutrons no feixe incidente;

N é o número de núcleos expostos ao feixe;

σ é a secção de choque para o determinado tipo de interação.

A análise dimensional da secção de choque revela que esta é uma área, comumente expressa em barns, onde $1 \text{ barn} = 10^{-24} \text{ cm}^2$. Pode-se considerar r como a taxa de nêutrons do feixe que estão interagindo com os núcleos alvos e reescrever a equação 2 como:

$$\frac{dN}{dt} = -\phi\sigma N \quad (3)$$

O sinal negativo traduz a diminuição de núcleos alvos no decorrer do tempo.

Integrando:

$$N = N_0 \cdot e^{-\phi\sigma N} \quad (4)$$

N é o número de nêutrons presentes no feixe em um instante t e N_0 é o número de nêutrons presentes no feixe inicialmente (CURTISS, 1959).

Cada tipo de interação tem sua secção de choque, σ_i para espalhamento inelástico, σ_e para espalhamento elástico e σ_a para absorção. A secção de choque total é dada pela soma de todas as secções de choques mencionadas (LAMARSH, 1966):

$$\sigma_t = \sigma_i + \sigma_e + \sigma_a \quad (5)$$

Multiplicando-se o número de núcleos por unidade de volume pela secção de choque, tem-se a secção de choque macroscópica:

$$\Sigma = N\sigma \quad (6)$$

Σ é a secção de choque macroscópica.

Somando-se todas as secções de choque macroscópicas de cada uma das interações, obtêm-se a secção de choque macroscópica total, que corresponde à probabilidade de ocorrer qualquer tipo de interação de um nêutron do feixe com o núcleo alvo.

2.1.6 Detectores de Nêutrons

Como os nêutrons são partículas neutras, não produzem ionização diretamente nos detectores. Indiretamente, através de reações nucleares é que são produzidas partículas carregadas. Como o tipo de interação entre o nêutron e o material alvo depende energia do nêutron e da secção de choque do material para a faixa energética desejada, diferentes tipos de detectores podem ser utilizados (BECKURTS; WIRTZ, 1964). Para nêutrons lentos, os detectores mais utilizados são:

Contador Proporcional de Boro;

Cintiladores de Lítio;

Contador Proporcional de ^3He ;

Câmara de Fissão Revestida com Urânio;

Detectores Baseados no Método de Ativação.

O boro, cujo isótopo ^{10}B tem abundância de 19,8%, pode ser utilizado em um contador proporcional ou em uma câmara de ionização na detecção de nêutrons lentos. A reação utilizada em ambas as situações é $^{10}\text{B}(n,\alpha)^7\text{Li}$. O boro 10 possui secção de choque de 4010 barn para absorção de nêutrons lentos, o que o torna bastante eficaz para ser utilizado dessa forma. O produto da reação é altamente ionizante, tanto a partícula alfa como o ^7Li são facilmente detectados. No caso de um contador proporcional, usa-se, em geral, o gás BF_3 e em uma câmara pode-se usar filmes finos de boro, enriquecido com ^{10}B na parte interior do detector (CEMBER; JOHNSON, 2009).

O ^6Li pode ser utilizado em um cintilador através da reação $^6\text{Li}(n,\alpha)^3\text{H}$ que possui secção de choque para absorção de 940 barn. Contudo, possui menor eficiência em discriminar os raios gama do que um contador com gás BF_3 . O iodeto de ^6Li ativado com európio é usado da mesma forma do $\text{NaI}(\text{Tl})$ como cristal cintilador (LEO, 2009).

Contadores proporcionais preenchidos com ^3He são os mais utilizados na detecção de nêutrons. Em comparação com as reações anteriores, o hélio na reação $^3\text{He}(n,p)^3\text{H}$ possui maior secção de choque, por isso estes detectores possuem maior eficiência. O próton gerado ioniza átomos do gás nas suas imediações que, por sua vez, irão ionizar outros átomos em um efeito conhecido como avalanche de Townsend. A carga total coletada será proporcional à energia do nêutron incidente. Como desvantagem, possuem menor discriminação à radiação gama do que os contadores preenchidos com gás BF_3 , além de serem mais caros (KOUZES *et al.*, 2011).

Uma reação de fissão pode ser utilizada na detecção de nêutrons lentos e rápidos. Os núcleos físséis podem ser introduzidos em uma câmara de ionização como gás ou como filmes finos em suas paredes. No caso da detecção de nêutrons lentos, utiliza-se ^{235}U , ^{233}U ou ^{239}Pu devido às altas secções de choque para nêutrons lentos desses materiais. Os produtos da fissão possuem alta energia cinética, cerca de 100 MeV, provocam grande ionização e são facilmente distinguido dos demais. No caso da detecção de nêutrons rápidos pode-se usar o urânio natural (KAPLAN, 1983).

Algumas reações com nêutrons podem produzir um produto radioativo cuja atividade pode ser usada na detecção de nêutrons lentos. Para isso, é necessário que este produto tenha meia-vida conveniente para ser medida, e que o núcleo alvo tenha alta secção de choque para absorção de nêutrons lentos. Alguns dos elementos mais utilizados são: ^{55}Mn , ^{103}Rh , ^{107}Ag , ^{109}Ag , ^{113}In , ^{115}In e ^{197}Au (CURTISS, 1959).

Na detecção de nêutrons rápidos utilizam-se principalmente:

Contadores proporcionais baseados na moderação dos nêutrons;

Detectores baseados no método de ativação por nêutrons rápidos

Detectores baseados no espalhamento de nêutrons

Contadores proporcionais utilizados na detecção de nêutrons lentos possuem baixa eficiência quando utilizados na detecção de nêutrons rápidos devido à diminuição da secção de choque para absorção nessa faixa de energia. Contudo essa eficiência pode ser melhorada envolvendo-se o detector com um material moderador rico em hidrogênio, como parafina ou

polietileno. O nêutron rápido incidente pode perder parte de sua energia cinética inicial antes de interagir com o detector de nêutrons lentos. A espessura do material absorvedor é determinada em função da faixa energética dos nêutrons incidentes e do tipo de material (KNOLL, 2000).

A utilização de materiais moderadores em detectores de nêutrons implica em limitações na informação energética inicial do nêutron incidente e no tempo de detecção, que é relativamente lento nesses casos. Essas limitações podem ser anuladas se os nêutrons rápidos forem postos a induzir reações nucleares sem existência de material moderador. A energia cinética do nêutron incidente pode ser determinada de forma simples, contudo a secção de choque para essas interações com nêutrons rápidos são varias ordens de grandeza menores do que para nêutrons térmicos, e a eficiência na detecção é muito menor. As reações de ativação relevantes na detecção de nêutrons rápidos são ${}^6\text{Li}(n,\alpha){}^3\text{H}$ e ${}^3\text{He}(n,p){}^3\text{H}$ (TURNER, 2007).

O método mais comum para detecção de nêutrons rápidos é baseado no espalhamento elástico de nêutrons por núcleos leves. Cintiladores e contadores proporcionais de prótons de recuo são bastante empregados na detecção de nêutrons rápidos. Como no espalhamento elástico, a energia liberada na reação é igual a zero e a energia cinética do nêutron incidente é igual à soma da energia do nêutron espalhado e do núcleo alvo. O recuo do núcleo alvo provoca ionização no meio que pode ser detectada. O hidrogênio é o material mais utilizado como núcleo alvo, e os detectores que se baseiam nesse principio são chamados detectores de próton de recuo.

2.2 Condutividade Elétrica

2.2.1 Modelo do Elétron Livre

Paul Drude, em 1900, considerou um metal como um gás de elétrons livres em uma caixa. Os íons positivos que formam a estrutura do metal são representados por esferas duras e fixas. Já os elétrons se movem entre os íons, ocasionalmente chocando-se com estes. Utilizando-se de algumas ideias da teoria cinética dos gases, Drude descreveu as colisões entre íons e elétrons de forma probabilística, postulando a existência de um tempo de relaxação τ , definido como tempo médio entre duas colisões sucessivas. Assumindo-se a aplicação de um campo elétrico externo aplicado na direção x , o momento do elétron é calculado pela equação 7.

$$\frac{dp_x}{dt} = -\frac{p_x}{\tau} - eE \quad (7)$$

Na equação 7, p_x é momento do elétron na direção do campo aplicado;

e é a carga do elétron;

E é o campo elétrico externo aplicado.

Usando-se a definição de corrente elétrica:

$$J_x = \frac{n \cdot e \cdot p_x}{m} \quad (8)$$

J_x é a densidade de corrente;

n é a densidade de elétrons;

m a massa do elétron.

Pode-se integrar a equação 7 e obter-se:

$$J_x = \frac{ne^2\tau}{m}(1 - e^{-t/\tau})E \quad (9)$$

Fazendo-se $t \rightarrow \infty$, a densidade de corrente assume um valor finito e igual a:

$$J_x = \left(\frac{n \cdot e^2 \cdot \tau}{m}\right)E \quad (10)$$

Este resultado é conhecido como Lei de Ohm generalizada, onde a condutividade elétrica (σ) é dada pela grandeza entre parênteses na equação 10 e a resistividade elétrica é o seu inverso.

$$\vec{J}_x = \sigma \vec{E} \quad (11)$$

A partir do modelo de Drude, é possível relacionar uma grandeza macroscópica como condutividade elétrica com quantidades microscópicas m , e e τ (OLIVEIRA; DE JESUS, 2005).

Considerando que o material a ser percorrido por uma corrente elétrica I , tenha área A , de secção transversal constante, de modo que a densidade de corrente ($J_x = I/A$) seja constante ao longo deste, e considerando ainda que a condutividade elétrica não muda ao longo do material, então o campo elétrico, será praticamente uniforme e terá seu valor dado por:

$$E = \frac{I}{\sigma \cdot A} \quad (12)$$

Pode-se então calcular a diferença de potencial V , entre dois pontos deste condutor através da equação 13:

$$V = E \cdot l \quad (13)$$

l é o comprimento considerado do condutor.

Dessa forma, considerando $l/\sigma A$ como a resistência elétrica R do material considerado tem-se :

$$V = R \cdot I \quad (14)$$

Esta relação é conhecida como lei de Ohm, quando a resistência elétrica é constante, sendo função apenas de seu comprimento e área (GRIFFITHS, 1999).

2.2.2 Teoria de Bandas dos Sólidos

Cada átomo isolado possui, associado a ele, um arranjo de estados quânticos discretos, sendo cada estado definido por um único grupo de números quânticos. Quando os átomos se aproximam, suas funções de onda começam a se sobrepor. Inicialmente, por estarem na região mais externa da nuvem de elétrons de um átomo isolado, os elétrons de valência são os primeiros a terem suas funções de onda sobrepostas. Quando as funções de onda se sobrepõem, tem-se um sistema único de vários átomos e inúmeros elétrons. Como o princípio da exclusão de Pauli exige que cada um dos elétrons ocupe um estado quântico diferente, para uma sólido de N átomos tem-se a divisão de cada nível de energia em N níveis para o sistema como um todo. Assim, cada nível de energia do átomo isolado se transforma em uma banda de energia em um sólido (HALLIDAY *et al.*, 2009).

Através da equação de Schrödinger, independente do tempo, é possível calcular os níveis permitidos de energia de um sistema:

$$-\frac{\hbar^2}{2m} \frac{d^2\psi}{dx^2} + V(x)\psi = E\psi \quad (15)$$

Na equação 15, ψ é a função de onda do elétron;

\hbar é a constante de Planck reduzida;

m é a massa do elétron;

V é a energia potencial associada;

E é a energia do elétron.

No caso de uma rede periódica de átomos como em um sólido, o potencial repete-se após uma distância fixa “ a ”. Então, tem-se:

$$V(x + a) = V(x) \quad (16)$$

Segundo o teorema de Bloch, onde cada elétron deve estar sujeito a um potencial periódico de acordo com a periodicidade da rede cristalina, uma possível solução da equação de Schrödinger neste potencial satisfaz a condição :

$$\psi(x + a) = e^{iKa} \psi(x) \quad (17)$$

K é uma constante independente de x .

A solução geral é:

$$\psi(x) = A \sin(kx) + B \cos(kx) \quad (18)$$

Onde $k = \frac{\sqrt{2me}}{\hbar}$

Após tratamento matemático e aplicação das condições de contorno, é possível mostrar que:

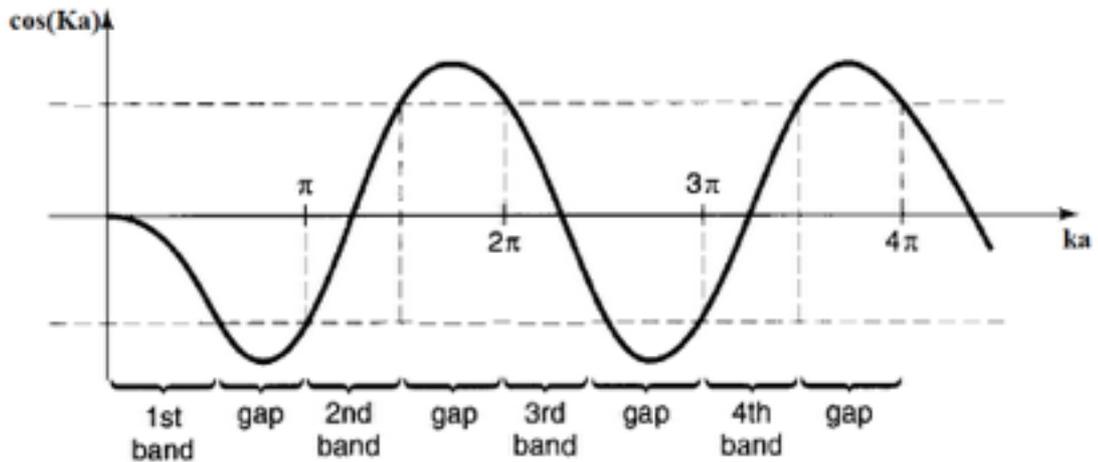
$$\cos(Ka) = \cos(ka) + \frac{m\alpha}{\hbar k} \sin(ka) \quad (19)$$

Onde α é uma constante positiva.

A equação 19 determina os possíveis valores de k e, conseqüentemente, as energias permitidas.

A figura 2 mostra as bandas permitidas separadas pelas bandas proibidas (gaps) para $\frac{m\alpha a}{\hbar} = 10$.

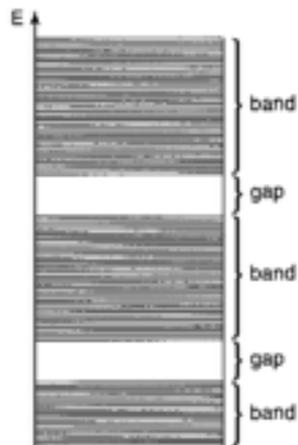
Figura 2 – Bandas de energia permitidas, separadas por bandas proibidas.



Fonte: GRIFFITHS (2005 Modificado)

A figura 3 ilustra as energias permitidas para um potencial periódico, formando bandas contínuas.

Figura 3 – Energias permitidas para um potencial periódico.



Fonte: GRIFFITHS (2005).

Se uma banda de energia está completamente preenchida, é necessária uma quantidade de energia relativamente alta para o elétron alcançar a banda seguinte. Se os elétrons não conseguem saltar a banda proibida, então esse material é um isolante elétrico. Por outro lado, se uma banda é apenas parcialmente preenchida, é necessária pouca energia para que o elétron alcance níveis energéticos disponíveis. Estes materiais são tipicamente condutores elétricos (GRIFFITHS, 2005). No caso dos semicondutores, embora eles tenham a última banda povoada totalmente preenchida, a energia que separa a última banda povoada, chamada de banda de valência, da seguinte, chamada de banda de condução, é pequena, e, assim, existe possibilidade de alguns elétrons saltarem para a banda seguinte. Na temperatura do zero absoluto, o nível mais alto de energia ocupado na última banda povoada é chamado nível de Fermi, e a energia correspondente a esse nível chamada de energia de Fermi (EISBERG; RESNICK, 2001).

2.3 Filmes Finos de Carbono

2.3.1 Introdução

A ciência dos filmes finos tem papel fundamental nas indústrias de alta tecnologia e no mundo moderno em geral. O uso de filmes finos aconteceu de forma sistemática na microeletrônica, mas entre suas aplicações atuais pode-se citar: telecomunicações, revestimentos protetores, revestimentos ópticos, entre outros.

O carbono, devido a sua grande diversidade de formas alotrópicas, pode dar origem a diferentes tipos de filmes finos, cada um com propriedades bastante distintas. Filmes de carbono amorfo ou nanocristalinos podem existir em diferentes tipos de matrizes.

