

MEIA-VIDA DE FISSÃO ESPONTÂNEA DO URÂNIO-238 E UMA
PROVÁVEL NOVA FORMA DE RADIOATIVIDADE.

TESE DE MESTRADO

por

IRACI OLIVEIRA DE SOUZA

95823



539.762
S729

CENTRO BRASILEIRO DE PESQUISAS FÍSICAS

T73
S729

1975

Í N D I C E

	Página
RESUMO	i
SUMMARY	ii
AGRADECIMENTO	iii
INTRODUÇÃO	1
<u>CAPÍTULO I</u> - ASPECTOS TEÓRICOS	11
1.1 - O Modelo da Gota Líquida	17
1.2 - Canais de Fissão; Hipótese de A.Bohr	19
1.3 - Fissão Espontânea de Núcleos	21
1.4 - Uma Estimativa Semi-Empírica para a Meia-vida de Fissão Espontânea do ^{236}U	24
<u>CAPÍTULO II</u> - PROCEDIMENTO EXPERIMENTAL	24
2.1 - Considerações Gerais	25
2.2 - Preparação das Películas	27
2.3 - Armazenamento das Películas	28
2.4 - Revelação	31
2.5 - Contagem dos Eventos	32
2.6 - Medida dos Alcances	34
<u>CAPÍTULO III</u> - RESULTADOS EXPERIMENTAIS. DISCUSSÕES	34
3.1 - Tratamento dos Dados	34

	Página
3.2 - Resultados Obtidos	36
3.3 - Discussão dos Resultados	37
3.3.1 - Fissão Espontânea	38
3.3.2 - Traços de Curto Alcance	40
3.4 - Emissão Espontânea de íons Pesados Urânio ...	43
3.4.1 - Energética de Emissão de íons Pesados pelo Urânio	47
3.4.2 - Probabilidade de Emissão Espontânea de Nuclídeos pelo ^{238}U	49
3.5 - Conclusão	55
REFERÊNCIAS	57
RELAÇÃO DAS FIGURAS.....	63
TABELAS	67
FIGURAS	72
Figuras do Capítulo I	72
Figuras do Capítulo II	77
Figuras do Capítulo III	79

R E S U M O

A meia-vida de fissão espontânea do ^{238}U é reinvestigada utilizando uma técnica especial de emulsão nuclear desenvolvida anteriormente em nosso laboratório, a qual permite perfeita visibilidade dos traços de fragmentos de fissão na ausência total dos traços de partículas alfa e evita o "fading" da imagem latente.

Nestas condições, dois picos bem distintos são observados experimentalmente: um correspondendo ao bem conhecido alcance ($\sim 24 \mu\text{m}$) dos traços de fragmentos de fissão espontânea do ^{238}U e outro evidenciando traços de curto alcance ($\sim 10 \mu\text{m}$).

Para a meia-vida de fissão espontânea do ^{238}U o nosso resultado é de $(6,0 \pm 0,4) \times 10^{15}$ anos, em bom acordo com os valores obtidos por alguns autores que empregaram diferentes métodos experimentais.

Uma análise teórica sistemática mostra ser possível a emissão espontânea pelo ^{238}U de nuclídeos com número de massa entre ~ 20 e 70 . As energias cinéticas calculadas para esses nuclídeos são compatíveis com os alcances dos traços curtos observados em nossa experiência. A partir dos dados experimentais, atribui-se uma meia-vida de $(2 \pm 1) \times 10^{15}$ anos para todos os modos de emissão envolvidos nesse processo.

S U M M A R Y

The ^{238}U spontaneous fission half-life is reinvestigated using a special nuclear emulsion technique previously developed in our laboratory. A perfect visualisation of the fission fragments tracks in the total absence of alpha particle tracks was obtained with the present method that also avoids the fading of the latent image.

Under these conditions, two well defined peaks are observed experimentally: one corresponding to the well - known range ($\sim 24 \mu\text{m}$) of the ^{238}U fission fragments tracks and the other showing evidence of short range tracks ($\sim 10 \mu\text{m}$).

For the ^{238}U spontaneous fission half-life our result is $(6.0 \pm 0.4) \times 10^{15}$ y, in good agreement with the values obtained by some other workers using different experimental methods.

A systematic theoretical analysis shows that the ^{238}U spontaneous emission of nuclides with mass number between ~ 20 e 70 is possible. The kinetic energies calculated for these nuclides are found to fit the short range tracks observed in our experiment. From the experimental data, we attribute a $(2 \pm 1) \times 10^{15}$ y half-life for all modes of emission involved in this process.

AGRADECIMENTO

Agradeço:

Ao Prof. HERVÁSIO GUIMARÃES DE CARVALHO pela idéia sugerida e orientação prestada.

Ao pesquisador ODILON ANTONIO PAULA TAVARES pela ajuda nos mínimos detalhes em mais um trabalho da Divisão de Física da Fissão e Radioatividade.

Aos Profs. JADER BENUZZI MARTINS, HÉLIO SCHECHTER, SÉRGIO MURILO CALZAVARA ALVES e RUI ALBERTO MIRA DOS SANTOS NAZARETH pelos debates proveitosos.

Ao Prof. JAMES RAYFORD NIX pelo esclarecimento em alguns detalhes deste trabalho.

À HILDA VIEIRA DA SILVA, LUCY FERREIRA DOS REIS, LÉSIA HRZHORCZUK e LUIZA FERREIRA DA ROSA pelo excelente trabalho de microscopia.

À calculista CELESTE AIDA BRITO LOPES pela colaboração nas diversas fases de cálculo.

À desenhista HORTÊNCIA DE AGUIAR VERÇOSA pela confecção dos gráficos.

Aos membros da Divisão de Computador do Centro Brasileiro de Pesquisas Físicas pela execução dos programas.

À equipe da Biblioteca do Centro Brasileiro de Pesquisas Físicas pela colaboração na procura de publicações indispensáveis a este trabalho.

À LAIS DE CARVALHO VENTURA pela parte de datilografia.

À equipe da gráfica da Comissão Nacional de Energia Nuclear.

As instituições:

Centro Brasileiro de Pesquisas Físicas
pela oportunidade de estudos de pós-graduação e do desenvolvimento na pesquisa científica.

Comissão Nacional de Energia Nuclear, Conselho Nacional de Pesquisas pela ajuda financeira concedida através de bolsas durante os anos de minha formação científica.

À todos que direta ou indiretamente, deram sua contribuição para a concretização deste trabalho.

INTRODUÇÃO

O objetivo do presente trabalho é determinar a meia-vida de fissão espontânea do ^{238}U . Apesar dos inúmeros resultados já existentes na literatura, as discrepâncias entre eles nos levou a refazer tal medida. Utilizamos uma técnica especial de emulsão nuclear que permite uma discriminação completa entre os traços de fragmentos de fissão e os traços de partículas alfa.

Um breve histórico e uma discussão da situação atual da fissão espontânea mostram a importância e necessidade dessa investigação.

Os primeiros trabalhos sobre radioatividade natural e reações nucleares demonstraram haver no núcleo atômico energia em abundância. O uso dessa energia, no entanto, se tornava difícil devido a pequena quantidade desses elementos radioativos na crosta terrestre, com relação às reações nucleares, a energia por elas liberada era muitas ordens de grandeza menor que a gasta para produzi-las. Para a utilização da energia nuclear, era necessário primeiramente encontrar uma reação que pudesse ser estabelecida e mantida como um processo auto-consistente, isto é, encontrar uma reação nuclear em cadeia. Apesar das hipóteses existentes relacionando a energia liberada nas estrelas com reações nucleares em cadeia, não havia naquela época condições de se estabelecer um processo de tal tipo em laboratório.

Em dezembro de 1938 apareceu a primeira informação da descoberta, por Hahn e Strassmann⁽¹⁾, da fissão do núcleo de urânio,

induzida por neutrons. Logo depois, os trabalhos de Meitner e Frisch⁽²⁾ e Joliot⁽³⁾ não somente confirmaram esta descoberta como também mostraram que a fissão do urânio por neutrons lentos liberava uma energia superior a dez vezes a liberada em qualquer outra reação nuclear. Outro ponto importante era que a divisão de um núcleo pesado produzia dois núcleos intermediários com excesso de neutrons e, dessa forma, alguns neutrons poderiam ser liberados no processo. Exatamente esse aspecto da fissão abria possibilidade de produzir uma reação nuclear em cadeia. Para estimar a possibilidade de uma tal reação no urânio, era extremamente importante descobrir se (e quantos) neutrons eram emitidos na fissão, e também quais dos isótopos do urânio seriam induzidos à fissão por neutrons lentos. A resposta a essas perguntas foi encontrada independentemente como resultado de experiências realizadas quase simultaneamente em vários laboratórios⁽⁴⁻⁷⁾.

O estabelecimento, na prática, de tal reação em cadeia por neutrons lentos requeriria uma grande quantidade de ^{235}U . Não havia, àquela época, métodos de enriquecimento para separação de tal quantidade de ^{235}U da mistura natural dos três isótopos. Permanecia uma questão em aberto -- se havia possibilidade de se estabelecer uma reação com neutrons rápidos usando uma massa considerável de urânio natural metálico. A resposta a essa questão dependeria da seção de choque de espalhamento inelástico de neutrons rápidos por urânio, nesse caso um processo competitivo com a fissão. Para maior conhecimento desses processos era necessário o uso de detectores de neutrons muito mais sensíveis que os normalmente usados nas

câmaras de fissão. O desenvolvimento de um tal detector, uma câmara de fissão "especial", não só respondeu a questão da possibilidade de uma reação em cadeia em urânio metálico normal, como também levou à descoberta de uma nova forma de radioatividade - a fissão espontânea dos núcleos de urânio.

Quando Bohr e Wheeler⁽⁸⁾, em 1939, propuseram uma justificação teórica para o mecanismo da fissão nuclear já previram o fenômeno da fissão espontânea.

As primeiras experiências com o propósito de determinar a estabilidade dos núcleos de urânio e tório em relação à fissão espontânea, foram realizadas em maio de 1939 por Libby⁽⁹⁾ que não foi bem sucedido em detectar tal radioatividade. Partindo de resultados negativos, obteve um limite inferior de 10^{14} anos para a meia-vida de fissão espontânea do urânio e tório.

Nas primeiras experiências para contagem de fragmentos de fissão utilizando a câmara especial já mencionada, Petrzhak e Fleurov⁽¹⁰⁾ observaram pulsos mesmo na ausência de uma fonte de neutrons. O número desses pulsos não foi grande (cerca de 6 por hora), mas seu número e forma coincidiram com aqueles observados no caso de fragmentos de fissão do urânio induzida pelos neutrons. Foram, então, empreendidas experiências cuidadosas para estabelecer a presença desses pulsos "espontâneos".

Primeiro, foi suposto que o efeito observado não estava relacionado com a presença do urânio na câmara de ionização e era resultado de pulsos ao acaso ocorrendo no circuito eletrônico. Esta suposição não foi confirmada, já que nenhum pulso foi registrado

numa longa experiência com uma câmara sem óxido de urânio. Entretanto, não foi excluída a hipótese de que pulsos "espontâneos" poderiam ocorrer como resultado do acúmulo de pulsos de partículas alfa. Sabia-se que o número de tais acúmulos dependia fortemente da intensidade das partículas alfa. Foi introduzida na câmara de ionização emanção de tório em quantidade tal que a intensidade de partículas alfa fosse duas vezes maior que a de urânio. Nessa experiência nenhum aumento do efeito foi observado, sendo portanto excluída a probabilidade de acúmulo de pulsos de partículas alfa pelo poder de resolução do amplificador.

Também, por experiências especialmente controladas, ficou estabelecido que pulsos "espontâneos" do tipo "fissão" não seriam explicados por descargas na superfície do óxido de urânio ou amplificação no gás.

Uma série de experiências confirmou a hipótese de que o efeito registrado estava relacionado à fissão do urânio. Primeiramente foi estudada a dependência da intensidade do efeito com a espessura da camada de óxido de urânio. Foram feitas experiências em câmaras com diferentes espessuras da camada de urânio. O resultado foi que as intensidades dos pulsos "espontâneos" para essas câmaras eram proporcionais às taxas de contagem de fragmentos de fissão quando as câmaras eram irradiadas pelo mesmo fluxo de neutrons. Tal resultado seria coerente se o efeito fosse devido à fragmentos de fissão do urânio. Essa conclusão foi cada vez mais confirmada quando a distribuição dos misteriosos pulsos foi medida. A distribuição dos tamanhos dos pulsos do tipo fissão na ausência de uma fonte

de neutrons praticamente coincidiu com a de fragmentos de fissão por irradiação com neutrons. O conjunto desses resultados possibilitou chegar à conclusão de que os pulsos "espontâneos" vinham dos fragmentos de fissão do urânio.

Restava apenas um ponto a ser explicado: é a fissão "espontânea" observada num processo espontâneo ou tem alguma causa externa? Por exemplo, poder-se-ia supor que o efeito observado era produzido por neutrons formados na câmara como um resultado da desintegração de núcleos leves por partículas alfa do urânio. Entretanto, os dados conhecidos concernentes às taxas de neutrons de reações nucleares mostravam que a intensidade da radiação neutrônica que apareceu na câmara era inteiramente insuficiente para produzir tal efeito.

O aparecimento de um pequeno número de fragmentos na câmara de ionização seria explicado pela ação de raios cósmicos no urânio. As informações disponíveis a respeito da intensidade da radiação cósmica e da seção de choque para sua interação com núcleos mostrava que essa explicação não poderia ser excluída. Todavia, para demonstrar experimentalmente o fato de que os fragmentos "espontâneos" não eram causados por raios cósmicos, foram feitas experiências a 50 metros de profundidade. Embora a intensidade da radiação cósmica a uma tal profundidade tenha sido reduzida aproximadamente 40 vezes, o efeito da fissão "espontânea" ainda era o mesmo que na superfície. Todas essas numerosas experiências e diferentes tipos de controle de medidas levaram à conclusão que o urânio sofre fissão espontânea.