O polietileno é um polímero de estrutura parcialmente cristalina, alto peso molecular e inerte à maioria das substâncias químicas comuns. A alternância entre as fases amorfas e cristalinas ao longo de sua estrutura, influencia muitas de suas propriedades. A estrutura do polietileno é a mais simples dentre os hidrocarbonetos poliméricos, sendo constituídos pela repetição do monômero $-(CH_2)_n-$ e finalizado com grupos CH_3 .

O polietileno pode ser classificado segundo a ramificação ou linearidade de suas cadeias. Existem cinco tipos de polietileno mais produzidos, são eles: polietileno de baixa densidade (PEBD), polietileno linear de baixa densidade (PELBD), polietileno de alta densidade (PEAD), polietileno de ultra alto peso molecular (PEUAPM) e polietileno de ultra baixa densidade (PEUBD). A maior diferença entre os polietilenos lineares e ramificados está na maior cristalinidade dos lineares. Polímeros lineares possuem maior rigidez, força de tensão e dureza que os ramificados, além de maior ponto de fusão. No presente trabalho, foi utilizado um filme de polietileno linear de baixa densidade (PELBD) com dopante *carbon black*, pois além de baixo custo, possui propriedades mecânicas superiores a outros polímeros, maior cristalinidade que o PEBD e é mais resistente ao rasgamento que o PEAD no caso da elaboração de filmes finos. O PELBD tem densidade de aproximadamente $0,92 \text{ g/cm}^3$, temperatura de fusão superior a 120°C , alta resistência dielétrica e baixa condutividade elétrica (COUTINHO; MELLO, 2003).

2.3.2 Filmes Finos de Polietileno com Carbon Black

Como todos os polímeros, o PELBD tem comportamento dielétrico, mas, com adição de dopantes, pode ter sua condutividade aumentada consideravelmente. O carbono é frequentemente utilizado como material para aumentar a condutividade de polímeros, sendo mais frequente o negro de fumo, ou *carbon black* e fibras de carbono (ZHANG *et al*, 2007). Quando o polietileno é dopado com carbono, geralmente preparados quando o polietileno é misturado no estado fundido com o *carbon black*, a distância entre as moléculas diminui e a mobilidade de elétrons no polímero é facilitada, aumentando sua condutividade (KOHJIVA *et al*, 2005).

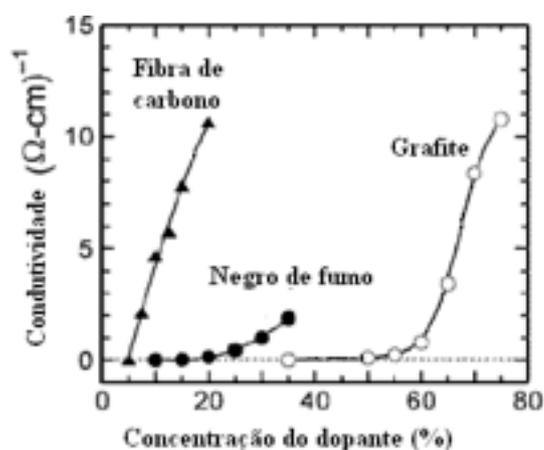
Zhang *et al* (2007) mostraram que o aumento da condutividade elétrica em polímeros com fibras de carbono depende da compatibilidade da matriz polimérica com o material condutor injetado e da dispersão uniforme deste. Segundo Modine *et al* (1996), os polímeros com *carbon black*, inclusive o polietileno, à temperatura ambiente, passam a ser semicondutores. Os resultados encontrados por Tawalbeh *et al* (2005) para o polietileno com

carbon black, mostram que seu comportamento elétrico é ôhmico, com sua resistividade dependendo da concentração de negro de fumo, e que a dependência da sua resistência elétrica com a temperatura é similar a de um semiconductor cristalino típico.

Thongruang *et al* (2002) trabalharam com o PEAD e os resultados encontrados mostraram que a condutividade do polietileno aumenta com a concentração do material dopante, seja fibra de carbono, *carbon black* ou grafite.

A Figura 4 ilustra os resultados obtidos por Trongruang para o polietileno de alta densidade.

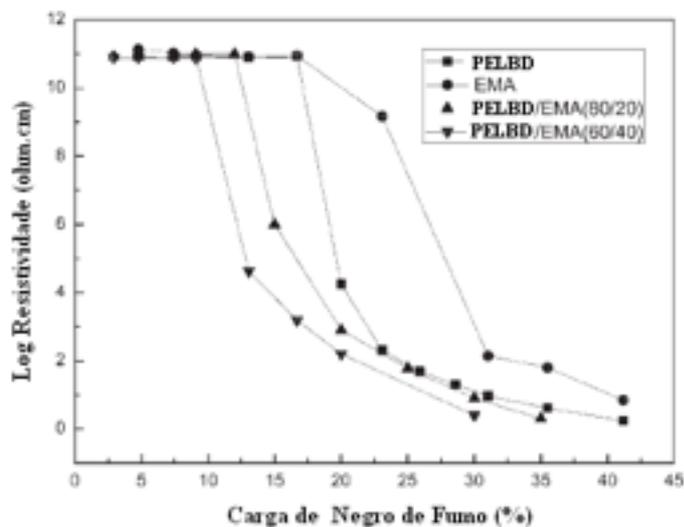
Figura 4 - Variação da condutividade elétrica do polietileno de alta densidade em função da concentração do material dopante.



Fonte: THONGRUANG *et al.*, 2002.

O comportamento elétrico do PELBD quando dopado com *carbon black* foi mostrado por Zhou *et al* (2007) e assim como PEAD, têm sua resistência elétrica diminuída com o aumento da concentração de *carbon black*. A Figura 5 ilustra esses resultados.

Figura 5-Variação da condutividade elétrica do PELBD em função da concentração de negro de fumo.



Fonte: ZHOU *et al.*, 2007.

2.3.3 Condutividade Elétrica em Filmes Finos de Carbono

Filmes de carbono têm grandes atrativos na vasta área de materiais semicondutores. O processo de deposição, que é geralmente feito a baixas temperaturas, possibilita o uso de substratos plásticos. A alta rigidez dielétrica e a baixa constante dielétrica fazem dos filmes de carbono amorfo um poderoso material semicondutor (LETTINGTON, 1998).

Materiais como filmes de carbono, que possuem estrutura amorfa, possuem curto e médio arranjo molecular periódico, mas nenhuma periodicidade a longas distâncias. O modelo do elétron livre mostra que as bandas proibidas de um material são causadas pela sua estrutura cristalina, formando células de potencial periódico. No caso de materiais amorfos, a estrutura de bandas, embora exista, possui forma diferente devido à variação dos ângulos de ligações entre moléculas e espaçamento disforme, sendo mais influenciada pela estrutura a curto alcance, já que a periodicidade ao longo da rede não existe.

Em filmes de carbono amorfo há estados dentro da banda proibida, isto é, entre as bandas de condução e valência. Estes estados são consequências da natureza amorfa do filme e não se estendem por todo o sólido. Estados encontrados dentro das bandas de valência e condução são conhecidos como estados estendidos, e estados encontrados entre as bandas são conhecidos como estados de caudas e podem ou não ser localizados. A mobilidade dos portadores de carga nos estados localizados é muito menor que nos estados estendidos. Além disso, a existência de centros de armadilhamento e defeitos, introduzem estados dentro da banda proibida e tendem a fixar o nível de Fermi. Os estados de cauda são cruciais no processo de condução, até mesmo uma pequena concentração pode influenciar significativamente as propriedades eletrônicas do material.

Em geral, para um semicondutor, a solução da equação de Schrödinger dá origem a uma função de onda para estados eletrônicos, que é resolvido usando o teorema de Bloch devido à periodicidade de semicondutores cristalinos. Em um material amorfo, o teorema de Bloch só pode ser usado com uma variação não periódica da função potencial, cuja desordem tende a espalhar elétrons de um átomo para o outro. A perda do dinamismo devido à desordem dá origem a um número importante de propriedades dos materiais amorfos e enfatizam a importância a posição espacial dos portadores que originam a densidade de estados (SILVA *et al*, 2002).

As propriedades elétricas estão intimamente ligadas com a estrutura física dos filmes, se são do tipo hidrogenado ou não, se são do tipo diamond-like ou graphite-like. Essas propriedades são fortemente influenciadas pela taxa de regiões no filme com ligações sp^2/sp^3 . Em particular os estados eletrônicos decorrentes das ligações π das regiões de hibridização sp^2 determinam as propriedades elétricas destes materiais (SANJINÉS *et al*, 2011).

2.3.4 Resistores Fractalizados e Caminhada Aleatória

O problema da condução elétrica em um filme amorfo faz parte de uma área maior que é a do transporte e difusão de partículas em um sistema desordenado. Grande parte dos materiais encontrados na natureza são amorfos e não cristalinos, e a difusão de partículas nesses meios é anômala.

Muito do conhecimento de sistemas desordenados vem da teoria de percolação e do advento dos fractais. A teoria da percolação é um dos modelos mais simples em probabilidade para se estudar os chamados fenômenos críticos. Isso significa que existe um parâmetro natural no modelo que faz o comportamento do sistema mudar drasticamente (ISICHENKO, 1992).

O problema da condutividade elétrica é tradicionalmente abordado em percolação. Imagina-se um material qualquer composto de uma mistura de partículas condutoras e isolantes dispersas de forma aleatória. Este composto apresentará uma condutividade a longo alcance quando a concentração de partículas condutoras for superior a um determinado valor crítico. Este valor depende de características geométricas do material analisado e vários materiais possuem valores bem determinados através de simulações computacionais (VOSS, 1984). Um material com essas características é chamado de cluster de percolação e as condições em que ocorre o limiar do comportamento são fisicamente interessantes e estudadas exaustivamente.

O conceito de percolação está intimamente ligado com a teoria dos fractais. Mitescu *et al* (1979) aplicaram a ideia da caminhada aleatória, bastante utilizada em fractais, para determinar a constante de difusão e calcular a condutividade do sistema. Resultados consideráveis no estudo de transporte anômalo em meios desordenados foram obtidos com o estudo de fractais ramificados finitos.

A teoria das caminhadas aleatórias tem sido aplicada em muitas áreas da ciência, principalmente como modelo em fenômenos de transporte. Em um sistema euclidiano uniforme, o deslocamento quadrático médio $\langle r^2(t) \rangle$ é proporcional ao tempo t , para qualquer número de dimensões espaciais. Contudo, para sistemas desordenados, essa relação não é válida em geral e tem-se para estes casos que:

$$\langle r^2(t) \rangle \sim t^{2/d_w} \quad (20)$$

Na equação 20, d_w é o expoente de difusão e maior que 2.

Este retardo no transporte é causado pelo número de centros de espalhamentos existentes na estrutura desordenada (GEFEN *et al*, 1983).

No que diz respeito aos aspectos geométricos e estruturais, a resistência elétrica R de um material, depende tanto da dimensão do espaço d como da topologia do sistema. A resistência R de um resistor de comprimento L é dada por:

$$R = \rho \cdot L/A \quad (21)$$

Tem-se ρ que é a resistividade elétrica do material;

A é secção transversal atravessada pela corrente entre os eletrodos separados pelo comprimento L .

Para um sistema euclidiano d -dimensional a área A é proporcional a L^{d-1} , e como consequência tem se:

$$R \sim L^{2-d} \quad (22)$$

Conclui-se então que para um meio bidimensional como o caso de um filme fino, a resistência elétrica do filme não depende do tamanho do sistema.

Isso pode ser compreendido ao escrever-se a resistência elétrica de um filme em função da relação:

$$R \sim N/M \quad (23)$$

N é o número médio de centros de espalhamentos existentes no comprimento L do filme.

M é o número de possíveis centros de espalhamento (GOMES *et al*, 2011).

O denominador M é proporcional ao número de átomos do sistema, L^d , enquanto que o numerador N é proporcional ao tempo médio necessário ao elétron percorrer a distância entre os extremos do filme. Ou seja, uma caminhada aleatória de deslocamento quadrático médio $\langle L^2 \rangle$, e 2 é o expoente de difusão d_w em um sistema euclidiano.

Em espaços fractalizados, d_w assume outros valores e assim pode-se generalizar a equação 22 assumindo-se que o resistor possui dimensão fractalizada $D < d$ e escrever-se:

$$R \sim L^{(d_w-D)} \quad (24)$$

(HALVIN *et al*, 1987).

Então assume-se que em um meio bidimensional e com expoente de difusão $d_w = 2$ a resistência elétrica seja proporcional a L^α , onde $\alpha = 0$. Para meios de dimensões fractalizadas e com diferentes expoentes de difusão espera-se que $\alpha \neq 0$. No caso de um cluster de percolação bidimensional esse expoente é 1,0 (NORMAND *et al* 1988).

2.3.5 Efeito da Irradiação de Filmes Finos, de Materiais Poliméricos, em um Reator Nuclear

Os materiais em um reator nuclear estão sujeitos a um campo misto de gama e nêutrons. Os raios gama e os nêutrons rápidos formam diferentes padrões de defeitos no material irradiado. Enquanto que a radiação gama provoca o surgimento de elétrons secundários caracterizados por uma trajetória caótica com baixa transferência de energia que induz uma degradação mais homogênea na amostra, os nêutrons interagem diretamente por espalhamento elástico com os átomos e através de reações nucleares. As partículas que sofrem o recuo pela colisão se deslocam quase linearmente no material com alta energia, gerando uma grande concentração de defeitos que por consequência induz modificações nas propriedades do material. Materiais poliméricos são ricos em hidrogênio e nêutrons rápidos transferem energia essencialmente via prótons de recuo. São criados então defeitos e espécies químicas ativas por ionização e excitação ao redor de suas trajetórias lineares. A nível microscópico a degradação não é homogênea (CHIKAOUI *et al*, 2017).

Em geral, para um reator nuclear, do total da dose absorvida pela amostra apenas 10% representa a contribuição da radiação gama, sendo o restante composto pela radiação neutrônica (PHILLIPS, 1978). No caso de um material semiconductor comum, a radiação neutrônica pode provocar defeitos na rede cristalina através do deslocamento de átomos das

suas posições iniciais (COTTRELL, 1956). Ao interagir com a matéria, o nêutron pode ser espalhado ou absorvido. Os principais defeitos gerados em um material semicondutor são devido à reação de espalhamento, contudo, apenas os nêutrons com energia cinética mais elevada (nêutrons rápidos) têm energia suficiente para provocar a remoção do núcleo de sua posição inicial. Quando o nêutron de alta energia colide com um núcleo e o retira de sua posição, tem-se a formação de uma vacância onde antes existia um átomo. O reposicionamento deste átomo na rede irá gerar um defeito intersticial. A formação do par vacância-defeito intersticial é chamada de par de Frenkel. O átomo deslocado pode ainda colidir com outros átomos provocando vários pares de Frenkel. Como resultado, tem-se uma larga região defeituosa denominada cluster. A maioria dos defeitos primários induzidos pela radiação neutrônica são instáveis e pode acontecer recombinação de algumas de vacâncias e átomos intersticiais à temperatura ambiente. Contudo, estes defeitos gerados no semicondutor criam novos níveis energéticos, mudando a configuração de bandas de energia do material, o que irá alterar muitas de suas propriedades, inclusive sua condutividade elétrica (GUTIERREZ, 1999).

Em um material polimérico, os dois principais efeitos da radiação são a ruptura da cadeia principal e a formação de ligações entre cadeias distintas. Materiais como o polietileno que possuem considerável linearidade tendem a ter sua cadeia principal bastante diminuída e um aumento significativo das ligações entre cadeias distintas. Ainda podem ocorrer formações de ligações duplas, dissociação de moléculas do polímero e fuga em forma gasosa e reações com o ambiente (PHILLIPS, 1978). A natureza exata do produto da irradiação não depende apenas da composição da amostra inicial. Depende da configuração molecular, do tamanho da amostra, do estado físico, da temperatura de irradiação e da taxa de impureza do sistema. Além disso os processos de transferência de energia distintos, geram tipos de ligações químicas distintas, o que implica em que a taxa de dose e não apenas a dose total é relevante no processo (GRUBB, 1974).

Liu *et al* (2002) irradiaram filmes de carbono do tipo diamond-like com radiação de nêutrons, raios- γ e ultravioleta. Foi observado que a radiação neutrônica altera a espessura dos filmes, que tiveram um aumento entre 4% e 17%. Uma possível causa é o aumento de carbono tipo grafite pós-irradiação. Foi observado também um aumento no índice de refração

dos filmes, o que indica diminuição de átomos de hidrogênio na amostra e evidencia a quebra de ligações C-H pela radiação. Foi observado ainda que o efeito da radiação neutrônica é muito mais pronunciado do que o efeito gerado pela radiação- γ e que não houve relação clara entre defeitos gerados pela radiação e dose absorvida.

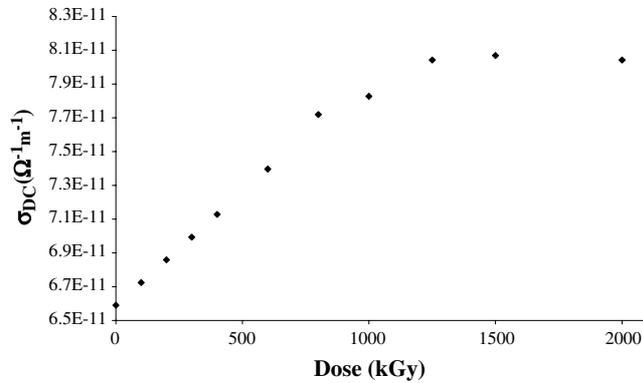
2.3.6 Efeito da Irradiação nas Propriedades Elétricas de Filmes de Materiais Poliméricos

De forma geral, em polímeros, assim com em outros materiais, a radiação produz mudanças transientes e permanentes nas suas propriedades elétricas. Os efeitos transientes são muito dependentes da taxa de dose e ocorrem durante a ionização das moléculas do polímero e dos elétrons livres no estados de condução. Quando a irradiação para, o número de elétrons de condução decai a medida que são armadilhados e recombina com moléculas ionizadas. Os efeitos permanentes são associados com mudanças irreversíveis ocorridas na estrutura do polímero na medida em que suas propriedades mecânicas começam a ser afetadas. Os efeitos permanentes são muito pequenos até que o polímero tenha absorvido quantidade de energia suficiente para degradar suas propriedades físicas, quando, em sua maioria, ocorre aumento de sua condutividade elétrica. Primeiramente quando irradiado o polímero tende a ter sua condutividade aumentada devido ao aumento do número de portadores de carga gerados. Em seguida a taxa de geração de portadores de carga se iguala ao numero de portadores armadilhados e recombinados. Por último quando a radiação é removida a condutividade diminui mas pode não voltar ao valor inicial se as mudanças estruturais no polímero tiverem ocorrido (VAN DE VORDE, 1970).

Dependendo da matriz polimérica, do tipo do material dopante, da taxa de dose e da dose total, diferentes resultados foram reportados com respeito a condutividade elétrica após irradiação. Existem poucos relatos de efeitos da radiação neutrônica nas propriedades elétricas de filmes poliméricos. A maioria se refere aos efeitos da radiação gama.

Radwam (2007) irradiou filmes de polietileno tereftalato (PET) de 40 μ m de espessura com altas doses de radiação gama e observou um aumento da condutividade elétrica em função da dose como indica a figura 6.

Figura 6 – Variação da condutividade elétrica dos filmes PET em função da dose de radiação gama.

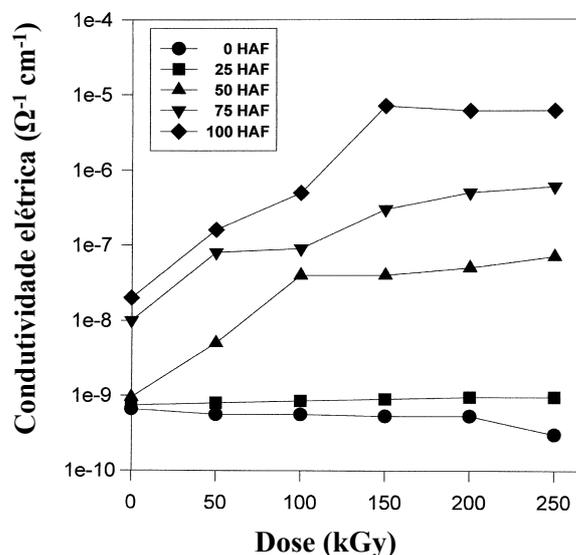


Fonte: RADWAN (2007).

Foi observado que o aumento da condutividade foi provocado pela quebra da cadeia das macro-moléculas induzidas pela radiação que levou a uma redução do peso molecular médio do PET que por sua vez aumentou a mobilidade molecular. Além disso a ruptura da cadeia diminui o número de elétrons de valência e por consequência o número de portadores livres de carga, aumentando a condutividade. Para doses mais elevadas o resultado mostra um valor de saturação onde a condutividade do polímero não pode ser mais aumentada.

Compósitos de borracha de nitrilo butadieno e de etileno-propileno-dileno com diferentes porcentagens de carbon black foram irradiados por Abou Zeid e Magda (2007) com doses de até 250 kGy de radiação gama e sua condutividade elétrica foi alterada pós-irradiação para amostras com maiores concentrações de carbon black (HAF) como mostra a figura 7.

Figura 7 – Condutividade elétrica das amostras com diferentes porcentagens de carbon black (HAF) em função da dose de radiação gama.



Fonte: ABOU ZEID e MAGDA (2007).

Foi observado que para a corrente fluir através do compósito preenchido com carbon black, os elétrons devem superar duas barreiras para se transferir de um agregado para outro dentro da amostra. O primeiro obstáculo é a largura do intervalo entre os agregados que devem ser suficientemente pequenos para permitir o fluxo de elétrons entre eles. A segunda barreira é devido a ocorrência de complexos de oxigênio existentes na superfície das partículas e agregados que atuam como centros isolantes. Mais energia é necessária então para os elétrons pularem de um agregado para outro. Aparentemente os obstáculos foram diminuídos devido a ação da radiação, induzindo ligações cruzadas e ligações de interface entre o enchimento e a matriz de borracha. A superação simultânea desses dois obstáculos ocorreu para estas doses o suficiente para induzir o caráter semicondutor em alguns casos.

Harrison *et al* (1968) irradiaram vários polímeros, inclusive polietileno e verificaram o aumento da condutividade elétrica quando submetidos a radiação de nêutrons e gama em fontes pulsadas. Foi verificada ainda a maior eficácia em induzir condutividade pela radiação gama do que a de nêutrons nesse tipo de fonte.

Madani (2003) estudou os efeitos da radiação gama em amostras com formatos de folhas de borracha natural e borracha butila de 2mm de espessura, dopadas com carbon black.

As amostras foram irradiadas com doses de até 100kGy. O resultado mostrou que a condutância das amostras diminuiu com o aumento da dose indicando um comportamento oposto ao encontrado por Abou Zeid e Magda (2007) para outros tipos de borracha. Foi indicado que o processo de irradiação destrói a estrutura condutora do carbon black na matriz polimérica, aumentando sua resistência.

Ervedosa (2013) irradiou filmes de polietileno com carbon black, em formato de tiras com 3 cm de comprimento com nêutrons e gama. Foi observado um aumento da resistência elétrica dos filmes de modo que as amostras submetidas a um tempo maior de irradiação e conseqüentemente da dose recebida, apresentaram maior aumento na resistência elétrica, para tempos de até 24 minutos em um reator nuclear de pesquisa.

3. MATERIAL E MÉTODOS

3.1 Testes Preliminares

Em busca de filmes que tivessem resposta à interação com a radiação neutrônica, foram testados filmes de carbono produzidos via sputtering e filmes de maior espessura constituídos de polietileno linear de baixa densidade com o material dopante *carbon black*. Antes do processo de irradiação, a resistência elétrica dos filmes foi monitorada a fim de se encontrar o método que proporcionasse uma maior constância nos valores obtidos nas leituras diárias.

A resistência elétrica dos filmes, assim como todos os filmes nesse trabalho, foi monitorada com o multímetro padrão primário Fluke 8508A do Laboratório de Instrumentação Nuclear do Centro Regional de Ciências Nucleares do Nordeste (CRCN-NE) por um período de 2 meses. Este equipamento fornece uma corrente elétrica constante, medindo-se a tensão produzida na amostra, seguindo uma padronização internacional (WEBSTER, 1999).

As medidas elétricas foram feitas utilizando o método das 2 pontas devido a resistência alta dos filmes, em uma sala climatizada com temperatura de 23 °C e umidade relativa entre 55% e 75%. Segundo Kang e Nho (2001), o polietileno com *carbon black* tem resistividade constante para uma faixa de temperatura de 20^o C até 120^o C.

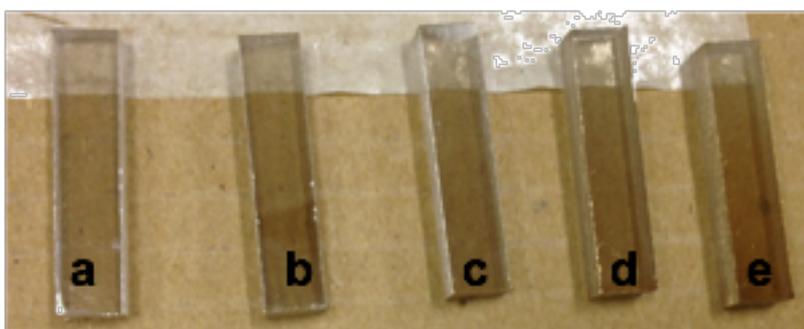
3.1.1 Filmes de Carbono Produzidos Via Sputtering na Universidade Federal de Alagoas

3.1.1.1 Filmes de 7 mm por 7 mm

Em testes preliminares foram utilizados filmes de carbono produzidos via sputtering pelo equipamento Evaporador MED 020 Coating System da empresa Bal-Tec, no departamento de física da UFAL Campus Arapiraca. As amostras foram colocadas no interior de um cilindro de vidro com cerca de 12 cm de diâmetro, sobre um suporte perfurado. Na parte superior do cilindro, foi posta a amostra de carbono. O cilindro de vidro forma uma câmara que é fechada hermeticamente e conectada a bomba de vácuo, que produz vácuo da

ordem de 10^{-1} mm Hg. A câmara fica em conexão com um reservatório de Argônio que substitui o ar e cria uma atmosfera, deste gás. Ao se atingir o vácuo requerido, em atmosfera de argônio, fecha-se o circuito e estabelece-se entre a amostra de carbono e a da amostra uma diferença de potencial suficiente para ionizar o pouco de gás no interior da câmara e originar uma nuvem de coloração violeta “*glow discharge*”. Os íons positivos bombardeiam a amostra de carbono (que funcionam como cátodo) arrancando seus átomos que devido aos gases presentes caminham em *zig-zag* e se depositam sobre toda a superfície da câmara, inclusive da amostra (que funciona como anodo). Os filmes foram confeccionados em 5 espessuras de 50 nm (a), 100 nm (b), 150 nm (c), 200 nm (d) e 250 nm (e). A figura 8 ilustra os 5 filmes confeccionados em substratos retangulares de acrílico de 7 mm por 28 mm.

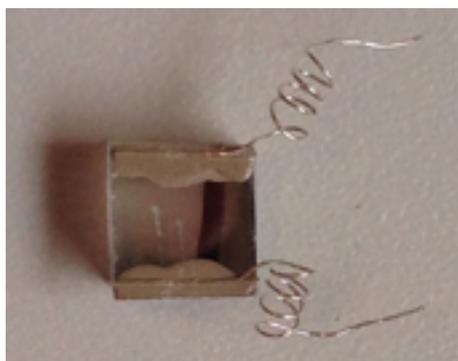
Figura 8 – Filmes de carbono de diferentes espessuras.



Fonte: O AUTOR (2015).

Os filmes foram cortados em quatro partes cada um, originando 4 filmes quadrados de 7 mm x 7 mm. Em seguida nas extremidades dos filmes foi depositada solda líquida de prata para constituição do contato elétrico constituído com fios também de prata, por se tratar de um ótimo condutor elétrico. O modelo final dos filmes é mostrado na figura 9.

Figura 9 – Contato elétrico nos filmes de carbono.



Fonte: O AUTOR (2015).

Os fios de 10 cm de comprimento foram colocados em formato helicoidal a fim de reduzir a tensão sobre a superfície do filme no ponto do contato elétrico quando ligado no equipamento de medição.

Em seguida os filmes foram irradiados no Instituto de Pesquisas Energéticas e Nucleares (IPEN), no reator de pesquisa tipo piscina IEA-R1, na estação pneumática que possui fluxo máximo de nêutrons térmicos e rápidos da ordem de $8,47 \times 10^{12}$ n/cm²s. O tempo de irradiação foi de 5 min e a resistência elétrica das amostras foi medida após a atividade das amostras baixarem, de modo que as medidas pudessem ser feitas sem ultrapassar o nível de dose estipulado pelas normas de proteção radiológica.

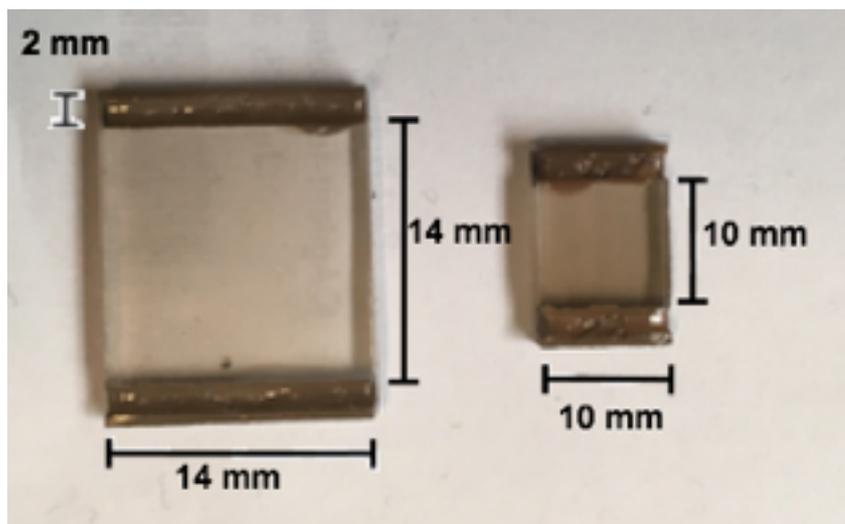
3.1.1.2 Filmes de 10 mm x 10 mm e 14 mm x 14 mm

Utilizando-se do mesmo método e equipamento no laboratório de física da UFAL Campus Arapiraca foram confeccionados filmes de carbono de 500 nm em áreas maiores de 10 mm x 10 mm e 14 mm x 14 mm.

As áreas dos filmes confeccionados são limitadas pelo invólucro de alumínio utilizado para irradiar as amostras no reator nuclear, sendo 14 mm o comprimento limite utilizado neste trabalho.

Os filmes foram depositados mais uma vez em substratos de acrílico que possuíam em uma de suas dimensões 2 mm de margem extra em cada extremidade para elaboração do contato elétrico, como indica a figura 10.

Figura 10 – Contato elétrico nos filmes de carbono de 500 nm.



Fonte: O AUTOR (2017).

No total foram confeccionados 7 filmes sendo 3 de dimensões 14 mm x 14 mm e 4 filmes de dimensões 10 mm x 10 mm.

A resistência elétrica dos filmes foi monitorada por um período de aproximadamente 3 meses no laboratório de instrumentação nuclear do CRCN-NE.

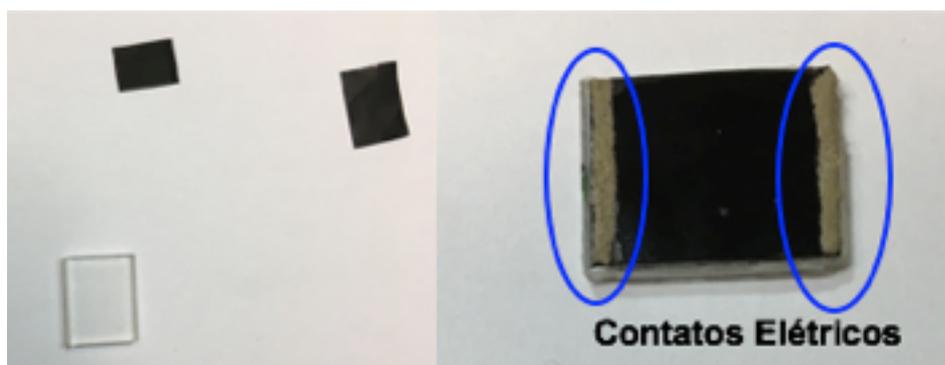
3.1.2 Filmes de Polietileno

Foram utilizados em seguida filmes de polietileno linear de baixa densidade, por possuírem maior espessura e conseqüentemente maior probabilidade de interação com a radiação neutrônica, além de possuírem menor sensibilidade em sua superfície para fins de transporte e inserção de contatos elétricos, devido ao seu caráter plástico. Os filmes são produzidos pela empresa Vermason Ltda possuindo aproximadamente 70 μm de espessura, densidade superficial de 0,07 kg/m^2 e resistência elétrica de aproximadamente 100 $\text{k}\Omega$ em amostras quadradas de 1 cm^2 de área.