A etapa seguinte foi a de estabelecer qual dos isótopos de urânio fissionava espontaneamente. Da taxa de fissão medida em quantidade conhecida de urânio, calcularam as meias-vidas usando várias hipóteses quanto ao número de massa do isótopo.

Investigações posteriores mostraram que o efeito de fissão observado estava associado ao isótopo de urânio de número de massa 238.

Fissão espontânea é um fenômeno importante não só como um tipo particular de reação nuclear como também por seu relacionamento a diferentes campos científicos. Permite a determinação de parâmetros nucleares fundamentais dando melhores informações a respeito do núcleo do que a fissão induzida. Em Astrofísica a emissão de luz de supernovas do tipo I tem sido ligado à meia-vida de fissão espontânea do ^{254}Cf . Em particular, explosões de tais estrelas constituem uma fonte de formação dos elementos. Em Geofísica, contribui para determinação da origem dos minerais. A fissão espontânea do urânio conduz à acumulação de certos isótopos, tendo por isso notável influência na distribuição desses isótopos na crosta da terra. O ^{136}Xe é, dentre eles, o de maior interesse por ser pequena a sua abundância na natureza e, ao mesmo tempo, um dos mais prováveis produtos de fissão do urânio. Uma medida da taxa de concentração desse isótopo em certos minerais é um método potente para o estudo da origem de tais minerais.

No estudo do fenômeno da fissão nuclear deparamos com dois problemas: um diz respeito a taxas absolutas de diferentes casos de fissão (que espécie de núcleo, sob que condições e que quantidade

de eventos de fissão é observada) e o outro diz respeito a probabilidades relativas de diferentes modos de fissão (para determinado núcleo, como se dividirá sua massa, sua carga, sua energia e como esses processos variam com as condições de fissionabilidade).

Em 1944, Pevzner e Flerov repetiram a tentativa de Libby⁽⁹⁾ de detectar fragmentos de fissão espontânea por método radioquímico⁽¹¹⁾. Foram bem sucedidos separando os isótopos radioativos ^{133}I e ^{135}I devido a maior sensibilidade do método, comparado ao de Libby.

Diferentes técnicas tem sido usadas na determinação da meia-vida de fissão espontânea de diversos nuclídeos. No caso particular do ^{238}U , a emulsão nuclear foi utilizada duas vezes na determinação de sua meia-vida. A primeira, em 1947, por Perfilov⁽¹²⁾ que usou a emulsão nuclear como detector dos fragmentos de fissão emitidos por uma fonte externa de urânio. A exposição foi feita usando filmes de U_3O_8 de 0,924 mg por cm^2 . O filme era separado da superfície da emulsão por 1,5 mm de ar à pressão de 1 mm de Hg. A ação dos neutrons foi eliminada usando cadmio como absorvedor e a dos raios cósmicos mantendo a emulsão a 50 metros de profundidade. O valor $(13 \pm 2) \times 10^{15}$ anos foi determinado para a meia-vida de fissão espontânea do ^{238}U . A segunda, em nosso laboratório⁽¹³⁾, mediante a técnica de incorporar urânio à emulsão. Esse processo permite, além de uma eficiência de 100% na detecção dos fragmentos de fissão, uma alta concentração de urânio por grama de emulsão seca (~ 21 mg/g).

Segrè⁽¹⁴⁾, durante a 2ª Guerra Mundial, fez medidas da fissão

espontânea em vários nuclídeos dentre os quais o ^{238}U . A princípio as experiências consistiram em colocar uma fina camada do material a ser investigado em uma câmara de ionização ligada a um amplificador apropriado e a circuitos registradores. Os nuclídeos por eles estudados tinham meias-vidas tão longas para fissão espontânea que grande atenção devia ser dada à discriminação entre pulsos de partículas alfa (em número suficientemente grande), a efeitos de "background", e a possível fissão induzida por neutrons. Também as perdas por auto-absorção deveriam ser grandes. Essas dificuldades são bastante reduzidas no caso de elementos mais pesados. Em particular, o estudo de fissão espontânea do Califórnio e Férnio é comparativamente fácil. Por exemplo, ^{252}Cf e ^{254}Fm tem taxas de decaimento por fissão espontânea que são pequenas porcentagens da taxa de decaimento alfa e ^{256}Fm e ^{254}Cf decaem principalmente por fissão espontânea. Para tais nuclídeos, a medida da taxa de fissão espontânea é uma rotina de método de detecção e medida.

A fissão espontânea também pode ser detectada e determinada quantitativamente por análise radioquímica dos seus produtos. Esse estudo é bastante difícil quando se deseja estudar fissão espontânea com meia-vida da ordem de 10^{16} anos. Os produtos de fissão que devem ser encontrados em massas consideráveis de urânio (ordem de quilograma) dão taxas de contagens que são ainda extremamente baixas. Essas dificuldades podem ser ilustradas por exemplo pelos trabalhos de Parker e Kuroda^(15,16). A quantidade de ^{99}Mo isolado de 3420 g de nitrato de uranila purificado deu somente uma contagem por minuto. Trabalho radioquímico semelhante foi feito para ^{131}I ,

^{132}I , ^{133}I , ^{134}I e ^{135}I por Ashizawa e Kuroda⁽¹⁷⁾. O ^{140}Ba separado de 4500 g de acetado de uranila deu, segundo Kuroda e Edwards⁽¹⁸⁾, $1,6 \times 10^{-14}$ contagens por minuto por grama de ^{238}U .

Recentemente, a meia-vida de fissão espontânea do ^{238}U foi medida através de um novo tipo de detector - o "spinner". Seu princípio consiste em produzir pressões negativas em um líquido por meio de forças centrífugas. O estado metaestável assim criado pode ser destruído por deposição de energia local de partículas nucleares. Galliker et al.⁽¹⁹⁾ através desse método encontraram $(8,19 \pm 0,06) \times 10^{15}$ anos. Esse valor é intermediário aos valores $(7,19 \pm 0,16) \times 10^{15}$ anos encontrado por Ishimori et al.⁽²⁰⁾ e $(11 \pm 2) \times 10^{15}$ anos encontrados por Condé e Holmberg⁽²¹⁾.

Fragmentos de fissão produzem em vidro, makrofol, mica, quartzo e outros minerais, traços (trail of radiation damage) que, uma vez gravados quimicamente por meio de ácidos ou bases, podem ser observados ao microscópio ótico. Esse método de detecção foi usado por Fleischer e Price⁽²²⁾, Roberts et al.⁽²³⁾ e, recentemente por Leme et al.⁽²⁴⁾.

Na tabela I reunimos todos os resultados das medidas de meia-vida da fissão espontânea do ^{238}U obtidos através diferentes técnicas.

Devido às discrepâncias existentes entre os inúmeros resultados, faz-se necessário uma reinvestigação dessa medida. No presente trabalho utilizamos películas de emulsão nuclear com exposição total cerca de 10 vezes maior do que as utilizadas anteriormente em nosso laboratório⁽¹³⁾.

No Capítulo I apresentamos aspectos teóricos a respeito

da fissão espontânea.

Descrevemos no Capítulo II o método experimental utilizado na determinação da meia-vida do elemento em estudo.

Os resultados por nós obtidos, as discussões e as conclusões a que chegamos são apresentados no Capítulo III.

CAPÍTULO I

ASPECTOS TEÓRICOS

Desde a descoberta da fissão nuclear induzida⁽¹⁾ e da espontânea⁽¹⁰⁾ que esse novo tipo de reação nuclear vem sendo investigado. As primeiras experiências logo revelaram que quando núcleos de urânio sofrem fissão uma grande quantidade de energia é transformada em energia cinética dos fragmentos^(3,25). Exatamente esse aspecto tem tornado possível observar o processo diretamente, seja parcialmente pelo grande poder de ionização dos fragmentos nucleares, seja pelo poder de penetração desses fragmentos que permitem de modo mais eficiente separar o urânio dos novos núcleos formados pela fissão^(2,3,26). Esses produtos são caracterizados por suas específicas atividades beta que permitem suas identificações radioquímicas e espectrográficas. Além disso, o processo de fissão é acompanhado de emissão de neutrons, alguns diretamente ligados ao processo de fissão e outros que competem com imediatas desintegrações beta dos fragmentos nucleares.

1.1 - O Modelo da Gota Líquida

A fissão de um núcleo em dois fragmentos de massas comparáveis pode ser efetuada somente como um resultado do movimento coletivo de um grande número de nucleons do núcleo. Na época em que a fissão foi descoberta, o único modelo nuclear que levava em

Conta o movimento coletivo dos nucleons era o modelo da gota líquida. Então, após a descoberta da fissão nuclear, Meitner e Frisch⁽²⁾ propuseram considerar esse processo como a fissão de uma gota líquida carregada. Basicamente o modelo se resume no seguinte: a interação entre os nucleons dentro do núcleo é regida pelas forças coulombiana e nuclear; a forma assumida pelo núcleo representa um balanço entre as forças nucleares manifestando-se sob a forma de uma tensão superficial, e as forças coulombianas repulsivas.

Uma gota adquirindo energia pode vibrar e deformar-se. Isso aumenta a superfície da gota, conseqüentemente aumenta a energia superficial o que faz a gota retornar ao seu estado inicial. Por outro lado, as forças coulombianas tendem a aumentar a distorção. Se a força eletrostática tornar-se maior que a força de superfície, a deformação aumentará e eventualmente a gota poderá dividir-se em dois ou mais fragmentos.

Para a maioria dos núcleos com pequena energia de excitação a força de superfície é muito maior que a força coulombiana e um pequeno desvio da forma estável é logo anulado pela liberação da energia de excitação em forma de raios gama ou emissão de nucleons. Somente os elementos muito pesados têm uma carga protônica suficientemente grande de modo a fazer com que deformações pequenas possam levar o núcleo à fissão. Bohr e Wheeler⁽⁸⁾ e Frenkel⁽²⁷⁾ fizeram os primeiros cálculos quantitativos desse processo.

Uma descrição rigorosa da deformação arbitrária de uma gota líquida é um problema extremamente difícil. Por simplicidade,

apenas as deformações axialmente simétricas são consideradas por meio da expansão do raio vetor em polinômios de Legendre

$$R(\theta) = \frac{R_0}{\lambda} \left[1 + \sum_{n=1}^N \alpha_n P_n(\cos \theta) \right] \quad (I-1)$$

onde os N coeficientes α_n ($n = 1, \dots, N$) determinam a forma da gota, e o parâmetro λ apenas normaliza seu volume ao valor inicial $4/3 \pi R_0^3$.

Pode-se mostrar que:

Energia superficial, $E_S = E_S^0 (1 + 2/5 \alpha_2^2) +$ potências mais altas de α_2 .

Energia eletrostática, $E_C = E_C^0 (1 - 1/5 \alpha_2^2) +$ potências mais altas de α_2

onde E_S^0 e E_C^0 referem-se à esfera sem distorção. Logo a energia de deformação,

$$\Delta V = V - V^{\text{esfera}} = (E_S - E_S^0) + (E_C - E_C^0), \quad (I-2)$$

torna-se
$$\Delta V = 1/5 \alpha_2^2 (2 E_S^0 - E_C^0) \quad (I-3)$$

desprezando as potências mais altas de α_2 por se tratar de pequenas deformações. Então uma gota esférica carregada é estável a deformações do tipo $\alpha_2 P_2(\cos \theta)$ se $2E_S^0 > E_C^0$ e instável se $2E_S^0 < E_C^0$.

Se gradualmente carregamos uma gota, ao atingirmos o ponto onde $E_C^0 = 2E_S^0$ a gota tornar-se-á instável e se dividirá espontaneamente.

Isso pode ser expresso em termos de um parâmetro de fissionabilidade introduzido por Bohr e Wheeler⁽⁸⁾ e definido como

$$\chi = \frac{E_C^0}{2E_S^0} = \frac{3/5 (Ze^2/R_0)}{2.4\pi R_0^2 \epsilon_0} = \frac{3e^2}{40\pi r_0^3 \epsilon_0} \frac{Z^2}{A} \quad (I-4)$$

onde r_0 e ϵ_0 são as constantes nas expressões relacionando o raio nuclear e a energia de superfície com o número de massa, $R_0 = r_0 A^{1/3}$ e $E_S = 4\pi r_0^2 A^{2/3} \epsilon_0$, respectivamente, e Z , e e A são o número de prótons do núcleo, a carga do elétron e o número de massa do núcleo, respectivamente.

O parâmetro de fissionabilidade χ é, nesta aproximação, proporcional a Z^2/A . Sua importância no processo de fissão está em que à medida que $\chi \rightarrow 1$, maior a tendência do núcleo dividir-se.

A fórmula geral para a diferença de energia entre n fragmentos iguais no infinito e a gota original é

$$\Delta V_n | E_S^0 = (n^{1/3} - 1) + 2\chi(n^{-2/3} - 1) \quad (I-5)$$

onde $\chi = E_C^0 / 2 E_S^0 = Z^2/A | (Z^2/A)_0$

e $(Z^2/A)_0 = 50$.

Essas diferenças de energia são colocadas na Fig. I.1 como funções de χ para diferentes valores de n .

Em $\chi = 0$ os valores positivos de ΔV_n correspondem a energia que deve ser dada a uma gota não carregada para provocar fissão. À medida que a carga da gota vai aumentando, a divisão em dois fragmentos iguais começa a liberar energia para $\chi > 0,35121$. Desse valor de χ em diante tornam-se exoérgicas as divisões em 3, 4, 5, 6, 7, 8 e 9 fragmentos.

A condição de instabilidade à fissão é satisfeita por núcleos em que $\chi \geq 1$, ou seja, $Z^2/A \geq (Z^2/A)_0$.

Uma análise mais detalhada da energia potencial da gota deformada em função das N variáveis \hat{a}_n torna possível encontrar a forma do núcleo à deformação crítica, que corresponde a menor energia potencial (energia potencial no ponto de sela). Bohr e Wheeler⁽⁸⁾ consideraram a deformação simétrica de uma gota líquida carregada limitando a expansão do raio vetor aos termos P_2 e P_4 . Com isso eles determinaram barreiras de fissão somente para núcleos em torno do limite de estabilidade $(Z^2/A)_0$. Mais tarde foram feitos cálculos para deformações nucleares simétricas correspondendo a um grande número de termos na expansão (I-3)⁽²⁸⁻³⁰⁾. Nos cálculos numéricos de Cohen e Swiatecki o número de termos, N , na expansão foi igual a 18, permitindo determinar a forma do núcleo a deformações simétricas críticas e as correspondentes barreiras para núcleos longe da estabilidade. Os valores calculados das barreiras de fissão podem ser aproximadamente representados por

$$E_f = 0,83(1 - \chi)^3 E_s^0 \quad \text{para } 2/3 < \chi < 1 \quad (I-6)$$

$$E_f = 0,38(0,75 - \chi) E_s^0 \quad \text{para } 1/3 < \chi < 2/3$$

As Figs. I.2 e I.3 mostram as barreiras calculadas por Cohen e Swiatecki e a correspondente forma do núcleo à deformação simétrica crítica para valores de χ .

Várias investigações foram feitas a respeito da estabilidade da forma simétrica de uma gota líquida carregada à deformação crítica, relativa à deformação assimétrica do tipo α_3 , α_5 etc. (28-30). Ficou constatado que a adição de uma componente assimétrica à deformação simétrica crítica da gota acarreta um aumento na energia potencial da gota quando $\chi > 0,39$. Então, no modelo da gota líquida, para núcleos com $\chi > 0,39$ a barreira potencial para deformações simétricas é a mais baixa barreira (ponto de sela).

Cohen e Swiatecki (29,30) calcularam também a energia potencial de dois elipsóides idênticos uniformemente carregados em contacto. Encontraram que, quando $\chi < 0,7$, a energia potencial mínima de um tal sistema corresponde aos valores calculados das barreiras de fissão e, a forma dos fragmentos no instante de separação é aproximadamente igual à forma dos fragmentos no ponto de sela, diferente no caso de núcleos pesados com $\chi < 0,7$, para os quais a forma do núcleo, à deformação crítica (Fig. I.3), difere muito da de dois elipsóides em contacto.

Strutinski et al. (31,32), resolvendo a equação variacional para a superfície de uma gota líquida, minimizando a energia po

tencial da gota a cada estágio de sua deformação, encontraram que durante todo o curso até a separação da gota o mínimo de sua energia potencial corresponde à configuração simétrica da gota, com excessão dos núcleos com $\chi = 0,8$, para os quais, à deformação crítica é possível aparecer uma instabilidade à deformação assimétrica⁽³²⁾. Nesses cálculos foi encontrado que a forma do núcleo no ponto de sela e as barreiras de fissão estão próximas dos valores obtidos por Cohen e Swiatecki^(29,30). Uma variante do cálculo da deformação nuclear considerando a tensão superficial como variável que depende da curvatura da superfície do núcleo foi empreendido por Strutinski⁽³²⁾. Encontraram eles que os valores calculados para a configuração nuclear no ponto de sela (mais precisamente, os valores do momento de inércia) concordam melhor com os valores experimentais do que os valores calculados para um núcleo com uma tensão superficial constante.

1.2 - Canais de Fissão: Hipótese de A. Bohr

De acordo com Bohr e Wheeler⁽⁸⁾, a probabilidade de fissão nuclear por unidade de tempo, A_f , é determinada pela razão entre o número de estados do núcleo à deformação crítica, N_f , (que podem ser obtidos a uma dada energia de excitação) e o número de estados do núcleo inicial,

$$A_f = \Gamma_f/h$$

(I-7)

$$\Gamma_f = D/2\pi \cdot N_f$$

onde Γ_f é a largura de fissão do nível em consideração e D é a distância média entre os níveis do núcleo composto.

Considerando a fissão através de um tratamento quântico em que os fragmentos atravessam a barreira de potencial, Hill e Wheeler⁽³³⁾ ligaram a probabilidade de fissão nuclear à diferença entre a energia de excitação nuclear, E , e a altura, E_f , de uma barreira parabólica (curva da energia potencial de um oscilador harmônico) mediante a seguinte expressão:

$$\langle \Gamma_f \rangle = \frac{D}{2\pi} \left[\frac{1}{1 + \exp [2\pi (E_f - E)/h\omega]} \right], \quad (I-8)$$

onde ω é a frequência característica do oscilador harmônico.

A expressão entre chaves (penetrabilidade da barreira) é igual a 0,5 para uma energia de excitação nuclear $E = E_f$ e cai exponencialmente com o decréscimo de E , tornando-se igual a 1 quando a energia de excitação do núcleo é muito maior que a altura da barreira. Na forma mais geral, o valor médio da largura de fissão de um número de níveis fortemente ligados de um núcleo composto com spin I e paridade π é dado por⁽³⁴⁾.

$$\langle \Gamma_f^{I, \pi} \rangle = \frac{D^{I, \pi}}{2\pi} \sum_{\lambda} \frac{1}{1 + \exp [2\pi (E_{f, \lambda}^{I, \pi} - E)/h\omega]} = \frac{D^{I, \pi}}{2\pi} N_{ef} \quad (I-9)$$

onde o somatório é sobre todos os possíveis estados do núcleo no ponto de sela (canais de fissão) com spin I e paridade π , cada um dos quais tendo sua própria barreira de fissão $E_{f, \lambda}^{I, \pi}$ e, N_{ef} é o

número efetivo de canais de fissão.

Em 1955, A. Bohr⁽³⁵⁾ propôs que para uma energia de excitação nuclear não muito maior que a barreira de fissão, quando a maior parte da energia de excitação é transformada em energia de deformação nuclear, há para o núcleo no ponto de sela somente um pequeno número de estados admissíveis de fissão (canais de fissão). Propôs também ser o espectro de canais de fissão semelhante ao espectro de estados excitados do mesmo núcleo perto do equilíbrio, isto é, o espectro de estados correspondendo à excitação dos graus de liberdade coletivos do núcleo (rotacional e vibracional) e os graus de liberdade do nucleon.

A hipótese do canal de fissão mostrou bons resultados na explicação de muitos aspectos do processo de fissão, especialmente a dependência com a energia das seções de choque e a anisotropia angular da fissão nuclear.

1.3 - Fissão Espontânea de Núcleos

No caso de fissão espontânea de núcleos, também usamos o tratamento quântico de penetração através de uma barreira de potencial, como previsto por Bohr e Wheeler⁽⁸⁾. A penetrabilidade dos fragmentos através da barreira de potencial aumentaria, e a meia-vida dos núcleos em relação à fissão espontânea decresceria com o aumento do parâmetro de fissionabilidade Z^2/A , pois de acordo com o modelo da gota líquida, a barreira de potencial decresce neste caso. A Fig. I.4 mostra dados da dependência da meia-vida de fissão espontânea dos núcleos, $T_{1/2}$, com Z^2/A . A principal regularidade

observada nesta relação; como esperado pelo modelo da gota líquida, é o decréscimo de $T_{1/2}$ com o aumento de Z^2/A (ver Ref. 36). Entretanto, como visto na Fig. I.4, esta dependência não é universal: para isótopos par-par de um dado elemento, $T_{1/2}$ primeiro aumenta com o número de massa do isótopo (com o aumento do número de neutrons), alcança um máximo, e então decresce⁽³⁷⁾. Outro desvio da simples dependência está no aumento^(36,38), por um fator de 10^3 a 10^6 , de $T_{1/2}$ de núcleos com número de massa ímpar, comparado com núcleos par-par tendo mesmo valor do parâmetro Z^2/A . Ambos os desvios estão ligados, pelo menos aparentemente, ao fato de que a altura da barreira de fissão não depende somente de Z^2/A do núcleo, como previsto pelo modelo da gota líquida, mas também do excesso de neutrons do núcleo e de aspectos ligados à estrutura nuclear.

Na tentativa de explicar esses desvios da meia-vida, Swiatecki⁽³⁹⁾ obteve uma relação empírica entre $T_{1/2}$ e Z^2/A , na qual relacionou o desvio na $T_{1/2}$ do valor esperado de acordo com o modelo da gota líquida com o desvio δm da massa do núcleo em relação a calculada através o modelo da gota líquida. Essencialmente isto é uma correção de camadas aplicada somente ao estado fundamental enquanto o pico da barreira é suposto não ser afetado. Johanson⁽⁴⁰⁾ deu, em seu cálculo, um enfoque semelhante ao de Swiatecki e estudou variações locais com N e Z , das taxas de fissão espontânea (cf. também seu estudo da deformação de octupolo nuclear e mecanismo de fissão⁽⁴¹⁾). Contrariamente a Swiatecki⁽³⁹⁾, baseou sua estimativa dos efeitos de camada nas energias de "single particle" calculadas através do modelo de oscilador modificado^(42,43). Entre-

tanto, foi o cálculo de Strutinski⁽⁴⁴⁾ que introduziu um método geral e matematicamente bem definido de calcular energia potencial de superfície (aproximações macroscópica-microscópica) nos cálculos de barreira de fissão. Esse método é algumas vezes denotado por "normalização de Strutinski" ou método de correção de camada para a energia da gota líquida, usando níveis "single-particle" obtidos de um potencial de um corpo. Posteriormente cálculos mais completos da energia potencial superficial baseados no método de Strutinski⁽⁴⁴⁾ foram apresentados, por exemplo por Nilsson et al.^(45,46), Nix⁽⁴⁷⁾, Mosel e Schmitt⁽⁴⁸⁾, Scharnweber et al.⁽⁴⁹⁾ e Andersen et al.⁽⁵⁰⁾.

Convém assinalar que após tantos anos desde as comunicações de Hahn e Strassmann⁽¹⁾ e das interpretações de Meitner e Frisch⁽²⁾, virtualmente nenhum dos processos observados de fissão seja bem interpretado. O que se tem é uma vasta coleção de regras empíricas para ordenar dados, e uma variedade de modelos específicos que funcionam para alguns aspectos particulares mas falham para outros.

1.4 - Uma Estimativa Semi-Empírica para a Meia-vida da Fissão Espontânea do ^{238}U .

Como vimos nos parágrafos precedentes, a fissão espontânea pode ser tratada como um fenômeno quântico de penetração de barreira de potencial. Já em 1947, Frankel e Metrôpolis⁽²⁸⁾ deduziram, com base nestas idéias, uma equação que correlaciona a meia-

-vida com a altura da barreira de fissão e obtiveram o resultado

$$T_{1/2} \text{ (seg)} = 10^{-21} \cdot 10^{7,85 E_f \text{ (MeV)}} \quad (\text{I-10})$$

No entanto, nos últimos anos, tem sido mostrado que a meia-vida de um núcleo com respeito à fissão espontânea não é só de terminada pela sua barreira de fissão mas também pela inércia ou massa efetiva, associada à deformação nuclear. Por exemplo, Fiset e Nix⁽⁵¹⁾ apresentam o seguinte resultado para o cálculo da meia-vida de fissão espontânea

$$T_{1/2} \text{ (ano)} = 10^{-28,04} / P \quad (\text{I-11})$$

onde P é a penetrabilidade de barreira expressa por

$$P = \exp \left[- 2/h \int_{r_1}^{r_2} \left[2 B(r) (V(r) - E_0) \right]^{1/2} dr \right] \quad (\text{I-12})$$

onde $B(r)$ é a inércia, $V(r)$ é a barreira de fissão, E_0 é a energia de penetração, r_1 é o ponto de penetração na barreira e r_2 o de emergência.

Não é nosso propósito apresentar, neste ponto, um cálculo teórico de meia-vida pois numerosos trabalhos tem sido feitos neste sentido⁽⁵²⁻⁵⁴⁾. Embora os cálculos estejam modernamente bastante refinados, o resultado é que o acordo com os valores experimentais ainda é insatisfatório.

Para termos uma ordem de grandeza da meia-vida de fissão espontânea do ^{238}U , vamos considerar, numa aproximação grosseira, que a meia-vida dependa somente da barreira de fissão, como sugerido pela Eq. I-10. Assim, se construirmos um gráfico dos valores experimentais de meia-vida e barreira (Tabela I.1) para alguns elementos pesados (Fig. I-5) obtemos uma dependência entre o $\log_{10} T_{1/2}$ e a altura da barreira de fissão. Aplicando o método dos mínimos quadrados, obtém-se o seguinte resultado:

$$T_{1/2} \text{ (ano)} = 10^{(5,14536 E_f \text{ (MeV)} - 12,6578)} \quad (\text{I-13})$$

Obviamente observamos que as meias-vidas são extremamente sensíveis às barreiras de fissão. Por exemplo, uma variação de 10% na barreira acarreta uma variação de até 3 ordens de grandeza na meia-vida. De qualquer maneira, a Eq. I-13 pode ser usada para uma estimativa grosseira da meia-vida. Assim é que se usarmos os resultados experimentais de barreiras de fissão obtidos por Katz et al. ⁽⁵⁵⁾ (4,60 MeV), Koch et al. ⁽⁵⁶⁾ (5,08 MeV) e Halpern ⁽⁵⁷⁾ (5,80 MeV) a partir dos limiares de fotofissão, obtemos para a meia-vida de fissão espontânea do ^{238}U os valores 10^{11} anos, 10^{13} anos e 10^{17} anos, respectivamente. Esta estimativa semi-empírica pode ser confrontada com o resultado teórico de Randrup et al. ⁽⁵³⁾ que encontraram $\sim 10^{12}$ anos para a meia-vida de fissão espontânea do ^{238}U .