Foi solicitada a análise por Espectroscopia de Energia Dispersiva (EDS) do material e o resultado indicou além da presença de carbono, que constitui a maior parte da composição do polietileno com carga de carbono, a presença de alumínio como maior elemento contaminante.

Foram confeccionadas amostras com filmes de polietileno presos a um substrato de PMMA (acrílico) por meio de fita adesiva formando retângulos de lados 18 mm x 14 mm e 14mm x 10mm . As amostras tinham em seu lado de dimensão maior, uma margem de 2 mm em ambos os lados para confecção do contato elétrico com cola de prata como indica a figura 11.

Figura 11 – Contato elétrico nos filmes de polietileno.

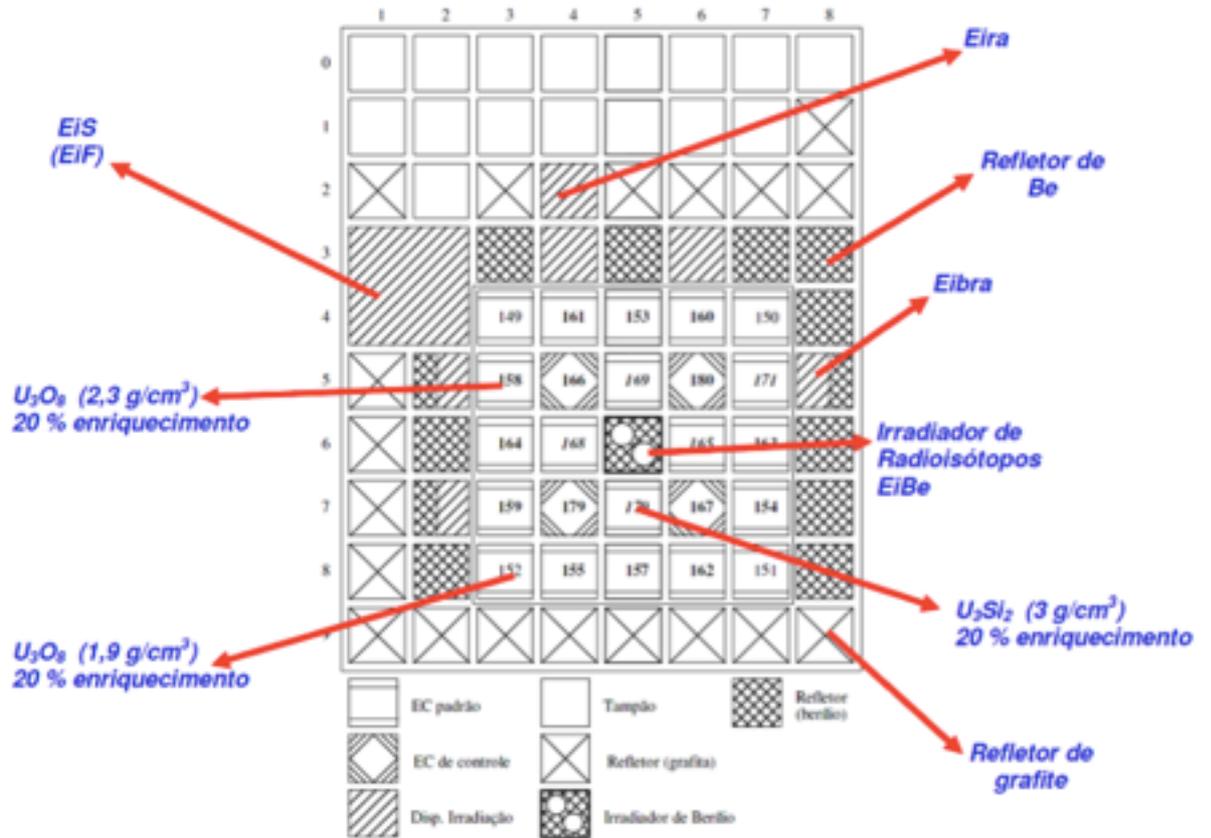


Fonte: O AUTOR (2017).

Considerando a espessura do contato elétrico de 2 mm em cada lado, a área do filme entre os contatos constituía um quadrado com aresta de 14 mm para as amostras maiores e 10 mm para as amostras menores. Assim como sugere a indicação do fabricante essas amostras demonstravam resistências elétricas próximas de 100 k Ω .

Foram confeccionadas nove amostras quadradas com aresta de 14 mm e cinco com aresta 10 mm. As amostras tiveram sua resistência elétrica monitorada por um período ligeiramente superior a 1 mês e em seguida foram levadas ao IPEN, no reator de pesquisa IEA-R1, dessa vez para serem irradiadas no núcleo do reator, na posição Eira, onde ficaram submetidas a um fluxo de nêutrons térmicos de $1,09 \times 10^{13}$ n/cm²s e de nêutrons rápidos de $7,07 \times 10^{11}$ n/cm²s. A figura 12 ilustra as posições de irradiação no reator IEA-R1.

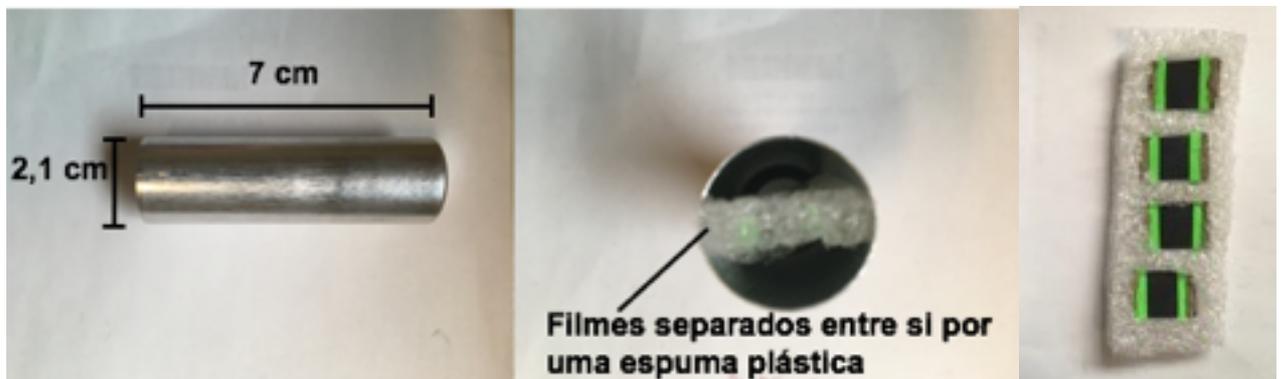
Figura 12 – Posições de irradiação do reator IEA-R1.



Fonte: IPEN (2017).

As amostras foram colocadas em tubos de alumínio ainda no CRCN-NE e transportadas para serem lacradas e irradiadas no IPEN como mostra a figura 13.

Figura 13 – Tubo de alumínio para irradiação das amostras.



Fonte: O AUTOR (2017).

Os filmes são fixados e separados uns dos outros por uma espuma plástica para evitar sobreposição dos filmes dentro do tubo.

Após serem lacrados, os tubos de alumínio com as amostras são transportados mecanicamente até o núcleo do reator na posição Eira. Os tempos de irradiação estão indicados na tabela 3, que possui os filmes caracterizados por letras na primeira coluna da tabela.

Tabela 3 – Tempo de irradiação das amostras de polietileno fixadas com fita adesiva.

Amostra	Área(mm²)	Tempo de Irradiação (min)
B	196	30
F	196	30
C	196	60
E	196	60
G	196	60
H	196	60
D	196	90
I	196	90
d	100	60
e	100	60
f	100	60
h	100	60

Fonte: O AUTOR (2017).

Os tempos foram escolhidos de forma que para as amostras de maior área se pudesse observar a variação da resistência elétrica com o tempo de exposição, por isso os tempos de 30 min, 60 min e 90 min. Para as amostras de menor área, foram todas irradiadas durante 60 min a fim de se comparar a variação da resistência elétrica para áreas diferentes durante o mesmo tempo de irradiação. Dessa forma seriam analisadas as amostras irradiadas em 60 min com arestas de 10 mm e 14 mm. Uma amostra de cada área foi deixada como referência no CRCN-NE durante o processo de irradiação das demais.

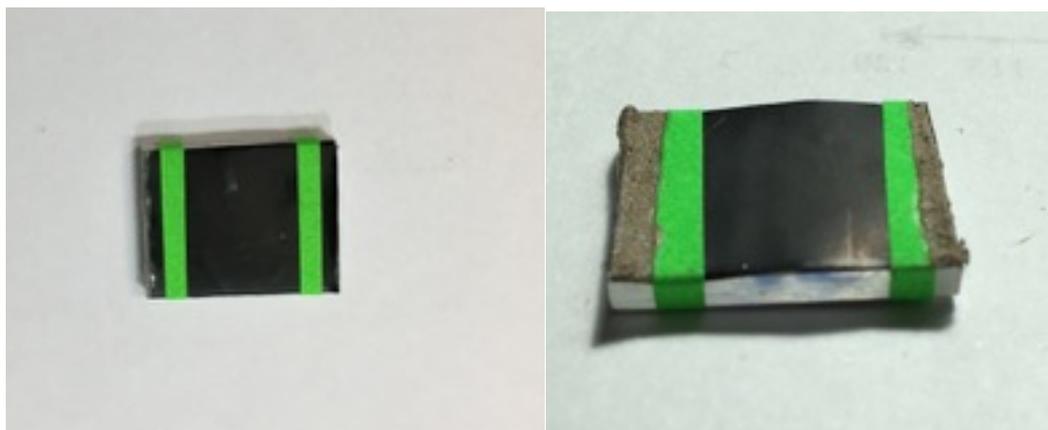
3.2 Irradiação com Fonte de Nêutrons e Gama

A fim de se obter uma análise separada do efeito da radiação gama e da radiação neutrônica nas amostras, foram confeccionados filmes para serem irradiados em fluxos isolados de nêutrons e para serem submetidos a uma fonte de radiação gama.

3.2.1 Irradiação com Fonte de Nêutrons

Foram confeccionadas amostras com filmes de polietileno presos ao substrato de acrílico por meio de uma fita adesiva estreita que demarcava a posição do contato elétrico como na figura 14.

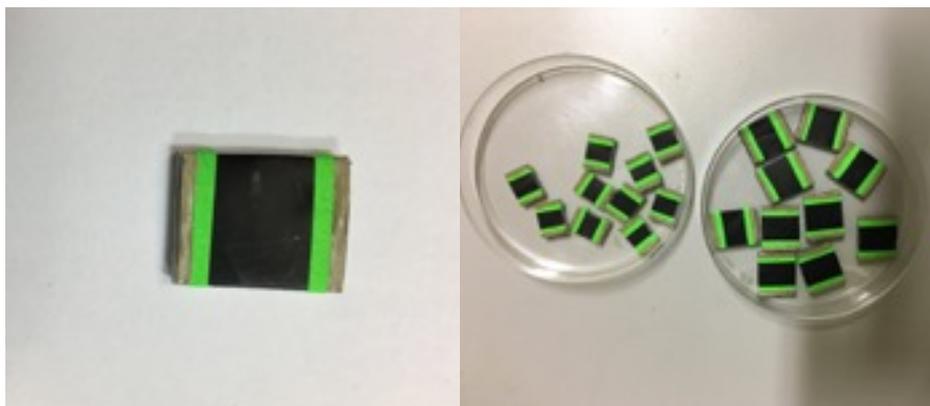
Figura 14 – Amostra de filmes de polietileno com substrato de PMMA.



Fonte: O AUTOR (2017).

A dimensões utilizadas nas amostras foram as mesmas da irradiação no IPEN com quadrados de áreas 196 mm^2 e 100 mm^2 . Foram confeccionadas no total doze amostras com arestas de 14 mm e doze com arestas 10 mm. O contato elétrico foi feito mais uma vez com cola de prata na área delimitada pela fita adesiva. Na figura 15 são mostradas as amostras a serem irradiadas já com o contato elétrico.

Figura 15 – Amostras de polietileno com o contato elétrico.



Fonte: O AUTOR (2017).

As amostras tiveram sua resistência elétrica monitorada durante um mês e em seguida preparadas para o processo de irradiação. No total, em cada grupo de doze amostras, duas foram deixadas no CRCN-NE como referencia e dez foram levadas para o processo de irradiação no laboratório de nêutrons do Instituto de Radioproteção e Dosimetria (IRD) no Rio de Janeiro, a fim de se verificar a influência dos nêutrons rápidos e térmicos na resistência das amostras livre da contaminação gama presente no reator nuclear. Um total de dez amostras de área 196 mm^2 e dez de área 100 mm^2 foram submetidas a uma fonte de PuBe de fluxo de nêutrons rápidos de aproximadamente $1 \times 10^5 \text{ n/cm}^2\text{s}$ durante um mês, a fim de que a fluência se aproximasse a da irradiação feita no reator nuclear do IPEN.

As amostras foram deixadas aos cuidados do pessoal do IRD e irradiadas em diferentes condições a fim de se discriminar o efeito majoritário no processo de interação do feixe neutrônico com o filme.

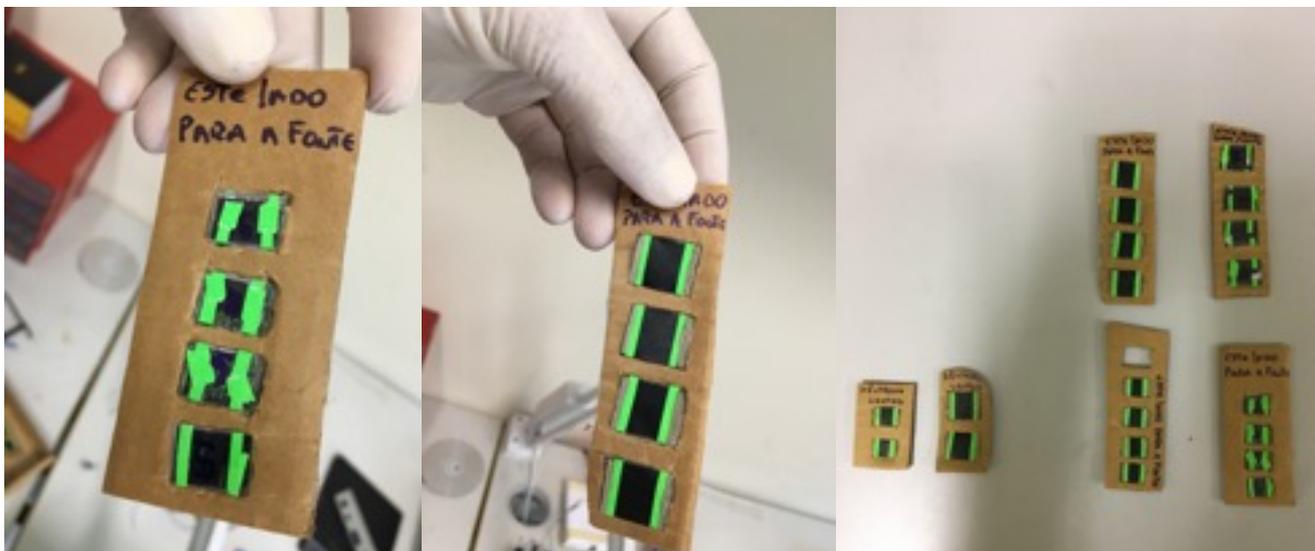
Quatro amostras de cada subconjunto ficaram com o filme na posição frontal a fonte, a fim de se observar o efeito provocado pela colisão direta do nêutron com o filme.

Quatro amostras ficaram com o substrato posicionado frontalmente a fonte (invertido em 180°), pois queria-se observar o efeito provocado pelo próton de recuo oriundo do acrílico e posteriormente colidindo contra o filme.

Dois amostras de cada grupo foram colocadas durante o mesmo período no fluxo térmico padrão II também no laboratório de nêutrons com fluxos de $1 \times 10^5 \text{ n/cm}^2\text{s}$ a fim de se observar o efeito de nêutrons térmicos sobre as amostras.

A figura 16 mostra as amostras separadas para serem transportadas ao IRD com as indicações das posições de irradiação discriminadas.

Figura 16 – Amostras Irradiadas no IRD.



Fonte: O AUTOR (2017).

A figura 17 mostra o arranjo de irradiação das amostras do IRD, com o suporte utilizado para posicionar as amostras sobre um trilho que as leva para serem expostas à fonte de nêutrons.

Figura 17 – Local de Irradiação das amostras no IRD.



Fonte: O AUTOR (2017).