CAPÍTULO II

PROCEDIMENTO EXPERIMENTAL

Neste Capítulo será descrito o método experimental utilizado em nosso trabalho para a determinação da meia-vida de fissão espontânea do ^{238}U , uma técnica especial de emulsão nuclear cuja grande vantagem é poder registrar trajetórias de partículas num extenso intervalo de número de carga, número de massa e energia.

2.1 - Considerações Gerais

Em 1947, Perfilov⁽¹²⁾ usou emulsão nuclear para detectar os fragmentos de fissão espontânea do urânio natural proveniente de uma fonte externa. Desde então, as técnicas experimentais usadas para a medida da meia-vida de fissão espontânea tem sido as mais diversas, quais sejam a radioquímica, a câmara de fissão e o método "spinner" (ver Tabela I).

Em nosso laboratório, a técnica de emulsão nuclear já foi utilizada anteriormente num trabalho sobre medida da meia-vida de fissão espontânea do urânio⁽¹³⁾, diferindo do método de Perfilov pelo fato do urânio ter sido incorporado à composição da emulsão.

Uma das vantagens da utilização desse método é se poder incorporar à emulsão o elemento em estudo numa concentração tal (80 mg de U/cm³) que permite obter uma medida com boa estatística. Outra vantagem é que dessa forma, a emulsão se torna um detector

100% eficiente, não havendo perdas na detecção dos fragmentos de fissão.

No presente trabalho, utilizamos películas de emulsão nuclear com exposição total cerca de 10 vezes maior que a utilizada anteriormente em nosso laboratório.

2.2 - Preparação das Películas

Não fazendo parte da composição normal da emulsão, os elementos a serem estudados (no caso, urânio) necessitam a ela ser incorporados sem modificar apreciavelmente suas propriedades de registro. A esse processo de incorporação chamamos "carregamento" ou "carga". Essa incorporação pode ser feita através um dos dois processos mais usados: o do embebimento de placas ou películas por soluções aquosas contendo o elemento desejado ou o da fusão de emulsão nuclear em forma de gel a qual o elemento carga é adicionado também por soluções aquosas. Utilizou-se no presente trabalho placas ou películas preparadas pelo segundo processo.

A solução contendo o elemento carga deve ter as seguintes propriedades: não interferir apreciavelmente nas propriedades ionográficas da emulsão; não modificar as características mecânicas da gelatina nem atacá-la quimicamente; deve possuir pH próximo de 6,8 (como as emulsões nucleares Ilford), para evitar o desaparecimento dos centros de imagem latente ("fading") que ocorrem preferencialmente em soluções ácidas; evitar distorções; não permitir a produção de véu de fundo ("fog") que ocorre em pH alcalino; não de

ve conter compostos higroscópicos que impeçam as películas de mante-rem-se secas à atmosfera ambiente (58% de umidade relativa) e deve permitir facilmente a determinação precisa da concentração do elemento carga. A esta precisão está associada a precisão na medida da meia-vida do elemento em estudo.

Para obter a quantidade exata de urânio nas películas carregadas, nitrato de urânio hidratado ("Merck") com peso molecular de 502,18 foi pesado e dissolvido para a concentração desejada (135 mg de urânio por grama de solução) por adição de água destilada. Para a obtenção do pH desejado, isto é, cerca de 6,8, adicionou-se por grama de urânio, 1,32g de citrato de sódio di-hidratado mais 0,66 g de bicarbonato de sódio.

Uma vez preparada a solução, a determinação precisa da quantidade de urânio na emulsão foi feita com a seguinte técnica (59):

- 1 - pesou-se uma quantidade da solução de urânio em um frasco erlenmeyer de peso conhecido;
- 2 - pesou-se uma quantidade de gel adequada a uma carga de 80 mg de urânio por cm^3 de emulsão seca (sabendo-se que cerca de 11g de gel produzem 1 cm^3 de película seca);
- 3 - misturou-se gel e solução no erlenmeyer até completar homogeneização pela fusão da emulsão aquecida em um banho termostático a 55° C;
- 4 - colocou-se o fluido resultante em uma bandeja de lucite previamente nivelada;

- 5 - submeteu-se o fluido da bandeja e o retido no erlenmeyer à secagem numa câmara apropriada;
- 6 - uma vez secos, ambos foram pesados, feitas as devidas correções e em seguida a película foi cortada em pedaços de dimensões adequadas ao trabalho de microscopia. O conteúdo de urânio por grama de emulsão seca foi calculado a partir do peso total da emulsão e da concentração da solução. Admitiu-se ser homogênea a distribuição do urânio.

2.3 - Armazenamento das Películas

Para o acúmulo de um número suficiente de traços de fragmentos de fissão nas películas carregadas foi necessário longo tempo de armazenamento (no caso, um mínimo de 150 dias) para uma boa eficiência no trabalho de varredura ("scanning"). Nessas condições, porém, precauções tiveram que ser tomadas para evitar o "fading", quais sejam: armazenamento das películas à baixa temperatura e em atmosfera de nitrogênio seco e, para as películas de maior tempo de armazenamento foi feito um encapsulamento a vácuo.

A possibilidade de ocorrência de "fading" foi examinada no presente trabalho por meio da exposição de algumas películas a uma fonte de neutrons. Essas películas acumularam 20 a 200 vezes mais traços de fissão que as armazenadas para fissão espontânea. Uma dessas películas expostas foi imediatamente revelada e outras foram guardadas juntamente com as preparadas para medida de meia-vida de fissão espontânea, sob as mesmas condições. Após longo tempo de armazenamento (135, 208, 1538, 1548 e 3057 dias) uma película de

cada espécie foi revelada. Uma para contagem do número de traços de fissão espontânea e outra (exposta a neutrons) para contagem do número de traços de fissão induzida por neutrons mais fissão espontânea. Dentro de erros experimentais, nenhum "fading" de traços de fissão foi observado em nosso trabalho.

2.4 - Revelação

Como a razão entre o número de desintegrações alfa e o número de fissões espontâneas no urânio é maior que 10^6 e sendo longo o tempo decorrido entre a preparação e a revelação das películas carregadas, há a formação de um intenso fundo de partículas alfa ($\sim 10^9$ α/cm^2). Por isto, usou-se um tipo de emulsão nuclear pouco sensível (emulsão Ilford tipo K0) além de um método de revelação que permite uma perfeita discriminação entre os dois tipos de traços.

O tempo decorrido desde a imersão da película no revelador até o aparecimento dos primeiros grãos revelados de um traço é chamado tempo de indução. Um dos fatores que influem na resposta dos grãos ao revelador é a ionização específica da radiação. Os fragmentos de fissão são cerca de 30 vezes mais ionizantes que as partículas alfa. Para diferenciar traços resultantes de partículas de diferentes graus de ionização convém diminuir a velocidade de revelação, dilatando a escala de tempo tanto quanto possível. Obtém-se assim uma considerável diferença de densidade de grãos entre os traços revelados de partículas de diferentes graus de ionização.

Como os traços de fragmentos de fissão, no caso, são produzidos na presença de um intenso fundo de partículas alfa, ajus-

tou-se a revelação de tal forma que o tempo de indução para partículas alfa se tornou muito mais longo que o tempo necessário para completa revelação dos traços de partículas mais ionizantes (Fig. II-1). Essa dilatação no tempo de indução para traços de partículas alfa foi obtido tomando-se as seguintes medidas^(59,60):

- 1 - uso de emulsão de fino grão de baixa sensibilidade a partículas alfa (Ilford-K0);
- 2 - uso de baixa concentração do agente revelador (50 a 250 mg de amidol por litro);
- 3 - uso de um revelador com mínima quantidade de sulfito de sódio necessária para dar ao banho alguma proteção contra oxidação (no máximo 3 g por litro);
- 4 - repressão da revelação dos pequenos centros de imagem latente e diminuição da taxa de formação de véu ("fog") pela adição de 1,2 g de brometo de potássio;
- 5 - abaixamento da temperatura ao mínimo permitido por precipitação ou congelamento.

Baixa concentração e baixa temperatura são os fatores dominantes para difusão do revelador na emulsão nuclear. Isto é importante para evitar gradiente de revelação. Por isso, a emulsão foi inicialmente imersa em água a 5° C por tempo necessário para um pré-embecimento do líquido e retirada do material com o qual ela foi carregada; em seguida, adicionou-se o revelador, e as películas aí permaneceram por cerca de 3 horas e 3° C. A revelação foi com-

pletada ao elevar-se a temperatura do banho a 10° C permanecendo a esta temperatura pelo período de uma hora. Esse procedimento deve ser adotado sempre que se deseja obter películas reveladas sem distorções.

A composição do banho revelador satisfazendo as condições mencionadas anteriormente foi a seguinte:

ácido bórico	2 g
sulfito de sódio	3 g
brometo de potássio	1,2 g
amidol	200 mg
água destilada	1 litro

É importante salientar que como o amidol se oxida muito rapidamente em soluções diluídas, foi necessário preparar o banho revelador imediatamente antes de ser usado.

Após a revelação, as películas foram imersas durante duas horas num banho "stop" que tem ação frenadora na revelação e ao mesmo tempo facilita a eliminação do revelador por efeito de lavagem. Para evitar manchas, 5 g de sulfito de sódio por litro foram adicionadas ao banho "stop" frio (5° C) e ajustado o pH em torno de 4 com ácido acético.

A etapa seguinte foi a fixação a 5° C em um banho de 400 g/l de hiposulfito. Lavadas durante cerca de 24 horas em água corrente a 8° C, as películas foram postas em um banho de álcool (60%) por cerca de uma hora e então permitidas secar sobre suporte de vidro plano.

2.5 - Contagem dos Eventos

Na procura dos eventos ao microscópio, foram utilizadas oculares de aumento 6X e objetivas de 53X; nas medidas de alcance dos traços, foi usado o mesmo aumento nas oculares, porém objetivas de 100X.

Para impedir que um mesmo traço de fissão fosse contado ou medido mais do que uma vez e, também, para evitar perdas na contagem dos eventos, colou-se uma rede de referência à superfície da película. O sistema de coordenadas impresso na rede permitiu o mapeamento da posição dos traços de fissão encontrados pelos observadores. Da comparação dos mapas de dois ou mais observadores que trabalham na mesma área e obedientes às mesmas instruções, pode-se estimar a eficiência de cada observador e calcular o número mais provável de eventos no volume observado de emulsão de acordo com o método de duplo ou triplo exame⁽⁶¹⁾.

A eficiência de um observador é a razão entre o número de traços por ele encontrado e o número total existente, numa certa área. Sendo T o verdadeiro número de eventos, A e B os números de traços encontrados por dois observadores, $E_A = A/T$ e $E_B = B/T$ as respectivas eficiências individuais, a eficiência de uma observação dupla entre A e B será:

$$E_{A+B} = E_A + E_B - E_A E_B$$

O número verdadeiro de eventos será dado por:

$$T = A \cdot B / N_{AB}$$

onde N_{AB} é o número de traços em comum encontrados por ambos os observadores (número de coincidência duplas) e o máximo erro estatístico associado a T é \sqrt{T} .

Um fato verificado na prática é que a eficiência de contagem decresce tanto para baixas como para altas densidades de traços. Por esta razão, projetou-se a experiência para uma densidade de traços tal que a eficiência de cada observador fosse cerca de 90%. Nestas condições, a dupla observação nos permitiu obter o número verdadeiro de eventos com um erro estatístico da ordem de 5%.

2.6 - Medida dos Alcances

A Fig. II.2 representa a orientação no espaço de um traço de fragmento de fissão e as grandezas necessárias para a obtenção de seu percurso real:

A"B" - distância vertical entre as extremidades da trajetória.

A'B' - distância entre as extremidades da projeção da trajetória no plano da emulsão.

ALFA - ângulo entre a projeção da trajetória no plano da emulsão e a direção escolhida para o eixo "x".

Essas informações permitem a obtenção dos comprimentos reais dos traços e do histograma desses comprimentos. Para tal, três parâmetros permitem levar em consideração as contrações e as dilatações observadas na emulsão nuclear após a revelação.

A medida de A'B' foi feita por meio de oculares munidas de escalas que possibilitam através de um fator de calibração trans



formar esta medida em microns.

A "B" pode ser medida diretamente por meio de um micrômetro com precisão de 0,5 microns. Esse micrômetro é solidário com o movimento fino vertical do canhão do microscópio.

Finalmente, a medida do ângulo ALFA, é obtida pela leitura direta num goniômetro adaptado à ocular do microscópio. A precisão obtida no ângulo ALFA é de 0,01 radianos para $\text{arc tg} (A''B''/A'B') \sim 15^\circ$. Esse erro é causado principalmente pela espessura do traço do fragmento de fissão.

Os erros mais importantes na presente medida são os resultados de erros estatísticos no número de contagem dos eventos os quais dependem da área observada. Em áreas de 1 cm^2 , os erros são da ordem de 5%. O erro no carregamento é inferior a 1%, o erro na medida do tempo é menor que 1%, uma vez que as películas levam 2 dias para secar; portanto, é da ordem de 6% o erro que estimamos para nossas medidas.

CAPÍTULO III

RESULTADOS EXPERIMENTAIS. DISCUSSÕES

Duas informações, provenientes dos dados experimentais, foram básicas na análise dos resultados: o número de traços observados num determinado volume da emulsão nuclear e a distribuição dos alcances desses traços. Primeiramente descreveremos como foram obtidos os comprimentos reais dos traços a partir das medidas feitas pelas microscopistas. A seguir, apresentaremos os resultados obtidos no presente trabalho. Na Seção 3.3 faremos uma discussão detalhada sobre esses resultados e finalmente a conclusão a que chegamos a partir dos resultados obtidos constituirá a Seção 3.5.

3.1 - Tratamento dos Dados

Com o auxílio das medidas feitas no início da experiência, ou seja, da quantidade de urânio contida na película inteira e da massa dessa película, determinamos a concentração de urânio na película. A partir das medidas das dimensões e das massas das películas menores (alíquotas), obtidas durante a preparação inicial e da concentração de urânio previamente determinada obtivemos o número de átomos por cm^2 . O produto dessa grandeza pelo tempo de armazenamento nos fornece então a exposição total:

O exame das películas ao microscópio consistiu na conta-

tagem, medição e mapeamento dos eventos por dois observadores numa mesma região da película. Pelo método estatístico da dupla coincidência nas contagens⁽⁶¹⁾, obtivemos a eficiência dos referidos observadores como descrito no Capítulo II. Como a medida da projeção do traço, (A'B'), bem como sua profundidade, A"B", são feitas após a película ter passado pelo processo de revelação (Fig. II.2) torna-se necessário introduzir certos fatores que levem em conta as correções devidas às contrações na espessura da película e as dilatações laterais. Essas variações nas dimensões são devidas principalmente à expulsão do brometo de prata, não exposto às partículas ionizantes, durante a etapa da fixação. Chama-se fator de contração (FC) a razão entre a média das medidas de espessura da película, tiradas antes do processo de revelação, e a média das medidas tiradas diariamente durante o exame ao microscópio. Chamamos de calibração vertical (CALV) ao produto da calibração da escala da ocular pela razão entre a largura inicial (medida antes da revelação) e a largura final (medida após a revelação) da película. A calibração horizontal (CALH) é definida de maneira análoga. Então podemos escrever:

FC = espessura média antes da revelação / espessura média após a revelação.

CALV = calibração . V_i/V_f

CALH = calibração . H_i/H_f

A projeção do traço no plano da emulsão, levando em conta os fatores de correção acima, é dada por:

$$PTV = \left[(A'B' \cdot \text{sen ALFA} \cdot \text{CALV})^2 + (A'B' \cdot \text{cos ALFA} \cdot \text{CALH})^2 \right]^{1/2} \quad (\text{III-1})$$

e o percurso real da partícula carregada na emulsão é, portanto:

$$\text{ALCANCE} = \left[(A''B'' \cdot \text{FC})^2 + (\text{PTV})^2 \right]^{1/2} \quad (\text{III-2})$$

Os histogramas de cada película foram obtidos utilizando uma subrotina⁽⁶²⁾ para o Computador IBM/1620 II do C.B.P.F.. A Tabela III.1 reúne os dados correspondentes às diferentes chapas analisadas no presente trabalho.

3.2 - Resultados Obtidos

A Fig. III.1 mostra um histograma típico dos obtidos da análise ao microscópio das películas armazenadas por intervalos de tempo diferentes. É importante notar a presença de dois picos nas distribuições de alcances, um em torno de 24 μm e outro em torno de 10 μm . Os histogramas foram corrigidos para a eficiência de contagem do 2º pico e normalizados para o mesmo volume inicial varrido.

O pico em torno de 24 μm é o representativo dos traços de fissão espontânea do ^{238}U . De fato, seu alcance médio (soma dos alcances dos fragmentos leve e pesado) está em bom acordo com os alcances calculados em emulsão "standard"⁽⁶³⁾. Na Fig. III.2 está representado o número de traços de fissão por cm^2 correspondente aos eventos do 2º pico, N, contra a exposição total E (mg.dia/cm^2).

Como o número de eventos é proporcional à exposição o coeficiente angular da reta que passa pela origem, obtida pelo método dos mínimos quadrados, está relacionado à meia-vida, $T_{1/2}$, através da fórmula

$$T_{1/2} \text{ [ano]} = 4.8 \frac{\sum_i E_i^2}{\sum_i N_i E_i} \cdot 10^{15} \quad (\text{III-3})$$

de onde obtemos o valor $(6,0 \pm 0,4) \times 10^{15}$ anos para a meia-vida da fissão espontânea do ^{238}U , valor este que está em bom acordo com os valores obtidos por alguns autores usando outras técnicas experimentais (ver Tabela I).

Cabe salientar também o aparecimento do novo pico centrado em $10 \mu\text{m}$. Este resultado surpreendente, parece ser indicativo de um novo fenômeno e será objeto de uma discussão detalhada nos parágrafos seguintes.

3.3 - Discussão dos Resultados

Essa Seção tem como finalidade discutir o resultado encontrado no presente trabalho para a meia-vida de fissão espontânea do ^{238}U bem como a origem e natureza do novo pico correspondente aos traços de curto alcance.

Um fato que exigiu atenção especial no tratamento dos dados foi a eficiência na contagem do número de eventos. No caso dos traços de fragmentos de fissão, os eventos foram tão visíveis que uma eficiência de 90% na contagem desses traços foi conseguida mesmo numa densidade relativamente baixa ($\sim 10^3$ traços/cm²). Infe-

lizmente não foi possível obter uma eficiência tão boa no caso dos traços de curto alcance. Perdas devido ao tamanho do traço e a sua pouca nitidez, em alguns casos, foram os principais fatores que fizeram a eficiência de contagem cair a cerca de 30%.

3.3.1 - Fissão Espontânea

Os diferentes métodos empregados por outros investigadores na medida da meia-vida da fissão espontânea do ^{238}U conduziram aos resultados apresentados na Tabela I. Os valores encontrados por meio da câmara de ionização estão na faixa de $6,5 \times 10^{15}$ anos a 11×10^{15} anos. Essa técnica, embora vantajosa na geometria de detecção, não permite uma boa discriminação entre os pulsos de fragmentos de fissão e os pulsos devido a acúmulo de partículas alfa, podendo por este motivo levar a uma maior contagem no caso dos fragmentos de fissão do ^{238}U , baixando, portanto, o valor da meia-vida. Por outro, se a espessura do filme do material a ser estudado não for adequado, haverá perdas na contagem dos eventos por absorção no próprio filme, contribuindo assim para aumentar o valor da meia-vida.

Quanto aos estudos radioquímicos da fissão espontânea com meia-vida da ordem de 10^{16} anos, como é o caso do ^{238}U , amostras de urânio de massas consideráveis (ordem de grandeza de quilograma) dão taxas de contagens ainda extremamente baixas para certos produtos de fissão, o que leva a uma certa imprecisão na determinação dessa meia-vida.

A mica, além de não permitir boa geometria para a detecção dos fragmentos, pode apresentar também perdas na contagem

dos eventos por auto-absorção devido à espessura do filme, conduzindo assim a mais baixas contagens dos fragmentos, aumentando pois o valor da meia-vida.

Embora a técnica "spinner"⁽¹⁹⁾ seja completamente diferente das demais, apresenta, como a técnica de emulsão nuclear por nós utilizada, boas condições de detecção (geometria 4π , baixo "background", discriminação entre partículas alfa e fragmentos de fissão, e outras). Apesar disso, os resultados obtidos por meio destas duas técnicas para a meia-vida não estão em bom acordo (ver Tabela I).

A técnica de emulsão nuclear usada por Perfilov⁽¹²⁾ para a medida da meia-vida da fissão espontânea de ^{238}U foi bastante diferente da utilizada no presente trabalho. A emulsão nuclear serviu de detector de uma fonte externa de ^{238}U (filmes finos contendo 0,924 mg de U_3O_8), separada da superfície da emulsão por 1,5 mm de ar à pressão de 1 mm de Hg. O tempo da exposição foi cerca de 70 dias, dando 96 traços numa área de 5,67 cm^2 . Afim de eliminar a ação dos neutrons da radiação cósmica, o sistema fonte-detector foi colocado numa câmara de vácuo envolvida por cadmio e armazenada a 50 metros de profundidade.

Nossas condições experimentais, por outro lado, permitiram dar 15 vezes mais traços por unidades de área que a experiência de Perfilov, pois em nosso método tivemos uma geometria de detecção de 4π e uma exposição total mínima cerca de 70 vezes maior.

3.3.2 - Traços de Curtos Alcance

Em nosso estudo sobre fissão espontânea do ^{238}U ficou evidenciada a presença de traços de curto alcance, além dos traços bem identificados como provenientes da fissão espontânea. Por essa razão fomos levados a reexaminar as chapas da experiência anterior⁽¹³⁾, as quais mostraram também, nas distribuições de alcance, o aparecimento de picos relativos a traços de curto alcance.

A hipótese de presença de bactérias que eventualmente poderiam produzir traços de curto alcance que se assemelhassem aos de partículas carregadas foi perfeitamente eliminada pela análise feita em placas de emulsão nuclear Ilford-K0 não carregadas e submetidas a idêntico processo de revelação. Essas placas, ao serem examinadas ao microscópio, não mostraram traços de qualquer espécie. Pela mesma razão, foi eliminada também a possibilidade dos traços de curto alcance serem provenientes de recuos nucleares resultantes de reações dos componentes de alta energia da radiação cósmica ao nível do mar com os elementos constituintes da emulsão nuclear. Então, chegamos a conclusão preliminar de que o urânio contido nas películas é, de alguma forma, responsável pelos traços de curto alcance.

Com efeito, o urânio contido nas películas de emulsão nuclear pode servir de alvo para reações secundárias induzidas pela radioatividade alfa e pela radiação gama (reações (α, n) , (γ, n) , $(\gamma, 2n)$, etc.). No entanto, os núcleos de recuo resultantes de tais reações não teriam energia suficiente para deixar traços visíveis na emulsão.

Uma hipótese que poderia explicar a presença dos traços de curto alcance, seria a de recuos nucleares de reações induzidas pela radiação cósmica nos núcleos de urânio. Segundo George⁽⁶⁴⁾, a frequência de produção de "estrelas" (*) em placas de emulsão nuclear Ilford C2 e G5, ao nível do mar, pela radiação cósmica, é da ordem de $1,5/(\text{cm}^3 \cdot \text{dia})$. Admitindo, em caso extremo, que toda estrela dê origem a um fragmento pesado, a frequência desses fragmentos produzidos pela interação da radiação cósmica com os núcleos de urânio, N_s , seria dada por

$$N_s/(\text{cm}^3 \cdot \text{dia}) \sim 1,5 \sigma_u N_u / \sum_i \sigma_i N_i \quad (\text{III-4})$$

onde N_u é a concentração de urânio na emulsão nuclear, σ_u é a seção de choque de produção de estrelas em núcleos de urânio, N_i as concentrações dos componentes da emulsão nuclear e σ_i suas respectivas seções de choque para produção de estrelas. Supondo que as seções de choque sejam proporcionais a $A^{2/3}$ (o que equivale a serem proporcionais às seções de choque geométricas) e sabendo que a concentração de urânio nas películas do presente trabalho é da ordem de 80 mg/cm^3 obtemos $N_s \sim 0,02/(\text{cm}^3 \cdot \text{dia})$. Desse modo, obteríamos, por exemplo, para a chapa com maior tempo de exposição (3057 dias) uma densidade de traços de curto alcance de cerca de $3,5/\text{cm}^2$, valor este que é aproximadamente 3000 vezes menor que o ob-

(*) Quando em uma emulsão observamos uma desintegração nuclear induzida por partículas de altas energias vemos uma série de traços que partem de um centro como raios cujo aspecto "estrelado" faz com que se fale de estrelas.

servado. As considerações acima eliminam a hipótese dos traços de curto alcance serem provenientes de recuos nucleares resultantes de reações com raios cósmicos, conclusão idêntica à chegada por Price e Walker⁽⁶⁵⁾ no estudo de traços "fósseis" de partículas carregadas em mica.

Excluimos também a possibilidade de um erro experimental-instrumental devido a uma desigual sensibilidade da emulsão nuclear acarretando espectro de traços de curto alcance ao registrar traços de partículas alfa em regiões de alta sensibilidade. Isto porque uma tal população de partículas alfa renderia grande número de traços acumulados e não traços isolados no interior da emulsão. Além disso, não há gradiente de revelação observável na espessura da emulsão.

Resta discutir a hipótese do urânio ser o emissor espontâneo de íons com energia tal que corresponda aos traços de curto alcance observados nas diversas chapas analisadas. Esta hipótese surgiu em decorrência de estudos realizados anteriormente em nosso laboratório. Já em 1959, quando dos primeiros trabalhos de Carvalho e colaboradores sobre fotofissão do ^{238}U e ^{232}Th a baixa energia, a distribuição dos alcances dos traços registrados em emulsão mostrou, além do pico da fotofissão, um outro, pouco intenso cujo alcance era menor que o correspondente aos fragmentos da fotofissão. Foi estudada, então, a possibilidade de emissão de ^{12}C pelos filhos das séries radioativas dos elementos em questão. Posteriormente, ficou estabelecido que a técnica de revelação usada nos trabalhos de fissão não permite visualizar trajetória de íons

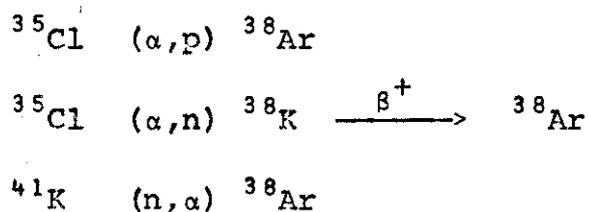
com $Z < 10$. O aparecimento, no presente trabalho, de um pico bastante intenso além do relativo aos fragmentos de fissão espontânea do ^{238}U , correspondendo a traços de curto alcance, obtido mediante a mesma técnica de revelação (que exclui partícula alfa e íons com $Z < 10$), nos levou a pensar na possibilidade de emissão espontânea de íons mais pesados pelo ^{238}U . A ocorrência de um fenômeno dessa natureza poderia ter características semelhantes à fissão nuclear espontânea, porém altamente assimétrica. Na fissão espontânea, a assimetria de massa (razão entre as massas dos fragmentos) varia de 1,13 a 2, enquanto que num processo como o proposto acima, a assimetria de massa poderia variar, aproximadamente, de 5 à 20.