Após o processo de irradiação as amostras foram mandadas via malote para o CRCN-NE e as medidas das resistências elétricas dos filmes irradiados foram feitas em seguida.

3.2.2 Irradiação com Radiação Gama

Algumas amostras foram confeccionadas para serem irradiadas na fonte de Cobalto-60 do Departamento de Energia Nuclear (DEN) da UFPE. O equipamento da marca GAMMACELL, modelo GC-220, possui taxa de dose de 2,205 kGy/h. A figura 18 mostra uma fonte desse modelo, com a respectiva célula de irradiação.

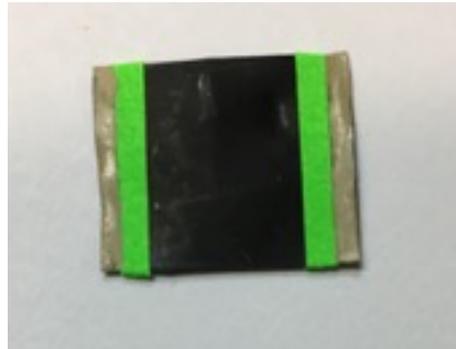
Figura 18– Irradiador gama GC-220.



Fonte: HELINSK *ET AL* (2009).

As amostras foram confeccionadas sem o substrato de PMMA de modo a conter apenas a marcação adesiva e o contato elétrico feito da mesma forma que o teste anterior. A figura 19 ilustra uma das amostras confeccionadas.

Figura 19 – Amostra sem o substrato de PMMA.

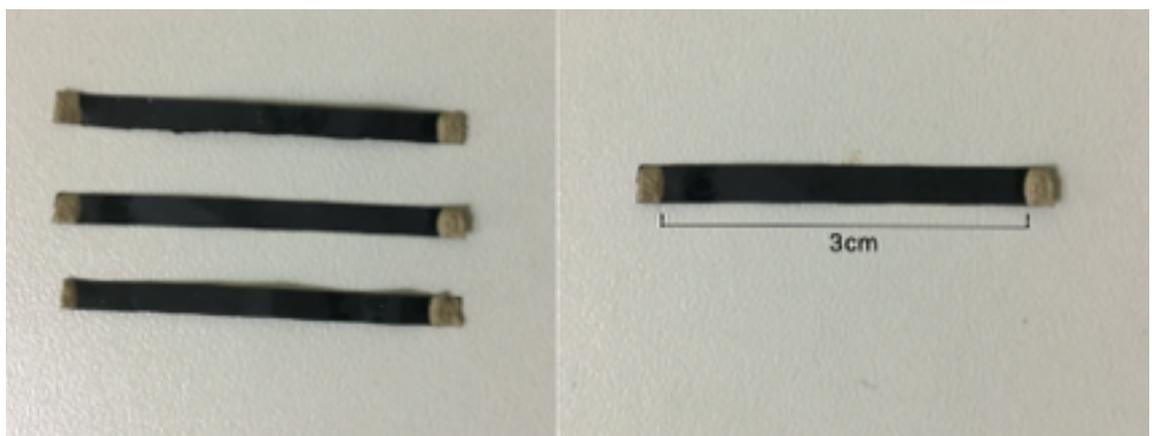


Fonte: O AUTOR (2017).

Um total de doze amostras foram feitas em com as dimensões de quadradas de 196 mm² e doze com 100 mm². Nesse conjunto de amostras quadradas, um total de 4 amostras de cada área receberam uma dose de 1100 kGy, 2 amostras de 200 kGy, 3 de 60 kGy e 3 de 19 kGy, totalizando assim 12 amostras de cada área.

Até disso, foram confeccionadas dezesseis amostras em formatos de tiras de 3,4 mm de comprimento e 2 mm de largura, a fim se analisar o efeito da radiação em amostras de resistência elétrica maior. Em cada extremo da tira foi feito o contato elétrico em 2 mm de comprimento de modo que a distância entre os contatos fosse de 3cm, como demonstrado na figura 20.

Figura 20 – Amostra cortada em tiras.



Fonte: O AUTOR (2017).

As amostras em tiras também foram submetidas a doses de 1100kGy, 200kGy, 60kGy e 19kGy, sendo cada conjunto de 4 tiras submetido a uma das doses. Esses valores de doses foram escolhidos de forma a se aproximarem da dose de gama recebida pelo filme na irradiação no reator nuclear do IPEN.

A dose de gama recebida em 1h no reator nuclear do IPEN pode ser calculada assumindo-se que o fluxo de nêutrons é igual ao número de fótons, considerando-se assim, a emissão de 10^{13} fótons/cm²s no reator do IPEN. Tomando-se a energia média de cada fóton como 2,2 MeV em um reator de fissão, tem-se que o fluxo de fótons é dado por:

$$\phi = 10^{13} \times 2,2 = 2,2 \times 10^{13} \text{ MeV/ cm}^2 \text{ s} = 3,52 \text{ J/cm}^2 \text{ s} \quad (25)$$

Para uma irradiação de 1h no reator, a fluência (ψ) é então:

$$\psi = 3600 \times 3,52 = 1,27 \times 10^4 \text{ J/cm}^2 \quad (26)$$

Calculando-se então o Kerma (K) que é a medida total de energia transferida do fóton para o carbono na ionização primária por unidade de massa, tem-se:

$$K = \psi \cdot \frac{\mu}{\rho} \quad (27)$$

$\frac{\mu}{\rho}$ é o coeficiente de atenuação mássico, que para o carbono é 19,6 cm²/kg.

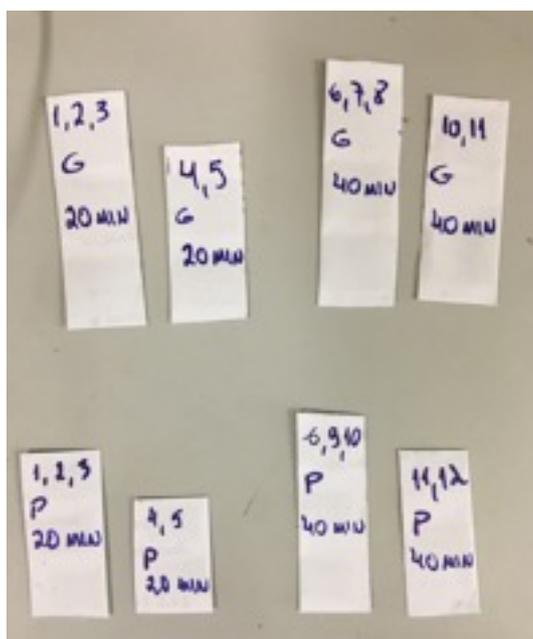
O Kerma total então é de 248 kGy, valor que está dentro do intervalo das doses de exposição dos filmes no irradiador gama.

3.3 Irradiação com Filmes de Polietileno sem Contato Elétrico no IPEN

Devido a problemas com a fita adesiva utilizada no conjunto anterior, novas amostras de filmes de polietileno foram submetidas a irradiação mais uma vez no reator de pesquisa IEA-R1 do IPEN. As amostras foram confeccionadas sem o substrato de acrílico como na irradiação com gama. Foram confeccionadas mais uma vez amostras em formatos quadrados e em tiras como mostrado nas figuras 18 e 19.

As amostras foram colocadas em envelopes de papel com os respectivos tempos de irradiação, depois posicionadas dentro dos tubos de alumínio e enviadas ao IPEN. A figura 21 ilustra alguns desses envelopes contendo os filmes.

Figura 21 – Envelopes contendo as amostras.



Fonte: O AUTOR (2017).

As amostras foram submetidas novamente a um fluxo de nêutrons térmicos de $1,09 \times 10^{13}$ n/cm²s e de nêutrons rápidos de $7,07 \times 10^{11}$ n/cm²s na mesma posição de irradiação, a Eira conforme a figura 12. O formato das amostras com o tempo de irradiação estão indicados na tabela 4.

Tabela 4 – Tempo de irradiação das amostras de polietileno sem contato elétrico.

Amostra	Formato	Tempo de Irradiação (min)
G1, G2, G3, G4, G5	Quadrado de 196mm ²	20
G6, G7, G8, G10, G11	Quadrado de 196mm ²	40
G19, G20, G21, G22	Quadrado de 196mm ²	60
M1, M2, M3, M4, M5	Quadrado de 100mm ²	20
M6, M9, M10, M11, M12	Quadrado de 100mm ²	40
M18, M20, M21, M22	Quadrado de 100mm ²	60
F, J, N, O	Tiras de 2mmx3cm	20
B, K, P, R	Tiras de 2mmx3cm	40
H, Q, S, T	Tiras de 2mmx3cm	60

Fonte: O AUTOR (2017).

Os tempos foram escolhidos de forma a não ultrapassarem 60 min a fim de se minimizar o efeito térmico preservando a integridade das amostras. As amostras tiveram suas resistências elétricas monitoradas antes e após a irradiação no IPEN, contudo o contato elétrico foi desfeito para o processo de irradiação a fim de anular o efeito da ativação neutrônica sob a cola de prata.

3.4 Análise da Relação da Resistência Elétrica com a Dimensão das Amostras.

Foi observado após a irradiação com nêutrons e gama a dependência da resistência elétrica (R) com a aresta (L) das amostras quadradas. Como visto anteriormente, em um meio bidimensional e com expoente de difusão (d_w) igual a 2, a resistência elétrica das amostras deve ser a mesma tanto para áreas de 100mm² como para de 196mm². Contudo devido ao processo de confecção das amostras e montagem dos contatos elétricos, as resistências podem variar bastante dificultando as análises dimensionais. Por isso foi tomada a média das resistências das amostras de áreas de 196mm² e 100mm² antes e depois do processo de irradiação. Com isso determina-se o expoente α na relação: $R \sim L^\alpha$, que deve ser próximo a 0. Então será observado nessas amostras o expoente α após a irradiação em diferentes doses,

caso seu valor seja diferente do antes a irradiação pode-se assumir uma mudança na estrutura dos filmes, indicando uma alteração no expoente de difusão. O cálculo de α será feito através da equação 28:

$$\alpha = \frac{\log R - \log R'}{\log 14 - \log 10} \quad (28)$$

R é a resistência média das amostras quadradas com aresta 14 mm e R' a resistência média das amostras com aresta 10 mm.

Devido a pequena variação da aresta nos dois tipos de amostras quadradas utilizadas, 10mm e 14mm, ou seja, 40% é apropriado dizer que o expoente α será tomado nesse trabalho apenas como um indicador, e não como um expoente crítico definido a partir de uma lei de escala associada a mais de uma década de variação em L.

4. RESULTADOS

4.1 Testes Preliminares

4.1.1 Irradiação de Filmes de Carbono Produzidos Via Sputtering

4.1.1.1 Irradiação de Filmes 7 mm x 7 mm

A irradiação com nêutrons dos filmes produzidos via sputtering, na estação pneumática do IPEN, não produziu alterações significativas na resistência elétrica das amostras como indica a tabela 5.

Tabela 5 – Variação da resistência elétrica das amostras produzidas via sputtering.

Espessura do Filme	Resistência Antes da Irradiação (MΩ)	Resistência Após da Irradiação (MΩ)	Variação (%)
50nm	213±8	213±8	0
100nm	240±1	233±1	-3,28
150nm	141±6	146±6	3,88
200nm	351±16	349±16	-0,67
250nm	197±6	220±6	11,78

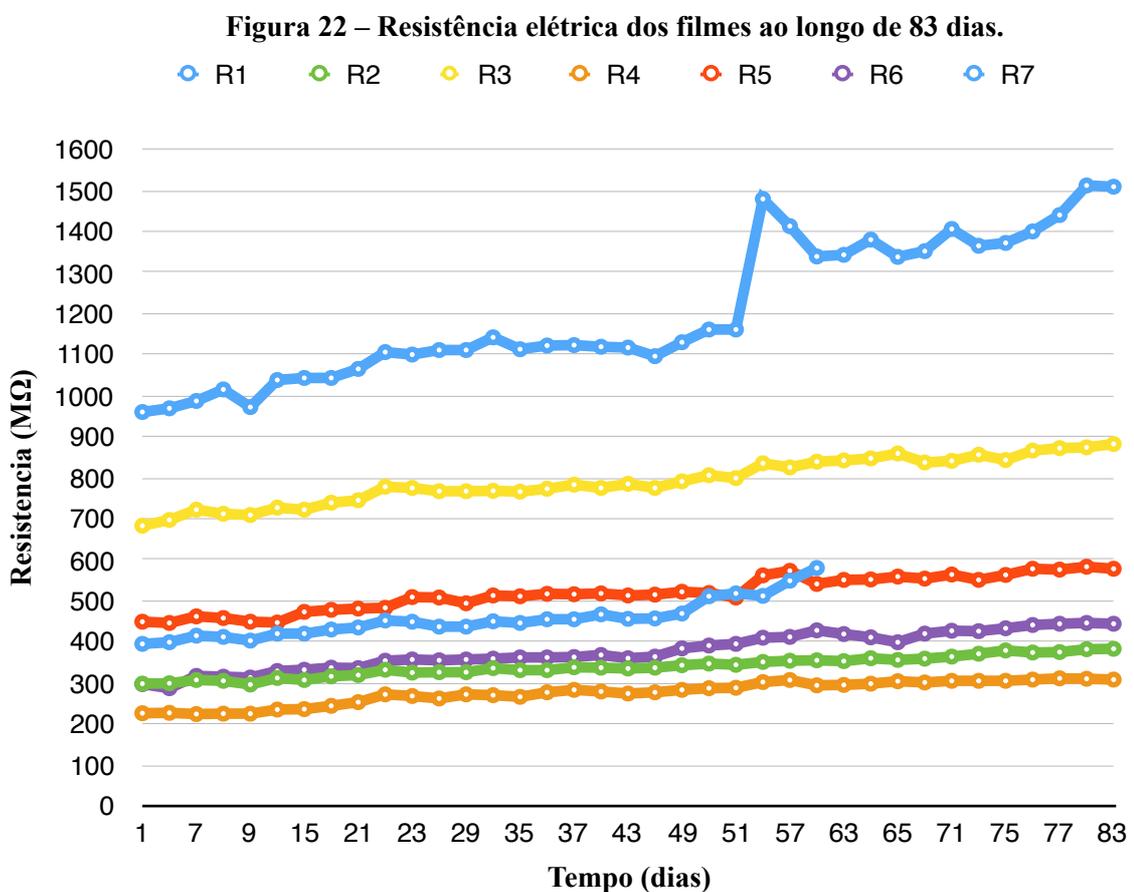
Fonte: O AUTOR (2017).

As amostras que não foram irradiadas também apresentaram uma pequena variação em suas resistências, mostrando que efeitos externos como contaminantes e possíveis contatos na superfície no filme no momento do transporte ocasionaram a variação na resistência.

O fato dos filmes não apresentarem resposta à irradiação, principalmente os menos espessos, motivou a utilização de filmes mais grossos, menos sensíveis a possíveis contatos físicos e com maior tempo de exposição ao fluxo de nêutrons.

4.1.1.2 Filmes 10 mm x 10 mm e 14 mm x 14 mm.

Os filmes de 500 nm produzidos via sputtering em quadrados de 10 mm e 14 mm de aresta não foram irradiados, uma vez que no período de monitoramento dos filmes no laboratório de instrumentação nuclear do CRCN-NE, as resistências elétricas dos filmes não apresentaram um valor constante, aumentando gradativamente. Os filmes foram monitorados por um período de 83 dias, com controle de temperatura e humidade como mencionado anteriormente e os valores de suas resistências são mostrados na figura 22.



Fonte: O AUTOR (2017).

A amostra R7 teve seu contato elétrico desgastado e após 60 dias foi descartada. Devido a sensibilidade do filme a fatores externos, dificuldade de transporte e baixa espessura, optou-se pela utilização de filmes de polietileno, que além de mais espessos, possuem caráter plástico, mais resistente e viável as condições deste trabalho.

4.1.2 Irradiação de Filmes de Polietileno

Os efeitos provocados pela radiação neutrônica nos filmes de polietileno não pôde ser verificado na irradiação preliminar devido a deterioração da fita adesiva que estava posicionada sobre os filmes e não suportou os extensos tempos de irradiação, formando uma camada rugosa sobre os filmes e comprometendo o contato elétrico. O substrato de PMMA também ficou bastante deteriorado, apresentando diversas rachaduras.

Dessa forma nos testes seguintes a fita adesiva não mais foi posicionada sobre o filme, sendo substituída por uma fita de papel localizada apenas nas extremidades de modo a demarcar a região do contato elétrico. Nas irradiações feitas no IPEN, o substrato de PMMA não foi mais utilizado.