3.4 - Emissão Espontânea de Íons Pesados pelo Urânio

De imediato, a hipótese do urânio ser emissor espontâneo de íons pesados pode parecer estranha. No entanto, existem evidências experimentais que sustentam essa idéia. Uma delas é a anomalia de gases raros (principalmente o excesso de isótopos de neônio e argônio em relação ao atmosférico) encontrada em análises de minerais contendo urânio e tório e em gases naturais⁽⁶⁶⁻⁷⁰⁾. Outra é a existência de halos pleocrômicos não identificados resultantes de inclusões de urânio e tório em mica biotita⁽⁷¹⁻⁷⁴⁾.

As variações isotópicas de neônio e argônio obtidas em análises feitas em minerais radioativos e em gases naturais evidenciam um excesso de isótopos de ^{22}Ne , ^{21}Ne , e ^{38}Ar em relação às porcentagens normais na atmosfera. Wetherill⁽⁶⁷⁾, por exemplo, encontrou no caso da euxenita uma abundância de ^{22}Ne cerca de 50

vezes maior que a normal e uma razão isotópica $^{21}\text{Ne}/^{20}\text{Ne}$ cerca de 370 vezes a normal. Por outro lado, Sharif-Zade et al. ⁽⁷⁰⁾ encontraram em monazita um conteúdo 15 vezes maior de ^{21}Ne que o normal atmosférico e em betafita um conteúdo de ^{22}Ne duas vezes o normal. Segundo Wetherill ⁽⁶⁷⁾, os processos mais prováveis para a explicação do excesso de ^{38}Ar seriam reações do tipo



No entanto, as duas primeiras reações necessitam a presença de uma quantidade significativa de cloro dentro da região de alcance das partículas alfa. Além disso, o rendimento da reação (α, n) é baixo em virtude do alto limiar; a maioria das partículas alfa teria energia abaixo do limiar e, mesmo para aquelas com energias acima do limiar, as seções de choque seriam pequenas. A reação (n, α) no ^{41}K é improvável devido à barreira de Coulomb de 9 MeV que a partícula alfa precisaria penetrar para deixar o núcleo. A conclusão, ainda não definitiva, é que a reação (α, p) no ^{35}Cl deve ser a mais provável para a explicação do excesso de ^{38}Ar .

O acúmulo de ^{21}Ne , por outro lado, tem sido explicado mediante a reação $^{18}\text{O} (\alpha, n) ^{21}\text{Ne}$. De fato, as estimativas de Wetherill ⁽⁶⁷⁾ para a quantidade deste isótopo com base na reação acima concordam aproximadamente com o obtido nas análises experimentais. Posteriormente, Sharif-Zade et al. ⁽⁷⁰⁾ concluíram também ser o rendimento da reação $^{18}\text{O} (\alpha, n) ^{21}\text{Ne}$ a mais provável explicação

do acúmulo de ^{21}Ne em minerais radioativos.

A possibilidade dos isótopos de neônio e argônio em excesso serem gerados nos minerais radioativos pela ação da radiação cósmica foi considerada por Takagi⁽⁷⁵⁾ e os cálculos mostram que será necessário um fluxo de mésons da ordem de $10^{16}/\text{cm}^2$. Porém, como observam Sharif-Zade et al.⁽⁷⁶⁾, alguns fatos ficam sem explicação admitindo-se esta hipótese, como por exemplo, a variedade de proporção encontradas na razão de excesso de ^{22}Ne para ^{21}Ne (que seria sempre 3 no caso da suposição dos mésons).

Finalmente, uma explicação do excesso de ^{22}Ne com base nas reações $^{19}\text{F}(\alpha, n)$ e $^{19}\text{F}(\alpha, p)$ não é satisfatória, seja pela baixa concentração de fluor ou pelo baixo rendimento das reações.

Um halo radioativo é uma região danificada dentro de um mineral e, usualmente, resulta da emissão alfa de uma inclusão radioativa contendo urânio ou tório. Um exame ao microscópio dos halos pleocróicos, revela a inclusão radioativa envolta por vários anéis concêntricos, cada um podendo ser identificado com as partículas alfa dos emissores das séries radioativas do urânio e do tório. Não obstante, em certas amostras de mica biotita, tem sido observados anéis de halos pleocróicos correspondendo a alcances de fragmentos de fissão, porém eles não puderam ser explicados quantitativamente pela fissão espontânea do urânio⁽¹¹⁾. Embora os raios dos halos normais (associados aos emissores alfa das séries radioativas naturais) variem de 12 a 42 μm , há evidência de halos raros com raios anômalos variando, por exemplo, de 5 a 10 μm ^(74,76). A Fig. III.3 mostra a correlação entre os raios dos halos em biotita

e as energias das partículas halo.

Embora esforços tenham sido feitos no sentido de interpretar o aparecimento dos pequenos halos, não se tem ainda uma conclusão definitiva sobre sua origem. Gentry⁽⁷⁴⁾ relata que a região imediatamente à volta da inclusão é rapidamente atacada por ácido, o que é característico de uma região altamente danificada por radiação. Após atacar um grande número desses pequenos halos com ácido, Gentry achou alguns que exibiram traços de fissão com alcances variando da metade até três quartos do alcance normal do traço de fissão. Uma tentativa foi feita para esclarecer a origem dos pequenos halos pela análise de traços de curto alcance em amostras não atacadas, entretanto nenhum resultado definitivo foi obtido.

As considerações apresentadas nos parágrafos anteriores favorecem nossa hipótese inicial, isto é, os traços de curto alcance (2 μ m - 18 μ m) registrados em películas de emulsão nuclear carregadas com urânio serem atribuídos a uma emissão espontânea de núclídeos pelo urânio (número de massa compreendido entre \sim 20 e 70). Os dados do presente trabalho não permitem identificar individualmente os núclídeos emitidos. No entanto, tomando-se a totalidade dos traços observados, obtém-se uma meia-vida de $(2 \pm 1) \times 10^{15}$ anos. É importante salientar que os três fenômenos descritos, parecem ser provenientes de uma mesma causa, isto é, a presença de urânio nos minerais radioativos, nas inclusões em biotita e nas emulsões carregadas.

2.4.1 - Energética de Emissão de Íons Pesados pelo Urânio

Analisaremos nesta Seção a possibilidade de emissão espontânea de nuclídeos pelo urânio, do ponto de vista energético.

Suponhamos que um núcleo de ^{238}U se desintegre espontaneamente em um íon $^{\text{A}}_{\text{Z}}\text{X}$ dando o núcleo produto $^{238-\text{A}}_{92-\text{Z}}\text{Y}$, isto é,



sendo Q a energia total liberada no processo.

Do balanço energético e da conservação da quantidade de movimento, resulta

$$Q(\text{MeV}) = \left[M_{\text{U}} - (M_{\text{X}} + M_{\text{Y}}) \right] \cdot 931.4812 \quad (\text{III-6})$$

$$E_{\text{X}} = Q / (1 + M_{\text{X}}/M_{\text{Y}}) \quad (\text{III-7})$$

sendo M as massas nucleares expressas em unidades de massa atômica e E_{X} a energia cinética do íon emitido.

Na realidade, os fragmentos X e Y podem estar excitados. Denotando por um asterisco a desintegração no caso de haver excitação dos fragmentos, temos:



sendo Q^* a energia cinética dos fragmentos excitados. Como a energia de excitação é positiva, $Q^* < Q$ e podemos considerar como no caso da fissão espontânea, a energia cinética dos íons X e Y li

geiramente menor que a energia total liberada no processo. A fração desta que se manifesta como energia cinética foi um parâmetro ajustado de tal modo que os alcances calculados concordassem com os obtidos experimentalmente. Admitindo constante este parâmetro para todos os modos de emissão, o melhor acordo foi encontrado quando se tomou 85% da energia total como energia cinética dos fragmentos. Para o cálculo numérico, as massas nucleares M_U e M_X foram tiradas da compilação de Wapstra et al. ⁽⁷⁷⁾ e M_Y foi calculada pela fórmula de massas de Fong ⁽⁷⁸⁾.

À partir das energias cinéticas obtidas da Eq. III-7 foram calculados os alcances correspondentes na emulsão nuclear ⁽⁶³⁾ bem como a ionização média (relativa à partícula alfa de 4,2 MeV do ^{238}U) para cada nuclídeo ^A_ZX emitido segundo o processo III.5 com número de massa até cerca de 70.

A Tabela III.2 contém alguns resultados desse estudo sistemático. A terceira coluna pode ser confrontada com a distribuição de alcances da Fig. III.1. Os alcances calculados estão compreendidos entre 4 μm e 18 μm , correspondendo a uma possível emissão de nuclídeos leves a partir do berílio. Do ponto de vista experimental a técnica de revelação usada em nossas películas (revelando apenas trajetórias de partículas altamente ionizantes) possibilita visualizar também na emulsão os traços correspondentes a emissões espontâneas de alguns nuclídeos de número de massa até 70. De fato, a perda de energia por unidade de comprimento de tais fragmentos na emulsão é apenas cerca de metade da de um fragmento de fissão, 20 vezes maior que a de uma partícula alfa do ^{238}U . Para

melhor comparação, na Tabela III.2 estão as razões entre a ionização média de cada íon e a de uma partícula alfa de 4,2 MeV.

Os alcances de partículas carregadas em emulsão nuclear são ligeiramente maiores que os correspondentes em mica biotita (ver Fig. III.4). Os alcances em biotita entre 5,2 μm e 8,6 μm (raios de halos anômalos) representam na emulsão alcances compreendidos entre 8 μm e 13 μm (traços de curto alcance), reforçando assim a idéia de se tratar de emissão espontânea de íons pesados pelo urânio.

Apesar dos resultados da energética serem favoráveis a tal processo, representa apenas uma condição necessária. Deve ser também analisada a probabilidade de penetração desses íons através a barreira de Coulomb.

3.4.2 - Probabilidade de Emissão Espontânea de Nuclídeos pelo ^{238}U

Admitida a hipótese de desintegração espontânea do ^{238}U por emissão de nuclídeos com número de massa até 70, procedemos a um cálculo simplificado da meia-vida para a totalidade dos modos de emissão.

Sendo λ_i a probabilidade por unidade de tempo de desintegração através da emissão de um nuclídeo X_i , a meia-vida para todos os modos de emissão é dada por:

$$T_{1/2} [\text{ano}] = 0,693 / \sum_i \lambda_i [\text{ano}^{-1}] \quad (\text{III-9})$$

Para o cálculo de λ_i admitimos a já estabelecida e

xistência de "clusters" nucleares e cada modo de emissão é descrito tal como no processo de desintegração alfa. Assim, todo o formalismo de penetração de barreira de potencial desenvolvido no estudo da radioatividade alfa é aqui estendido para o caso da desintegração por "clusters" mais pesados. Desta forma, podemos escrever⁽⁷⁹⁾

$$\lambda_i = \lambda_{oi} e^{-G_i} \quad (\text{III-10})$$

onde λ_{oi} é a frequência de colisão do nuclídeo X_i com as paredes do núcleo e G_i é o fator de Gamow. Um cálculo aproximado dá para λ_{oi} a expressão

$$\lambda_{oi} [\text{ano}^{-1}] = \frac{2,191929 \times 10^{29}}{R - R_{X_i}} \sqrt{0,85 Q_i / m_i} \quad (\text{III-11})$$

sendo R e R_{X_i} os raios nucleares (em Fermi) do ^{238}U e do nuclídeo X_i emitido, respectivamente; $0,85 Q_i$ é a soma das energias cinéticas (em MeV) do fragmento X_i e do núcleo de recuo, e m_i é a massa reduzida do sistema (em u.m.a.).

Os raios nucleares foram calculados a partir de $R = r_0 A^{1/3}$ onde r_0 foi um outro parâmetro a ser ajustado a partir da meia-vida que experimentalmente pudemos atribuir à totalidade dos modos de emissão. O melhor ajuste foi conseguido com $r_0 = 1,324F$. A energia total, Q_i , foi obtida da Eq. III.6 e a massa reduzida m_i da relação $M_{X_i} \cdot M_{Y_i} / (M_{X_i} + M_{Y_i})$ onde as massas nucleares dos fragmentos X_i e Y_i foram obtidas como descrito no parágrafo anterior.

Para se ter uma idéia do valor de λ_0 , tomemos, por exemplo, a emissão de ^{40}Ar . Neste caso, a massa reduzida é da ordem de 33 u.m.a. e a soma das energias cinéticas do ^{40}Ar com o núcleo produto ^{198}W é de 84 MeV, com o que obtemos $\lambda_0 \sim 3 \times 10^{21}/\text{seg}$. Apesar deste resultado ter sido obtido mediante uma fórmula simplificada (Eq. III.11), está em bom acordo com a frequência de colisão para a emissão de partículas alfa e com a frequência de oscilação nuclear no modelo da gota líquida para a fissão espontânea.