4.2 Irradiação com Fonte de Nêutrons e Gama

4.2.1 Irradiação com Fonte de Nêutrons

As amostras que foram expostas no fluxo de nêutrons rápidos, não apresentaram variações relevantes na resistência elétrica após o período de irradiação no IRD como indica a tabela 6.

Tabela 6 - Valores das resistências elétricas pós-irradiação com nêutrons rápidos.

Área da Amostra	Parte da Amostra Voltada ao Feixe	Resistência Antes da Irradiação (k Ω)	Resistência Após a Irradiação (k Ω)	Variação (%)
196mm ²	Filme	73 \pm 1	74 \pm 1	0,9
196mm ²	Filme	71 \pm 1	72 \pm 1	0,9
196mm ²	Filme	65 \pm 2	Deteriorada	-
196mm ²	Filme	56 \pm 1	56 \pm 1	0,7
196mm ²	Substrato	50 \pm 1	Deteriorada	-
196mm ²	Substrato	76 \pm 1	76 \pm 1	0,2
196mm ²	Substrato	49 \pm 1	50 \pm 1	1,1
196mm ²	Substrato	43 \pm 1	43 \pm 1	0,3
100mm ²	Filme	48 \pm 1	51 \pm 1	7,2
100mm ²	Filme	38 \pm 1	38 \pm 1	0

100mm ²	Filme	36±1	36 ±1	0,5
100mm ²	Filme	47±1	48 ±1	2,6
100mm ²	Substrato	51±1	52 ±1	1,9
100mm ²	Substrato	37±1	37 ±1	-0,6
100mm ²	Substrato	47±1	Deteriorada	-
100mm ²	Substrato	32±1	32 ±1	1,5

Fonte: O AUTOR (2017).

Algumas amostras ficaram com o contato elétrico bastante danificado e foram descartadas.

Como apenas uma amostra apresentou variação superior a 3% pode-se concluir que os filmes não apresentaram alterações pós-irradiação com nêutrons rápidos, nos fluxos da ordem de 1×10^5 n/cm²s, nas suas resistências elétricas.

As amostras submetidas no fluxo de nêutrons térmicos também apresentaram resultado similar, como exposto na tabela 7.

Tabela 7 - Valores das resistências elétricas pós-irradiação com nêutrons térmicos.

Área da Amostra	Resistência Antes da Irradiação (kΩ)	Resistência Após da Irradiação (kΩ)	Varição (%)
196mm ²	45 ±1	Deteriorada	-
196mm ²	34 ±1	35 ±1	0,3
100mm ²	56±1	57 ±1	0,6
100mm ²	35±1	36 ±1	4,0

Fonte: O AUTOR (2017).

Pôde-se então chegar a conclusão de que as amostras não demonstram sensibilidade na resistência elétrica quando interagem com a radiação no fluxo de nêutrons térmicos e de modo geral os filmes não possuem sensibilidade na resistência elétrica para baixos fluxos de nêutrons. Segundo Harrison *et al* (1968) e Van de Vord (1970) o polietileno sem dopante sofre aumento da condutividade elétrica quando irradiado com fonte de nêutrons. Para o polietileno com *carbon black* não há nenhuma menção quanto a variação de propriedades elétricas pós irradiação com fontes na literatura.

4.2.2 Irradiação com Radiação Gama

As amostras que foram submetidas à radiação gama no DEN-UFPE apresentaram modificações significativas em sua resistência elétrica para doses mais altas. Tanto as amostras confeccionadas em tiras quanto as em forma de quadrado tiveram sua resistência aumentada após o processo de irradiação. A variação das resistências foi tomada como:

$$\Delta R = \frac{(R - R_0)}{R_0} \cdot 100 \quad (30)$$

R é resistência pós irradiação e R₀ a resistência antes da irradiação.

Os resultados das amostras quadradas podem ser visualizados nas tabelas 8 e 9, e o resultado das tiras na Tabela 10.

Tabela 8 - Resistências elétricas pós-irradiação das amostras com aresta 14mm.

Dose	Resistência Antes da Irradiação (kΩ)	Resistência Após da Irradiação (kΩ)	Variação (%)
1100kGy	67 ±1	76±1	13,6
1100kGy	67 ±1	Deteriorada	-
1100kGy	58±1	Deteriorada	-
1100kGy	80 ±1	Deteriorada	-
200kGy	83±2	92±2	10,4
200kGy	89 ±1	101±1	12,6
60kGy	54 ±1	59 ±1	8,3
60kGy	53 ±1	60 ±1	13,3
60kGy	59 ±1	66 ±1	11,8
19kGy	54 ±1	55 ±1	1,8
19kGy	53 ±1	54 ±1	1,1
19kGy	58±1	59 ±1	1,7

Fonte: O AUTOR (2017).

Tabela 9 - Resistências elétricas pós-irradiação das amostras com aresta 10mm.

Dose	Resistência Antes da Irradiação (kΩ)	Resistência Após da Irradiação (kΩ)	Variação (%)
1100kGy	60 ±2	70 ±2	16,9

1100kGy	57 ±1	66 ±1	14,7
1100kGy	64±1	78 ±1	22,4
1100kGy	55±1	Deteriorada	-
200kGy	56±1	66±1	18,5
200kGy	65±1	74±1	13,9
60kGy	47 ±1	53 ±1	12,6
60kGy	50±1	Deteriorada	-
60kGy	59 ±1	63 ±1	6,7
19kGy	51±1	50±1	-0,7
19kGy	58±1	60±1	3,4
19kGy	51±1	Deteriorada	-

Fonte: O AUTOR (2017).

Tabela 10 - Resistências elétricas pós-irradiação das amostras em tiras

Dose	Resistência Antes da Irradiação (MΩ)	Resistência Após da Irradiação (MΩ)	Variação (%)
1100kGy	2,5±0,1	Deteriorada	-
1100kGy	1,8±0,1	2,1±0,1	15,5
1100kGy	2,3±0,1	2,7±0,1	16,9
1100kGy	2,1±0,1	2,5±0,1	18,3
200kGy	3,1±0,1	3,6±0,1	14,9
200kGy	0,56±0,01	0,63±0,01	12,5
200kGy	0,57±0,01	0,63±0,01	10,5
200kGy	0,43±0,01	Deteriorada	-
60kGy	0,71±0,01	0,82±0,01	16
60kGy	0,93±0,01	1,06±0,01	14,4
60kGy	1,83±0,03	1,99±0,03	8,5
60kGy	1,30±0,01	1,46±0,01	12,3
19kGy	0,69±0,01	0,74±0,01	7,2
19kGy	0,91±0,01	0,95±0,01	4,4
19kGy	1,79±0,01	1,85±0,01	3,4
19kGy	1,28±0,01	1,32±0,01	3,1

Fonte: O AUTOR (2017).

Tomando-se a variação média da resistência elétrica das amostras para cada dose nos diferentes formatos, é possível resumir os efeitos da irradiação com gama na tabela 11.

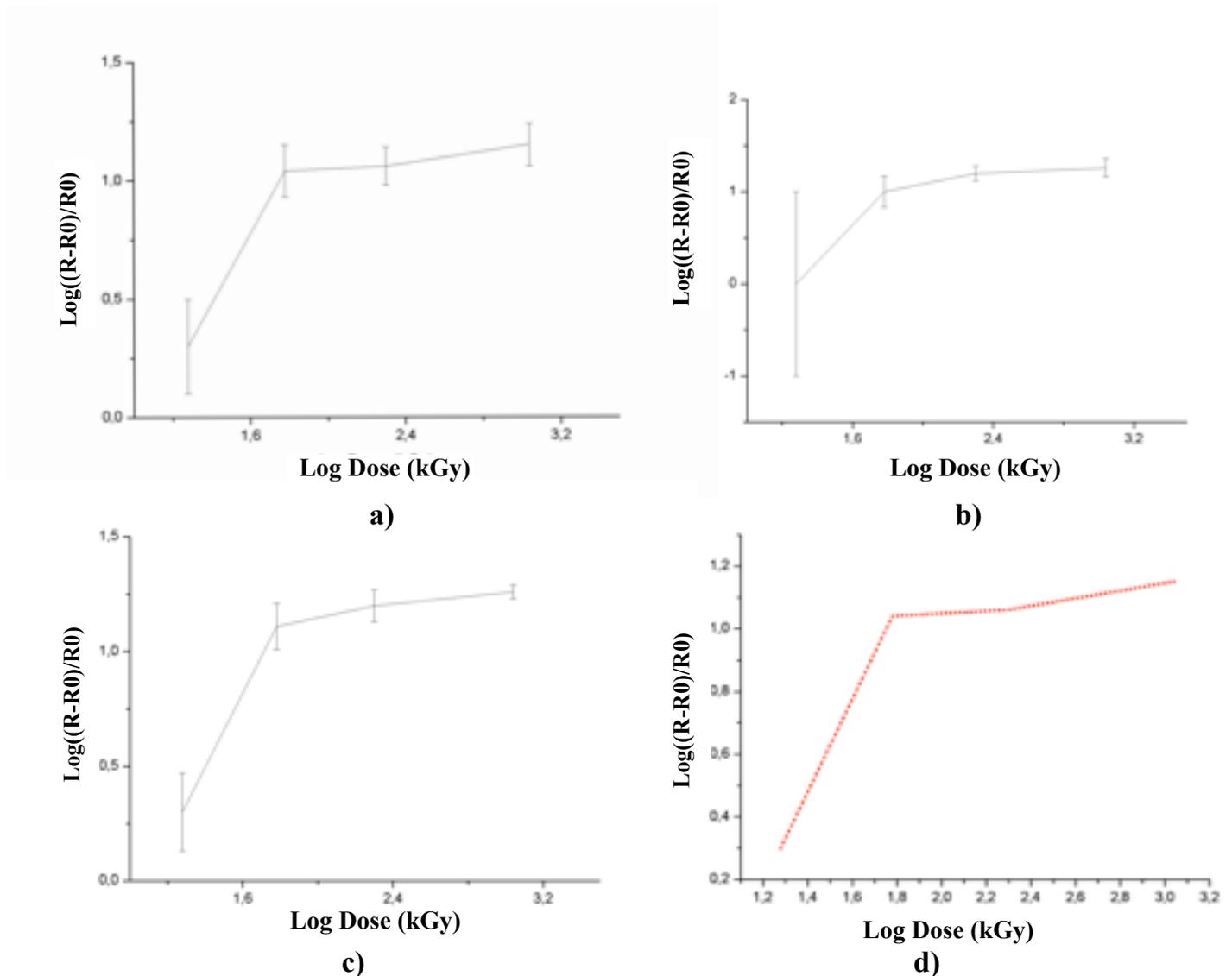
Tabela 11- Variação média das resistências elétricas em função da dose.

Dose	Forma Geométrica	Variação Média das Resistências (%)
1100kGy	Quadrado Aresta 14mm	14±3
	Quadrado Aresta 10mm	18±4
	Tira de Comprimento 3cm	17±1
200kGy	Quadrado Aresta 14mm	11±2
	Quadrado Aresta 10mm	16±3
	Tira de Comprimento 3cm	13±2
60kGy	Quadrado Aresta 14mm	11±3
	Quadrado Aresta 10mm	10±4
	Tira de Comprimento 3cm	13±3
19kGy	Quadrado Aresta 14mm	2±1
	Quadrado Aresta 10mm	1±3
	Tira de Comprimento 3cm	5±2

Fonte: O AUTOR (2017).

Observa-se um aumento na variação da resistência com o aumento da dose embora não linear. Para a irradiação com 1100 kGy, embora quase cinco vezes maior que a de 200kGy a variação da resistência foi pequena em relação a de 200 kGy, indicando uma região de saturação. As amostras irradiadas com essa dose ficaram bastante danificadas, introduzindo uma inviabilidade de medição para doses maiores devido a deterioração do filme e do contato elétrico. O resultado da tabela 11 pode ser melhor visualizado no gráfico da figura 23 com as respectivas incertezas.

Figura 23 – Variação média da resistência das amostras: a) área de 196 mm², b) área de 100 mm², c) em tiras de 3 cm, d) a interpolação dos 3 gráficos.



Fonte: O AUTOR (2017).

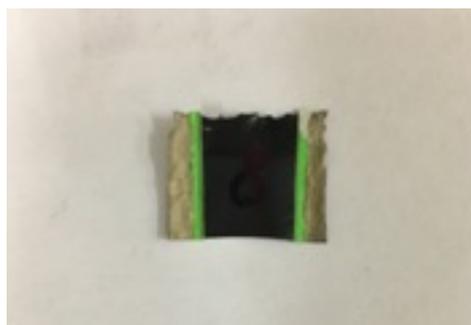
Como ilustrado na figura 23 a irradiação com gama produz praticamente o mesmo efeito nas amostras de diferentes geometrias, aumentando gradativamente a resistência elétrica das amostras, embora não se possa garantir a linearidade devido a incerteza associada na variação média das amostras. Pode-se acreditar então que a para a taxa de dose aplicada, o efeito predominante provocado pela radiação gama é possivelmente o deterioramento do material dopante *carbon black* que fornece ao polietileno resistividade típica de semiconductor. O aumento da resistência é gradativo com a dose, até que o material comece a perder suas propriedades mecânicas e a se deteriorar para doses maiores que 1100 kGy.

Ajustando-se os três gráficos em um só, como na figura 23 item d, e fazendo-se o ajuste da curva para uma função do tipo $\log((R-R_0)/R_0) = A \times (\log D - \log D_c)^B$, em que A e B são constantes, e D_c é uma dose crítica em que a resistência dos filmes começa a variar, foi possível estimar o valor de B, como 0,076, que é um expoente crítico universal da relação variação de resistência elétrica com a dose de radiação gama e independente da geometria das amostras.

4.3 Irradiação com Filmes de Polietileno sem Contato Elétrico no IPEN

As amostras irradiadas no reator nuclear do IPEN apresentaram resultados diferentes para os formatos de tiras e quadrados. Algumas amostras ficaram deterioradas após o processo de irradiação e foram descartadas. A figura 24 ilustra uma dessas amostras.

Figura 24 – Amostra deteriorada pós-irradiação.



Fonte: O AUTOR (2017).

Para as amostras em formato de quadrado, ao se tomar a variação média da resistência elétrica para as áreas de 196 mm² e 100 mm² em cada um dos tempos de irradiação, tem-se o resultado exposto na tabela 12.

Tabela 12 - Valores das resistências elétricas pós-irradiação das amostras quadradas.

Área das Amostras	Tempo de Irradiação	Média da Variação das Resistências das amostras Pós-irradiação (%)
196mm ²	20min	-15±7
100mm ²	20min	-19±11
196mm ²	40min	-40±20
100mm ²	40min	-3±5

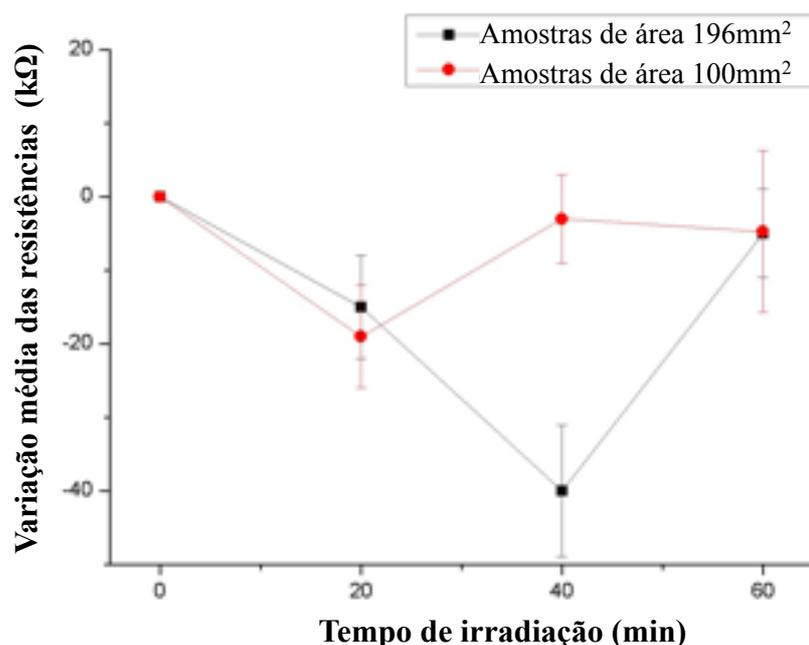
196mm²	60min	-5±5
100mm²	60min	-5±11

Fonte: O AUTOR (2017).