Na expressão que dá a constante de desintegração de um particular modo de emissão espontânea (Eq. III.10) o parâmetro mais importante é o fator de Gamow, G_i , que pode ser expresso por

$$G_i = 0,52494 \sqrt{Z_{X_i} \cdot Z_{Y_i} m_i b_i} \cdot P_i \quad (\text{III-12})$$

onde Z representa o número atômico dos nuclídeos, m_i a massa reduzida expressa em unidades de massa atômica, b_i a distância (em Fermi) entre os fragmentos para a qual a energia potencial iguala a energia de desintegração e P_i o fator de penetrabilidade da barreira:

$$b_i [\text{F}] = 1,439898 Z_{X_i} \cdot Z_{Y_i} / 0,85 Q_i [\text{MeV}] \quad (\text{III-13})$$

$$P_i = \text{arc cos} \sqrt{R_i/b_i} - \sqrt{R_i/b_i - (R_i/b_i)^2} \quad (\text{III-14})$$

Novamente aqui, Q_i é calculado a partir da Eq. III.6 e R_i representa a soma dos raios (em Fermi) dos nuclídeos X_i e Y_i , isto é, $R_i = R_{X_i} + R_{Y_i}$ sendo $R = r_0 A^{1/3}$ e $r_0 = 1,324 \text{ F}$. O coefici-

ente 0,85 que aparece nas Eqs. III.11 e III.13 foi o que melhor ajustou os alcances calculados (ver Seção 3.4.1) com os obtidos experimentalmente.

Combinando as Eqs. III.9 e III.10 obtemos para a meia-vida de um particular modo de desintegração por emissão de íon, o seguinte resultado:

$$T_{1/2} [\text{ano}] = 3,16227 (R - R_{X_1}) \sqrt{\frac{m_i}{0,85 Q_i [\text{MeV}]}} \cdot 10^{\left[\frac{G_i}{\ln 10} - 30 \right]} \quad (\text{III.15})$$

A Fig. III.5 mostra o efeito de penetração de barreira de potencial no caso da emissão espontânea de ^{40}Ar pelo ^{238}U . Neste exemplo, a barreira de Coulomb é de 157 MeV, a energia de desintegração é de 86 MeV e a "largura" da barreira é de 11 F, resultando, pois, uma meia-vida de 6×10^{27} anos para este particular modo de emissão.

Cerca de 260 diferentes modos de emissão foram analisados com o simples formalismo aqui apresentado. As Figs. III.6 e III.7 e a Tabela III.3 mostram os resultados dos cálculos da energia de desintegração, constante de desintegração e meia-vida para alguns possíveis modos de emissão espontânea de íons pesados pelo ^{238}U .

Os resultados a que chegamos a partir desta análise sistemática podem ser resumidos como segue:

- a) a emissão espontânea de ^{10}Li , ^{11}Li , ^{13}Be , ^{10}C , ^{11}N , ^{12}N , e ^{13}O pelo ^{238}U não é energeticamente possível pois o valor

de Q do processo Eq. (III.6) não é positivo;

- b) a energia de desintegração aumenta com o número de massa do íon emitido (ver Fig. III.6);
- c) dos processos de emissão espontânea energeticamente possíveis, 22 tem meia-vida inferior a 10^{24} anos (ver Tabela (III.3));
- d) destes últimos, 11 envolvem núclídeos com número mágico; de prótons (^{214}Pb , ^{46}Ca , ^{47}Ca , ^{49}Ca , ^{50}Ca e ^{66}Ni), de neutrons (^{36}S , ^{202}Os , ^{47}K , e ^{49}Sc). O núclídeo duplamente mágico ^{48}Ca é emitido com meia-vida de 10^{16} anos;
- e) o valor de r_0 que deu o melhor ajuste entre a meia-vida calculada para todos os modos de emissão e a encontrada experimentalmente foi 1,324 F. Este resultado é compatível com os valores de r_0 obtidos por outros métodos⁽⁸⁰⁾.

Os resultados do cálculo sistemático aqui apresentado estão sujeitos a incertezas devidas principalmente à escolha do parâmetro do raio nuclear, r_0 , e às massas nucleares. Um acréscimo de 2% em r_0 acarreta um decréscimo de até 5 ordens de grandeza na meia-vida. Por outro lado, uma variação de 1 MeV no valor de Q (uma consequência das flutuações das massas nucleares, como se pode ver pela Eq. III.6) resulta numa variação de duas ordens de grandeza na meia-vida.

Uma apresentação dos resultados da sistemática de emissão espontânea de íons juntamente com os resultados experimen-

tais da distribuição de massa da fissão espontânea do ^{238}U pode ser útil num estudo comparativo desses dois processos de desintegração.

Seja λ_i a constante de desintegração por emissão espontânea de íons com número de massa A_i ou por fissão espontânea como fragmento leve de massa A_i . O rendimento porcentual é dado por:

$$p_i = 100 \cdot \lambda_i / \lambda \quad (\text{III-16})$$

onde λ é a constante de desintegração de ^{238}U para todos os processos de emissão espontânea excluindo a radioatividade alfa, isto é,

$$\lambda = \lambda_{\text{fissão}} + \lambda_{\text{emissão de íons}} \quad (\text{III-17})$$

A constante de desintegração por fissão espontânea obtida no presente trabalho é $1,15 \times 10^{-16} \text{ ano}^{-1}$ e a por emissão espontânea de íons pesados é $3,46 \times 10^{-16} \text{ ano}^{-1}$. Consequentemente, $\lambda = 4,61 \times 10^{-16} \text{ ano}^{-1}$. Usando a distribuição de massa da fissão espontânea obtida por Rao e Kuroda (curva I da Ref. 81) e os valores de λ_i por nós calculados para emissão de íons, obtém-se a distribuição de massa de todos os modos de desintegração espontânea do ^{238}U . Essa distribuição é mostrada na Fig. III.8 onde a curva contínua representa a distribuição de massa dos fragmentos leves da fissão espontânea do ^{238}U . Esses resultados podem ser confronta-

dos com os rendimentos de ^{28}Mg , ^{37}Ar , ^{39}Ar , ^{41}Ar , ^{42}Ar , ^{56}Co , ^{66}Ni e ^{67}Cu determinados experimentalmente por Stoenner e Hillman⁽⁸²⁾, Roy⁽⁸³⁾ e Muenze e Hladik⁽⁸⁴⁾ usando o método radioquímico na fissão do ^{235}U induzida por neutrons térmicos (ver Fig. III.9). Esses autores atribuíram esta evidência experimental à emissão do fragmento leve associado a um evento de tripartição. Essa, porém, não poderia ser a explicação para o nosso caso, uma vez que em emulsão nuclear um evento de tripartição seria identificado por três traços partindo de um centro comum⁽⁸⁵⁾.

3.5 - Conclusão

A meia-vida de fissão espontânea do ^{238}U é grande, da ordem de 10^{16} anos. Especialmente por razões estatísticas, uma medida precisa da meia-vida requer longo tempo de exposição para coletar um número suficiente de eventos. O "background" de partículas alfa do elemento em estudo é de 4×10^6 para cada evento de fissão ($\sim 10^9$ alfas/cm²). Por essas razões usamos uma técnica de emulsão nuclear que tornou bem visíveis os traços de fissão na ausência total dos traços de partículas alfa e que evitou o "fading" da imagem latente por um adequado armazenamento das películas. O método usado permitiu completa revelação dos traços de fissão e ao mesmo tempo não registrou nenhum traço de partícula alfa e, principalmente, não registrou traços de fons com Z menor que 10.

Analizamos placas de emulsão nuclear submetidas a tempos de exposição variados e fizemos histogramas detalhados dos alcances dos traços registrados. Os histogramas apresentaram siste-

mãticamente um novo pico, em torno de 10 μ m, além do correspondente aos traços de fissão espontânea do ^{238}U . Os traços correspondentes ao novo pico foram atribuídos à emissão espontânea de íons pesados com $20 \leq A \leq 70$ com meia-vida de $(2 \pm 1) \times 10^{15}$ anos. A meia-vida de fissão espontânea do ^{238}U medida através desta técnica especial de emulsão nuclear foi de $(6,0 \pm 0,4) \times 10^{15}$ anos.

Um estudo teórico sistemático admitindo a existência de "clusters" nucleares e usando o efeito de penetração de barreira mostrou que os traços de curto alcance detectados em nossa experiência podem ser representativos da emissão espontânea de íons pesados (nuclídeos com massa compreendida entre 20 e 70) pelo ^{238}U . É provável que a abundância isotópica anormal de gases raros (neônio e argônio) observada nos minerais radioativos, os raios anômalos de halos pleocrômicos observados nas inclusões de urânio e tório em biotita bem como os traços curtos por nós observados em películas de emulsão nuclear carregadas com urânio sejam evidências de uma nova forma de radioatividade: a emissão espontânea de íons pesados pelo urânio.

REFERÊNCIAS

1. O. Hahn e F. Strassmann, *Naturwiss* 27, 89, 163 (1939).
2. L. Meitner e O. Frisch, *Nature* 143, 239 (1939); O. Frisch, *Nature* 143, 276 (1939).
3. F. Joliot, *Compt.Rend.* 208, 341 (1939); *J.Phys. et Radium* 10, 159 (1939).
4. Anderson, Fermi e Szilard, *Phys.Rev.* 56, 284 (1939).
5. Halban, Joliot e Kovarski, *Nature* 143, 470, 680 (1939).
6. W.H.Zinn e L.Szilard, *Phys.Rev.* 56, 619 (1939).
7. L.I. Rusinov e G.N. Flerov, *Izv.Akad.Nauk SSSR*, 4, nº 2, 310 (1940).
8. N.Bohr e J. Wheeler, *Phys.Rev.* 56, 426 (1939).
9. W.E. Libby, *Phys.Rev.* 55, 1269 (1939).
10. K.A. Petrzhak e G.N. Flerov, *Doklady Akad.Nauk SSSR* 28, 500 (1940); cf. *JETP* 10, 1013 (1940).
11. K.A. Petrzhak e G.N. Flerov, *Usp. Fiz Nauk* 73, 655 (1961); *Soviet Phys.Uspekhi* 4, 305 (1961).
12. N.A. Perfilov, *J.Exp.Theor.Phys. USSR* 17, 476 (1947).
13. S.M.C. de Barros, H.G. de Carvalho e A.G. da Silva, "Study Group Meeting on the Utilization of Research Reactors" 4-8 (1963), São Paulo, Brasil, não publicado.
14. E. Segré, *Phys.Rev.* 86, 21 (1952).
15. P.L. Parker e P.K. Kuroda, *J.Chem.Phys.* 25, 1084 (1956).
16. P.L. Parker e P.K. Kuroda, *J. Inorg.Nucl.Chem.* 5, 153 (1958).

17. F.T. Ashizawa e P.K. Kuroda, J.Inorg.Nucl.Chem. 5, 12 (1957).
18. P.K.Kuroda e R.R.Edwards, J.Inorg.Nucl.Chem. 3, 345 (1957).
19. D.Galliker, E. Hugentobler e B. Hahn, Helvetica Phys.Acta, 43, 593 (1970).
20. T. Ishimori, K. Ueno, K.Kimura, E. Akatsu, Y. Kobayashi, J. Akatsu, R. Ono e M. Hoshi, Radioch. Acta, 7, 95 (1967).
21. N. Condé e N. Holmberg, Journal of Nucl.Energy, 25, 331(1971).
22. R.L. Fleischer e P.B. Price, Phys.Rev. 133, 1363 (1964).
23. J.H. Roberts, R.Gold e R.J. Armori, Bull.Am.Phys.Soc. 12, 922 (1967).
24. M.P.T. Leme, C. Renner e M. Cattani, Nucl.Instr.Meth. 91, 577 (1971).
25. O.R. Frisch, Nature 143, 276 (1939).
26. H.L. Anderson, E.T. Booth, J.R. Dunning, E.Fermi, G.N.Glasoe e F.G. Slack, Phys.Rev. 55, 511 (1939).
27. J.Frenkel, Phys.Rev. 55, 987 (1939); J.Phys. USSR, 1, 125 (1939).
28. S. Frankel e M.Metropolis, Phys.Rev. 72, 914 (1947); R.D. Present, F. Reines e J.K.Knipp, Phys.Rev. 70, 557 (1946).
29. S. Cohen e W.J. Swiatecki, Ann. of Phys. 19, 164 (1962).
30. W.J. Swiatecki e S.Cohen, Ann. of Phys. 22, 406 (1963).
31. V.M. Strutinskii, N.Ya. Lyashchenko e N.A. Popov, Zh.Eksp. Teor.Fiz. 43, 584 (1962) (Sov.Phys. JETP 16, 418 (1963)).
32. V.M. Strutinskii, ibid. 45, 1891 (1963) (18, 1298 e 1305) (1964)).
33. D.L. Hill e J.A. Wheeler, Phys.Rev. 89, 1102 (1953)

34. J.A. Wheeler, em "Fast Neutron Physics", editado por J. B. Marion e J.L. Fowler, Interscience Publishers, New York, vol. 4, parte 2, pag. 2051 (1963).
35. A. Bohr, Proc. of the Intern. Conf. on the Peaceful Uses of Atomic Energy, 2, P/151, Geneva, 1955 .
36. G.T. Seaborg, Phys.Rev. 85, 157 (1952).
37. J.R. Huizenga, Phys.Rev. 94, 158 (1954).
38. A.Ghiorso, Proc. of the Inter. Conf. on the Peaceful Uses of Atomic Energy, 7, P/15, Geneva, 1955 .
39. W.J. Swiatecki, Phys.Rev. 100, 937 (1955); 101, 97 (1956).
40. S.A.E. Johansson, Nucl.Phys. 12, 449 (1959).
41. S.A.E. Johansson, Nucl.Phys. 22, 529 (1961).
42. S.G. Nilsson, Mat.Fys.Medd.Dan.Vid.Selsk. 29, n^o 16 (1955).
43. B.R. Mottelson e S.G. Nilsson, Mat.Fys.Skr.Dan.Vid.Selsk. 1, n^o 8 (1959).
44. V.M.Strutinsky, Nucl.Phys. A95, 420 (1967); A122, 1 (1968).
45. S.G. Nilsson, J.R. Nix, A. Sobiczewski, Z. Szymanski, S.Wycech, C.Gustafsson e P. Möller, Nucl.Phys. A115, 545 (1968).
46. S.G. Nilsson, C.F. Tsang, A.Sobiczewski, Z. Szymanski, S. Wycech, C.Gustafsson, I.L. Lamm, P. Möller e B. Nilsson, Nucl. Phys. A131, 1(1969).
47. J.R.Nix, Int.Conf. on the Properties of Nuclei Far From the Region of Beta-Stability, Leysin, p. 605(1970).
48. U.Mosel e H.W.Schmitt, Nucl.Phys. A165, 63(1971).
49. D.Scharnweber, W.Greiner e U.Mosel, Nuc.Phys. A164, 257(1971).