Praticamente todas as amostras quadradas apresentaram diminuição em sua resistência elétrica após o processo de irradiação. As amostras quadradas de diferentes áreas apresentaram variações próximas para os tempos de 20 minutos e 60 minutos. Já para as irradiações feitas em 40 minutos houve uma discrepância acentuada entre os dois valores, onde as amostras de maior área permaneceram ampliando a diminuição em suas resistências e as de menor área apresentavam já uma recuperação no sentido de se aproximar do valor inicial. Possivelmente as amostras apresentavam diferenças mais acentuadas com relação a sua estrutura amorfa com dopante, provocando diferentes resultados pós-irradiação.

O fato das amostras apresentarem para o tempo de 60 minutos uma variação na resistência menor que para os tempos iniciais, sugere uma competição de efeitos onde inicialmente o feito provocado pela irradiação diminui a resistência elétrica, e após períodos maiores a maior concentração de defeitos tende a aumentar novamente a resistência, trazendo-a para valores próximos ao valor inicial como mostra a figura 25.

Figura 25 – Variação média da resistência das amostras de diferentes áreas.



Fonte: O AUTOR (2017).

Como o erro associado as variações não é pequeno, principalmente devido ao contato elétrico e a disposição disforme do dopante no filme, pode-se sugerir que para amostras quadradas, que possuem resistências relativamente baixas, em torno de 100 k Ω , o efeito da radiação neutrônica induz inicialmente uma diminuição na resistência elétrica das amostras, provocada pela criação de portadores de carga e íons, devido à interação com os nêutrons rápidos. Já para tempos maiores a formação de clusters de defeito e regiões de armadilhamento, reduzem a mobilidade dos portadores de carga, fazendo com que algumas amostras apresentem pequena variação na resistência elétrica de modo que os efeitos praticamente se compensam.

Nas amostras com formato de tiras, a resistência elétrica aumentou confirmando o resultado obtido no trabalho anterior (ERVEDOSA, 2013), para menores tempos de irradiação. A tabela 13 mostra a média das variações das amostras em tiras, definidas por letras, para cada um dos tempos de exposição.

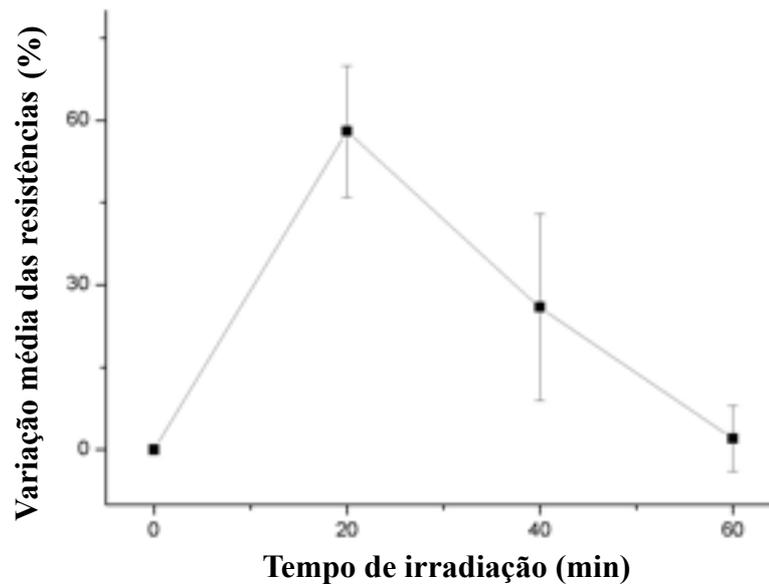
Tabela 13- Valores das resistências elétricas pós-irradiação das amostras em tiras.

Amostra	Tempo de Irradiação(min)	Resistência Antes da Irradiação (MΩ)	Resistência Após da Irradiação (MΩ)	Variação (%)
N	20	1,24 \pm0,02	2,10 \pm0,02	70
O	20	1,55 \pm0,04	2,25 \pm0,04	45,6
F	20	1,48\pm0,03	2,34 \pm0,03	58,1
J	20	1,83 \pm0,03	Deteriorada	-
B	40	0,79\pm0,02	0,94\pm0,02	19,7
K	40	0,80\pm0,01	0,91\pm0,01	13,8
R	40	0,71 \pm0,01	1,03\pm0,01	45,1
P	40	0,66 \pm0,01	Deteriorada	-
H	60	2,19\pm0,04	2,30	5,3
Q	60	1,96\pm0,04	1,96\pm0,04	0
S	60	2,37\pm0,08	2,26\pm0,04	-4,6
T	60	2,42\pm0,02	2,62\pm0,02	8,5

Fonte: O AUTOR (2017).

O gráfico da variação da resistência elétrica em função dos tempos de exposição está ilustrado na figura 26.

Figura 26 – Variação média da resistência das amostras de tiras em função do tempo de exposição.

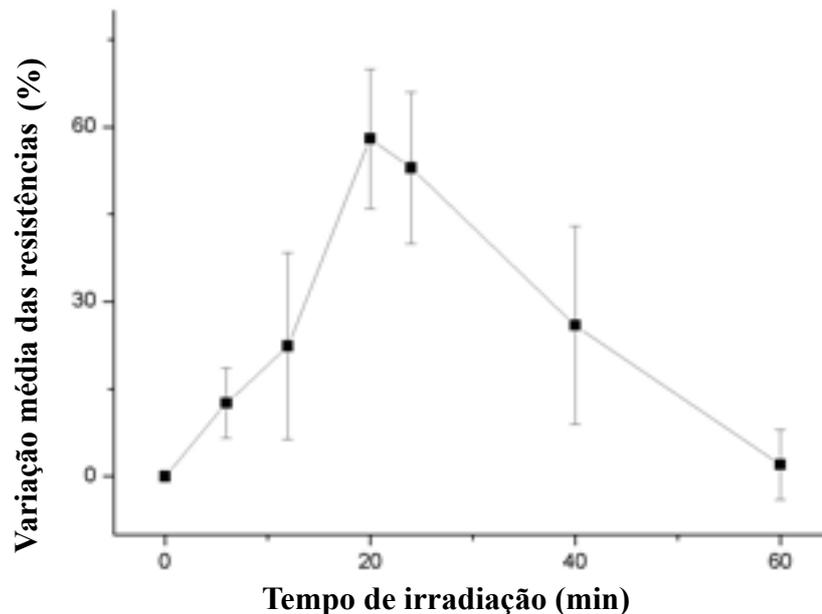


Fonte: O AUTOR (2017).

As amostras irradiadas em tempos de 20min apresentaram uma variação de resistência maior que as de intervalos maiores. Para a irradiação de 60 minutos a resistência elétrica das amostras praticamente não variou.

Se forem utilizados os resultados do trabalho anterior (ERVEDOSA, 2013), onde as tiras foram irradiadas com tempos de irradiação inferiores a 25 min, pode-se construir o gráfico da figura 27.

Figura 27 – Variação média em tiras em função do tempo total de exposição.



Fonte: O AUTOR (2017).

O gráfico da figura 27 mostra o aumento crescente da resistência eléctrica das amostras em função do tempo de irradiação até a o intervalo de 20 minutos. Para os intervalos seguintes o aumento é cada vez menos pronunciado e para 60 min de irradiação, a resistência praticamente não muda.

O fato das amostras em tiras apresentarem sempre aumento em suas resistências leva a crer que para essa geometria o efeito de deterioração do dopante responsável pela semi-condutividade das amostras é mais relevante e se sobrepõe ao aumento do número de portadores induzidos pela radiação. Devido a esse fato, como a deposição do material dopante não é uniforme, e o desvio na variação na resistência das amostras não foi pequeno, subentende-se que não há uma relação direta entre a dose recebida e a variação da resistência, embora possa-se induzir que para doses mais altas ocorra uma saturação de defeitos e recombinações, de modo que a resistência praticamente não se altera.

4.4 Análise da Relação da Resistência Elétrica com a Dimensão das Amostras.

Para as amostras irradiadas com radiação gama, tomou-se as resistências médias das amostras de 14 mm e 10 mm de aresta, antes da irradiação e depois da irradiação para cada dose. Assim foi possível determinar o expoente α que relaciona a dependência da resistência elétrica com a dimensão da amostra. Os resultados estão expressos na tabela 14.

Tabela 14 - Cálculo de α antes e após a irradiação com gamma

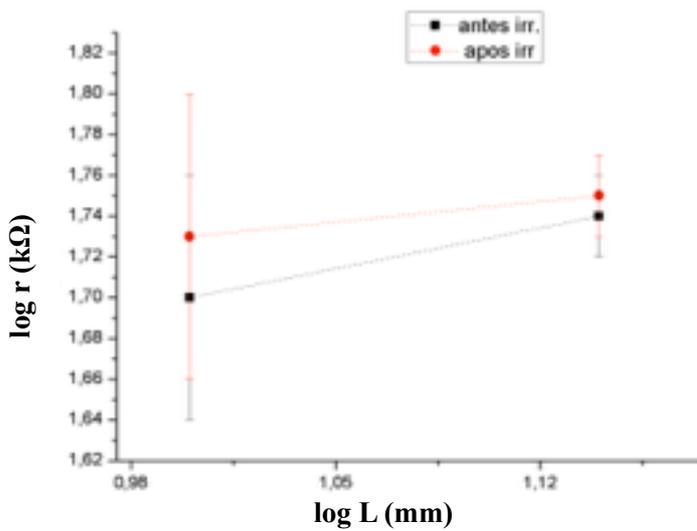
Dose	α Antes da Irradiação	α Após da Irradiação
19kGy	0,26	0,14
60kGy	0,18	0,18
200kGy	1,05	0,95
1100kGy	0,42	0,19

Fonte: O AUTOR (2017).

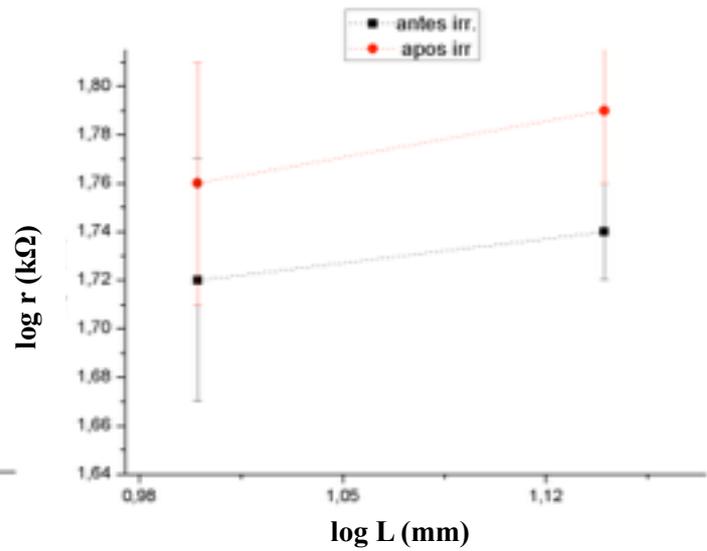
Observa-se que, para praticamente todas as doses, α diminuiu, o que sugere uma diminuição no expoente de difusão (d_w). O valor relativamente elevado para α na dose de 200 kGy se deve a grande diferença entre as médias das resistências nas áreas de 196 mm² e 100 mm², com os valores de 86±4k Ω e 61±6k Ω , respectivamente, e antes da irradiação. Ao se comparar os diferentes valores de α nas amostras tanto antes quanto depois da irradiação, vê-se que as amostras irradiadas com dose de 200kGy tem α com valores próximos a 1, indicando a estrutura de um agregado de percolação, enquanto todas as outras com α próximo a 0, indicam um sólido amorfo euclidiano comum. Isso sugere mais um vez uma não uniformidade na confecção do filme, no que diz respeito a introdução do dopante carbon black nas amostras, provocando variações na relação entre a resistência elétrica e a área das amostras e causando efeitos não padronizados após a irradiação.

A figura 28 apresenta o comportamento da resistência elétrica em função da dimensão da amostra antes e após a irradiação.

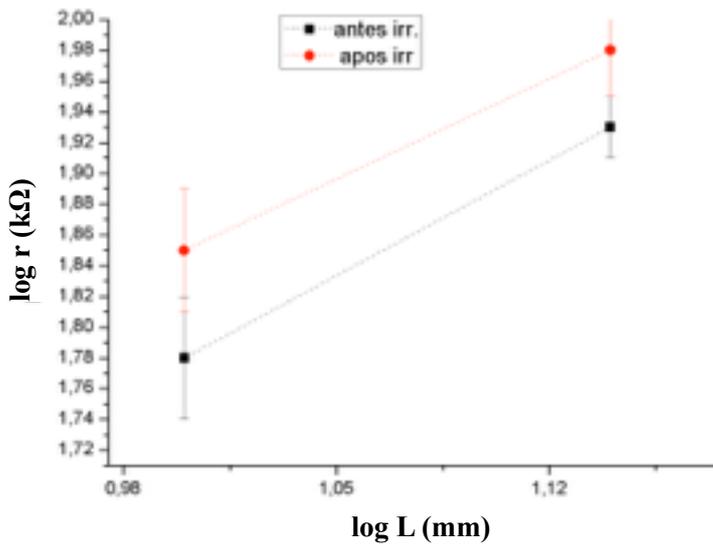
Figura 28 – Gráfico da resistência elétrica em função da aresta para a irradiação com gama nas doses: a) 19 kGy; b) 60 kGy ; c) 200 kGy; d) 1100 kGy.



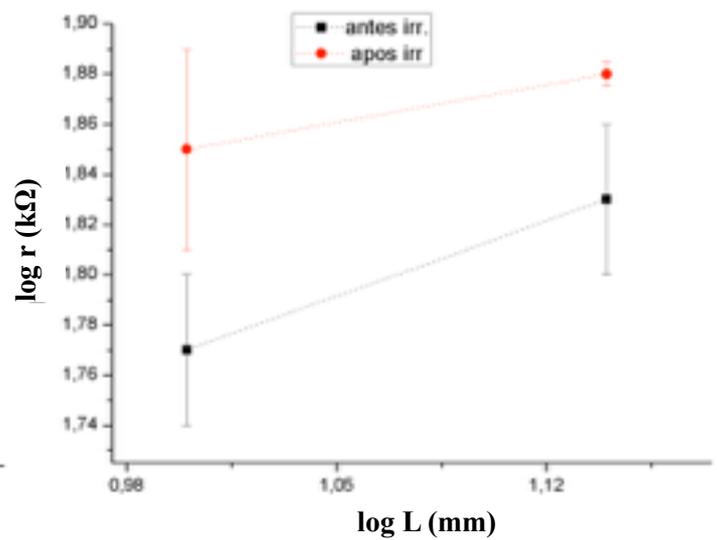
a)



b)



c)



d)

O coeficiente angular dos gráficos acima é α , sendo observado então sua diminuição após a irradiação com cada uma das doses indicadas, com exceção em b) que permaneceu constante.

Foi feito o mesmo procedimento com as amostras irradiadas no reator nuclear do IPEN. Os valores de α antes e após a irradiação são mostrados na tabela 15.

Tabela 15 - Cálculo de α antes e após a irradiação com Nêutrons

Tempo de Irradiação	α Antes da Irradiação	α Após da Irradiação
20min	1,2	1,0
40min	1,44	0,4
60min	-0,17	-0,04

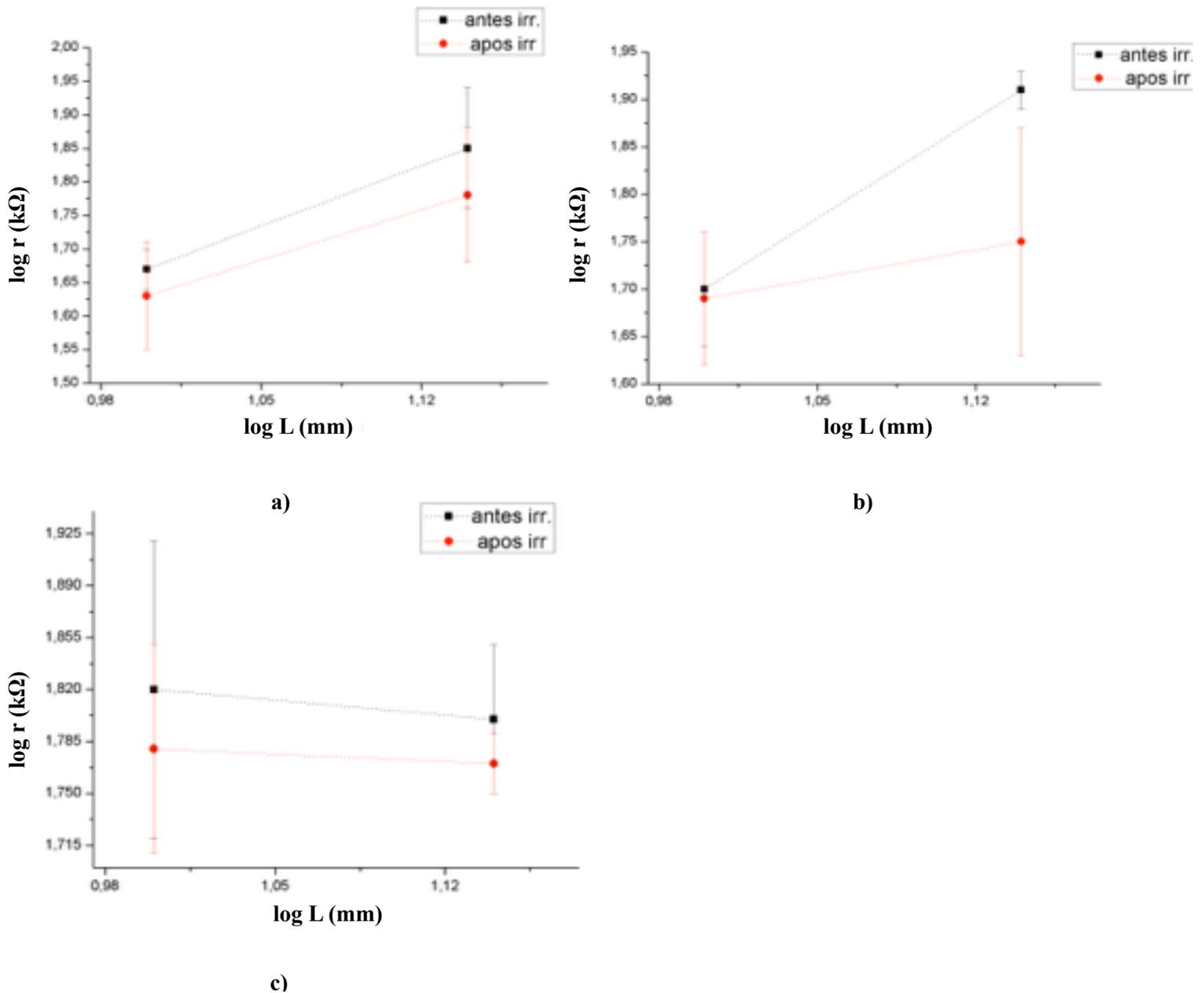
Fonte: O AUTOR (2017).

Embora para o tempo de irradiação de 60 min α tenha aumentado ligeiramente, de forma geral o valor de α diminui assim como na irradiação com gama apenas. Os efeitos provocados pelas duas irradiações embora diferentes, podem levar a crer que a relação da resistência elétrica com a dimensão da amostra é afetada após interagir com nêutrons e radiação gama.

No caso das amostras submetidas ao fluxo de nêutrons observa-se que as amostras irradiadas em 20 min possuem α próximo a 1 indicando um agregado de percolação enquanto que as amostras irradiadas em 60 min possuem um estrutura fractal amorfa usual não percolativa com α próximo a 0. Já as amostras de 40 min antes de irradiar possuem $\alpha = 1,44$ o que indica um d_w maior que as outras amostras, sugerindo uma estrutura fractal diferente que pode levar a uma justificativa para a discrepância de comportamento para as irradiações nesse tempo, onde segundo a tabela 13 as amostras de 196 mm² e 100 m² apresentaram variações em suas resistências de -40% e 3% respectivamente.

A figura 29 ilustra o comportamento da resistência elétrica em função da dimensão das amostra antes e após a irradiação no reator nuclear.

Figura 29 – Gráfico da resistência em função da aresta para os tempos de irradiação de:
a) 20min; b) 40min; c) 60min



Fonte: O AUTOR (2017).

5. CONCLUSÃO

Após a exposição do filme de polietileno com carbon black, em formas de quadrados e tiras, em diferentes fluxos de radiação neutrônica e gama, pode-se concluir que:

- Os filmes de polietileno com carbon black apresentam variação em sua resistência elétrica quando submetidos a radiação neutrônica apenas em altos fluxos, uma vez que a irradiação no IRD não apresentou alterações mesmo tendo durado um período de 1 mês e com dose próxima a da irradiação no IPEN.

- Os filmes também apresentam sensibilidade à radiação gama, com aumento de resistência elétrica para doses de 19 kGy até 1100 kGy. A resistência das amostras aumentou com o aumento das doses, embora não se possa garantir a linearidade em virtude da incerteza nas medidas. Para doses acima de 1000 kGy o filme tende a se degradar dificultando qualquer medida elétrica.

- A Forma de disposição dos filmes nas amostras confeccionadas, quadradas ou em tiras, influencia na alteração da resistência elétrica. Para as amostras em tiras, notou-se o aumento da resistência independente do tipo de radiação utilizada. Já para as amostras quadradas foi identificada uma diminuição da resistência para as irradiadas no reator nuclear e um aumento para as irradiadas com gama. Uma possível justificativa é o fato das amostras em tiras terem menor largura sendo mais influenciadas por um eventual aumento de regiões de defeitos e deterioração do material dopante do que ao aumento do número portadores introduzidos pela radiação.

- Para irradiações com nêutrons e gama no reator nuclear, percebeu-se que em tempos maiores de exposição à radiação, os efeitos produzidos nas amostras são menos pronunciados, indicando uma correspondência entre a ampliação do número de portadores de carga e o crescimento de regiões de defeitos e centros de recombinação.

- Amostras de mesma forma geométrica e expostas a mesma dose apresentaram muitas vezes consideráveis diferenças nas variações de suas resistências. Um dos fatores que pode justificar essa diferença é a falta de uniformidade de distribuição do carbon black ao longo da matriz de polietileno além da presença de contaminantes como indicado na análise por espectroscopia. Outro fator que justifica a grande incerteza na variação média

da resistência das amostras é o desgaste do contato elétrico que muitas vezes tem de ser substituído, introduzindo uma incerteza associada.

- O índice α que relaciona o expoente de difusão com a dimensão das amostras quadradas foi calculado através da resistência média de todas as amostras antes e após a irradiação. Para praticamente todas as doses ele diminuiu após a irradiação. Isso mostra uma mudança estrutural permanente nas amostras pós-irradiação alterando a relação da resistência com a dimensão das amostras e uma diminuição no expoente de difusão (dw).

- As amostras tanto antes como após o processo de irradiação apresentaram valores de α que se aproximam de 0 ou de 1, correspondendo na literatura a sólidos amorfos euclidianos e a agregados de percolação, respectivamente. Embora isso possa sugerir uma falta de uniformidade na composição dos filmes, oferece indícios de que muitas análises minuciosas podem vir a serem feitas com a teoria dos fractais em trabalhos futuros com filmes dessa natureza.

- Devido a grande diversidade de formas alotrópicas que o carbono possui, a previsão do resultado da irradiação de amostras de carbono não é simples, sendo influenciada por diversos fatores difíceis de controlar experimentalmente. Sendo assim para estudos futuros dessa natureza, filmes de outros elementos podem obter melhores resultados.

REFERÊNCIAS

ABOU ZEID; MAGDA, M. **Radiation effect on properties of carbon black filled NBR/EPDM rubber blends**. Radiation Chemistry Department, National Center for Radiation Research and Technology, Cairo, 2007.

AHMED, S. N. **Physics and engineering of radiation detection**. 1. ed. San Diego: Elsevier, 2007.

BECKURTS, K. H.; WIRTZ, K. **Neutron physics**. 2. ed. New York: Springer-verlag, 1964.

CEMBER, H.; JOHNSON, T. **Introduction to health physics**. 4. ed. United States: McGraw-Hill, 2009.

CHKAOUI, K.; IZERROUKEN, M.; DJEBARA, M.; ABDESSELAM M. **Polyethylene terephthalate degradation under reactor neutron irradiation**. Radiation Physics and Chemistry, DOI: <http://dx.doi.org/10.1016/j.radphyschem.2016.10.002>, 2017.

COTTRELL, A. H. ; **Effects of neutron irradiation on metals and alloys**. International Materials Reviews: v. 1, p. 479-522, 1956.

COUTINHO, F. M. B.; MELLO, I. L. **Polietileno: Principais Tipos, Propriedades e Aplicações**. Polímeros: Ciência e Tecnologia: vol. 13, no 1, p. 1-13. Rio de Janeiro, 2003.

CURTISS, L. F. **An introduction to neutron physics**. New York: D. Van Nostrand Company, 1959.

EISBERG, R.; RESNICK.R. **Física Quântica: átomos, moléculas, sólidos, núcleos e partículas**. 29. ed. Rio de Janeiro: Campus, 2001.

ERVEDOSA, E. J. P. **Efeito da radiação neutrônica em compósitos de polietileno com carga de carbono**. Dissertação de mestrado, Departamento de Energia nuclear, UFPE, 2013.

GEFEN, Y.; MEIR, Y.; MANDELBROT, B. B.; AHARONY, A. **Geometric Implementation of Hypercubic Lattices with Noninteger Dimensionality by Use of Low Lacunarity Fractal Lattices.** Phys. Rev. Lett. **50**, 145, 1983.

GOMES, M. A. F.; HORA, R. R.; BRITO, V. P. **Electrical resistance of complex two-dimensional structures of loops.** Journal of Physics D: Applied Physics, vol. 44, n. 25, 2011.

GRIFFITHS, D. J. **Introduction to electrodynamics.** 3. ed. New Jersey: Prentice-Hall, 1999.

GRIFFITHS, D. J. **Introduction to quantum mechanics.** 2. ed. New Jersey: Prentice-Hall, 2005.

GRUBB, D. T. **Review Radiation damage and electron microscopy of organic polymers.** Journal of materials science, vol. 9, p. 1715-1763, 1974

GUTIERREZ, T. B. **Compact Modeling of Neutron Damage Effects in a Bipolar Junction Transistor, Electrical Engineering,** University of New Mexico, 1999.

HALLIDAY, D. ; RESNICK, R.; WALKER, J. **Fundamentos de Física.** 8 ed. v. IV. Rio de Janeiro: LTC, 2009

HALVIN, S.; BEN-AVRAHAM, D. **Diffusion in disordered media.** Advances in Physics, vol. 36, n. 695, 1987.

HARRISON, S. E.; COPPAGE, F. N.; SNYDER, A. W. **Gamma-Ray and neutron-induced conductivity in insulating materials.** Novo México: Sandia corporation, 1963.

HUGHES, D. J.; CHARPIE, R. A.; DUNWORTH, J. V. **Neutron cross sections.** London : Pergamon press, 1957

IAEA, International Atomic Energy Agency. **Neutron Monitoring for Radiological Protection.**, 1985, TRS nº 252.

ISICHENKO, M.B. **Percolation, statistical topography, and transport in random media.** Kurchatov Institute of Atomic Energy, Moscow , 1992.

KAPLAN, I. **Nuclear Physics.** 2. Ed. Rio de janeiro: Addison-Wesley publishing company, 1983.

KANG, P. H.; NHO, Y. C. **The Effect of Carbon Black on PTC Characteristics of Conductive Polyethylene/Carbon Black Composite.** Journal of Industrial and Engineering Chemistry, v. 7, p. 199-203, 2001.

KNOLL, G. F. **Radiation detection and measurement.** 3. ed. Ann Arbor: Wiley , 2000.

KOHJIVA, S.; KATO, A.; SHIMANUKI, J.; HASEGAWA, T.; IKEDA, Y. **Nanostructural observation of carbon black dispersion in natural rubber matrix by three dimensional transmission electron microscopy.** Journal of Materials Science, vol. 40, issue 9-10, p. 2553-2555, 2005.

KOUZES, T. R.; MCDONALD, J. C.; STRACHAN, D. M.; BOWYER, S. M. **Radiation detection and interdiction at U.S. borders.** New York : Oxford University Press, 2011.

LAMARSH, J. R. **Introduction nuclear reactor theory.** 3. ed. New Jersey: Prentice-Hall, 1966.

LEO, W. R. **Techniques for Nuclear and Particle Physics Experiments.** 2. ed. Lexington: Springer-verlag, 2009.

LETTINGTON, A. H. **Applications of Diamond-like carbon thin films.** Carbon, 1998, Vol. 36 p. 555-560.

LIANG, L.; RINALDI, R.; SCHOBBER, H. **Neutron Applications in Earth, Energy and Environmental.** New York: Springer, 2009.

LIU, G.; WANG, T.; XIE, E. **The irradiation studies on diamond-like carbon films.** Nuclear Instruments and Methods in Physics Research, 2002, Vol. 197 p. 107-113.

MADANI, M. **Influence of Gamma-Radiation on the Electrical Conductance of NR/IIR Conductive Blend during Swelling in Kerosene.** Radiation Physics Department, National Center for Radiation Research and Technology, Cairo, 2003.

HELINSK, E. H. M.; PARKER, G. A.; KNOLS, B. **Radiation biology of mosquitoes.** Malaria journal, Vol. 2 Suppl. 2, 2009.

MITESCU, C. D.; ALLAIN, M.; GUYON, E.; CLERC, J. P. **Electrical conductivity of finite-size percolation networks.** Journal of Physics A: Mathematical and General, Vol. 15, n. 8, 1979.

MODINE, F. A.; DUGGAL, A. R.; ROBINSON, D. N.; CHURNETSKI, E. L.; BARTKOWIAK, M.; MAHAN, G. D.; LEVINSON, L. M. **Electrical properties of polyethylene highly filled with carbon.** Journal of Materials Research, v. 11, p. 2889-2894, 1996.

NORMAND, J. M.; HERRMANN, H. J.; HAJJAR, M. **Precise Calculation of the Dynamical Exponent of Two-Dimensional Percolation.** Journal of statistical physics, Vol. 52, 1988.

OLIVEIRA, I. S.; DE JESUS, V. L. B. **Introdução à física do estado sólido.** São Paulo: Editora livraria da física, 2005.

PHILLIPS, D. C. **The effects of radiation on electrical insulators in fusion reactors.** United Kingdom Atomic Energy Authority HARWELL, Oxfordshire, 1978.

RAUCH, H.; ZEILINGER, A. **Hydrogen transport studies using neutron radiography.** Atomic Energy Review, Viena 1977.

RADWAN, R. M. **High gamma dose response of the electrical properties of polyethylene terephthalate thin films.** Radiation Physics Department, National Center for Radiation Research and Technology, Cairo, 2007

SANJINÉS, R.; ABAD, M. R.; VÂJU, CR.; SMAJDA, R.; MIONIC, M.; MAGREZ, A. **Electrical properties and applications of carbon based nanocomposite materials: An overview.** Surface & Coatings Technology, 2011, Vol. 206, p. 727-733.

SILVA, S. R. P.; CAREY, J. D.; KHAN, R. U. A.; GERSTNER, E.G.; ANGUITA, J. V. **Amorphous carbon thin films.** Handbook of thin films, Los Angeles: Academic Press, 2002, Vol. 4.

STANLEY, H. E.; **Application of fractal concepts to polymer statistics and to anomalous transport in randomly porous media.** Journal of statistical physics, Vol. 36, Nos 5/6, 1984.

TAWALBEH, T. M.; SAQ'AN, S.; YASIN, S. F.; ZIHLIF, A. M.; RAGOSTA, G. **Low temperature electrical conductivity of low-density polyethylene/carbon black composites.** Journal of Materials Science Materials in Electronics, v. 16, p.351-354, 2005.

THOMPSON, M. W. **Defects and Radiation Damage in Metals**. London: Cambridge University Press, 1969.

THONGRUANG, W.; BALIK, C.M.; SPONTAK, R. J. **Volume-Exclusion effects in polyethylene blends filled with carbon black, graphite, or carbon fiber**. Journal of Polymer Science: Part B: Polymer Physics, v. 40, p. 1013–1023, 2002.

TURNER, J.E. **Atoms, Radiation, and Radiation Protection**. 3. ed. New York: Wiley, 2007.

VAN DE VOORDE, M. H. **Effects of radiation on materials and components**. European Organization for Nuclear Research CERN, Academic training programe. Geneva, 1970.

WEBSTER, J. G. **The Measurement, Instrumentation and Sensor Handbook**, CRC and IEEE Press, 1999.

VOSS, R. F. **The fractal dimension of percolation cluster hulls**, IBM Thomas J Watson Research Center. Yorktown Heights, 1984.

ZHANG, W.; DEHGHANI-SANIJ A. A.; BLACKBURN, R. S. **Carbon based conductive polymer composites**. Journal of Materials Science, v. 42, p. 3408-3418, 2007.

ZHOU, P. ; YU, W. ; ZHOU, C. ; LIU, F. ; HOU, L. ; WANG, J. **Morphology and Electrical Properties of Carbon Black Filled LLDPE/EMA Composites**. Journal of Applied Polymer Science, v.103, p.487-492, 2007.