50. B.L.Anderson, F.Dickman e K.Dietrich, Nucl.Phys. A159, 337 (1970).
51. E.O.Fiset e J.R.Nix, Nucl.Phys. A193, nº 2 , 647 (1972)
52. F.B.Malik e P.C.Sabatier, Helv.Phys.Acta 46, 303(1973).
53. J.Randrup e C.F. Tsang, Nucl.Phys. A217, 221 (1973).
54. Sven A.E. Johansson, Nucl.Phys. 12, 449 (1959).
55. L.Katz, A.P.Baerg e F. Brown, Proceedings of the Second United Nations Conference on the Peaceful Uses of Atomic Energy, 15, P/200, Geneva, 1958 .
56. H.W. Koch, J.McElhinney e E.L. Gasteiger, Phys. Rev. 77, 329 (1950).
57. I. Halpern, Ann.Rev.Nucl.Sci. 9, 245 (1949).
58. E.J.Hyde, I.Perlman e G.T.Seaborg, The Nuclear Properties of Heavy Elements - Prentice Hall (pag. 23).
59. H.G. de Carvalho, "The Processing and Loading of Nuclear Emulsions", Cap. V do livro "Progress in Nuclear Technique and Instrumentation", North Holland, (1965).
60. H.G. de Carvalho e A.G. da Silva, Supl. ao Nuovo Cimento (Sé rie X) 19, 24(1961).
61. S.N. Sokolov e K.D.Tolstov, Korpuskularphotographie IV,468 (1963).
62. H.Schechter, "HISTOG". - subrotina elaborada no computador IBM 1620 do C.B.P.F.
63. H.H.Heckman, B.L.Perkins, W.G.Simon, F.M.Smith e W.H.Barkas, Phys. Rev. 117, 544 (1960).

64. E.P. George e J.Evans, Proc.Phys.Soc., A63, 1248 (1950).
65. P.B. Price e R.M.Walker, J. Geophys. Res. 68, 4847 (1963).
66. W.H. Fleming e H.G. Thode, Phys.Rev. 90, 857 (1953).
67. G.W.Wetherill, Phys.Rev. 96, 679 (1954).
68. D.E. Emerson, L.Stroud e T.O. Meyer, Geoch. Cosmoch. Acta 30, 847 (1966).
69. Yu.A.Shukolykov, G.Sh.Ashkinadze e V.B.Sharif-Zade, Atomnaya Énergiya, 34, 461 (1973).
70. V.B.Sharif-Zade, Yu.A.Shukolyukov, E.K.Gerling e G.Sh. Ashkinadze, Gaokhimiya 3, 314 (1972).
71. G.H. Henderson, Proc.Roy.Soc. A173, 250 (1939).
72. R.V.Gentry, Appl.Phys.Lett. 8, 65 (1966).
73. R.V.Gentry, Science 169, 670 (1970).
74. R.V. Gentry, Science 173, 727 (1971).
75. J.Takagi, Nature 227, 362 (1970).
76. J.Joly, Proc.Roy.Soc. A. Math. Phys.Sci., 102, 682 (1923).
77. A.H. Wapstra e N.B. Gove, Nuclear Data Tables 9, 265(1971).
78. J.Wing e P.Fong, Phys.Rev. 136, B923 (1964).
79. P.Marmier e E.Sheldon em "Physics of Nuclei and Particles", vol. 1, cap. 7, Academic Press (1969).
80. R.Hofstadter, em "Nuclear and Nucleon Structure", Benjamin, N.Y., (1963).
81. M.N. Rao e P.K.Kuroda, Phys.Rev. 147, 884 (1966).
82. R.W.Stoenner e M.Hillman, Phys.Rev. 142, 716 (1966).

83. J.C. Roy, Can. J.Phys. 39, 315 (1961).
84. R.Muenze, O.Hladik e G.Reinhard, Kernenergie 5,564 (1962).
85. H.G. de Carvalho e H.Schechter, Il Nuovo Cimento, 16A,
n° 1, 102 (1973).

* * *

RELAÇÃO DAS FIGURAS

FIG. I.1 - Energia liberada na divisão de uma gota líquida carregada ideal em n partes iguais em função de χ . A Fig. é tirada de W.J. Swiatecki em "Proceedings of the Second Nations Conference on the Peaceful Uses of Atomic Energy", 15, P/651, Geneva (1958).

FIG. I.2 - Barreiras de fissão calculadas^(29, 30) e determinadas experimentalmente em unidades relativas de E_f/E_s^0 , em função de $\chi = (Z^2/A)/(Z^2/A)_0$. Os valores experimentais considerados são E_s^0 [MeV] = $17,8 A^{2/3}$ e $(Z^2/A) = 48,0$. Os dados experimentais das barreiras de fissão são tirados de: J.A. Northrop et al., Phys.Rev. 115, 1277 (1959); J.R. Huizenga et al., Phys.Rev. 126, 210 (1962); T. Sikkeland, Phys.Rev. 135, B669 (1964).

FIG. I.3 - Formas dos núcleos no ponto de sela de acordo com o Modelo da Gota Líquida^(29,30).

FIG. I.4 - Meia-vida de fissão espontânea, $T_{1/2}$, versus Z^2/A . A Fig. é tirada da compilação de A.I. Obukhov e N.A. Perfilov, Usp.Fiz.Nauk 92, 621 (1967) [Soviet Phys. Uspekhi 10, 559 (1968)] .

FIG. I.5 - Meia-vida de fissão espontânea, $T_{1/2}$, versus barreira de fissão, E_f . Os dados experimentais são os da Tabela I.1. A reta é o ajuste dos pontos pelo método dos mínimos quadrados.

FIG. II.1 - Variação da densidade de grãos (enegrecimento) dos traços de fragmentos de fissão e de partículas alfa em função do tempo de revelação. A Fig. é tirada de H.G. de Carvalho em "Fotofissão do Urânio" (Resultados a baixas energias), Tese para Concurso de Catedrático (1964).

FIG. II.2 - Orientação no espaço da trajetória de um fragmento de fissão registrado em emulsão nuclear. XY é o plano da emulsão; \overline{AB} é o traço de um fragmento de fissão; $\overline{A'B'}$ é a projeção do traço sobre o plano da emulsão; $A''B''$ é a profundidade do traço (dip); α é o ângulo da projeção do traço com a direção \overline{OX} .

FIG. III.1 - Distribuição de alcances dos traços registrados numa película de emulsão nuclear carregada com ^{238}U com exposição total de 714 mg.dia/cm^2 . O pico em torno de $24 \mu\text{m}$ corresponde aos traços de fragmentos de fissão espontânea e o centrado em $10 \mu\text{m}$ é representativo da emissão espontânea de núclídeos ($20 \leq A \leq 70$) pelo ^{238}U . O histograma está corrigido para a eficiência de contagem do 2º pico (90%).

FIG. III.2 - Densidade de traços de fissão espontânea versus exposição total. Os pontos são os resultados obtidos no presente trabalho. A reta é o ajuste dos pontos pelo método dos mínimos quadrados.

FIG. III.3 - Correlação entre os raios dos halos pleocróicos em mica biotita e as energias das partículas alfa associadas. Os pontos experimentais são tirados de: ○ G. H. Henderson e S. Bateson, Proc. Roy. Soc. A145, 563 (1934); △ G. H. Henderson e L. G. Turnbull, Proc. Roy. Soc. A145, 582 (1934); □ G. H. Henderson et al., Proc. Roy. Soc. A158, 199 (1936); ● Ref. 76; ▲ Ref. 72.; ■ E. Wiman, Bull. Geol. Inst. Univ. Upps. 23, 1 (1930). A linha representa apenas um guia para o olho.

FIG. III.4 - Alcance de partículas carregadas em emulsão nuclear versus alcance em mica biotita. A reta é obtida correlacionando os alcances de partículas alfa em emulsão nuclear (W. H. Barkas em "Nuclear Research Emulsions", vol. 1, pag. 435, Academic Press Inc., 1963) com os alcances de partículas alfa em mica biotita (Fig. III.3).

FIG. III.5 - Penetração de barreira de potencial para a emissão espontânea de ${}^4_0\text{Ar}$ pelo ${}^{238}\text{U}$. Os valores da energia potencial e da separação entre os fragmentos são obtidos como descrito no texto (Seção 3.4.2).

FIG. III.6 - Energia de desintegração contra número de massa para alguns nuclídeos emitidos espontaneamente pelo ^{238}U . Os pontos são o resultado do cálculo conforme Eq. III.4.

FIG. III.7 - Meia-vida de emissão espontânea de íons pesados pelo ^{238}U contra o número de massa. Os pontos são o resultado do cálculo conforme Eq. III.13. Os isótopos de uma mesma espécie nuclear estão ligados por retas.

FIG. III.8 - Produção de nuclídeos na desintegração espontânea do ^{238}U . Os pontos são os rendimentos percentuais de produção de nuclídeos calculados de acordo com a Eq. III.14. A curva contínua é a distribuição de massa experimental dos fragmentos leves da fissão espontânea do ^{238}U obtida por Rao e Kuroda (curva I da Ref. 81). O rendimento total está normalizado a 100%.

FIG. III.9 - Distribuição de massa dos fragmentos de fissão do ^{235}U induzida por neutrons térmicos. Os pontos são os resultados experimentais obtidos pela técnica radioquímica: \triangle Ref. 82; \bullet Ref. 83; \circ Ref. 84.

TABELA I - Compilação dos Resultados Experimentais Obtidos para a Meia Vida da Fissão Espontânea do ^{238}U .

AUTORES	ANO	MÉTODO EXPERIMENTAL	CTE. DE DESINT. ($10^{-17} \text{ ano}^{-1}$)	MEIA-VIDA (10^{15} anos)	REP.
Libby	1939	Radioquímica	< 693	$> 0,1$	9
Petrzhak e Fierov	1940	Câmara de Ionização	0,69	100	10
Perfilov	1947	Emulsão Nuclear	5,33	13 ± 2	12
Perfilov	1947	Câmara de Fissão	$5,3 \pm 0,9$	13,17	a
Segre	1952	Câmara de Ionização	$8,7 \pm 0,3$	$8,04 \pm 0,30$	14
Kuroda e Edwards	1954	Radioquímica	11,74	$5,9 \pm 0,6$	b
Kuroda e Edwards	1954	Radioquímica	11,36	$6,1 \pm 1,5$	b
Kuroda et al.	1956	Radioquímica	$6,7 \pm 0,6$	$10,3 \pm 1,0$	c
Parker e Kuroda	1956	Radioquímica	8,25	$8,4 \pm 0,8$	15
Kuroda e Edwards	1957	Radioquímica	11,74	$5,9 \pm 0,4$	18
Parker e Kuroda	1958	Radioquímica	$8,7 \pm 0,5$	$8,0 \pm 0,5$	16
Gerling et al.	1959	Radioquímica	$11,9 \pm 1,0$	$5,8 \pm 0,5$	d
Kuz'minov et al.	1960	Câmara de Ionização	$10,7 \pm 0,5$	$6,5 \pm 0,3$	e
de Barros et al.	1963	Emulsão Nuclear	8,25	$8,5 \pm 0,5$	13
Fleisher e Price	1964	Mica	$6,6 \pm 0,8$	10,5	22
Fleisher e Price	1964	Radioquímica	6,9	10,0	22
Rao e Kuroda	1966	Radioquímica	$7,8 \pm 0,9$	8,88	f
Roberts et al.	1967	Mica	6,84	10,1	23
Spadavecchia e Hahn	1967	Spinner	8,42	$8,23 \pm 0,10$	8
Ishimori et al.	1967	Radioquímica	9,63	$7,191 \pm 0,158$	20
Roberts et al.	1968	Mica	$7,03 \pm 0,11$	9,85	b
Galliker et al.	1970	Spinner	8,46	$8,19 \pm 0,06$	19
Lema et al.	1971	Mica	$7,30 \pm 0,16$	9,5	24
Condé e Holmberg	1971	Câmara de Ionização	6,30	11 ± 2	21

a M. A. Perfilov, J. Exp. Theor. Phys. USSR 17, 746 (1947).
 b P. K. Kuroda e R. R. Edwards, J. Chem. Phys. 22 1940 (1954).
 c P. K. Kuroda, R. R. Edwards e F. T. Ashizawa, J. Chem. Phys. 25, 603 (1956).
 d E. K. Gerling, Yu. A. Shukvynkov e B. A. Makarodikin, Radiokhimiya 1, 223 (1959)
 e B. D. Kuz'minov, L. S. Kursaeva, V. G. Nesterov, L. I. Prokhorova e G. P. Smireukin, Soviet Phys. JETP 10, 290 (1960).
 f M. N. Rao e P. K. Kuroda, Phys. Rev. 147, 884 (1966).
 g A. Spadavecchia e B. Hahn, Helv. Phys. Acta 40, 1063 (1967).
 h J. H. Roberts, R. Gold e R. J. Armori, Phys. Rev. 174, 1482 (1968).

TABELA I-1 - Meia-vida de Fissão Espontânea e Barreira de Fissão para Alguns Elementos Pesados (*).

NUCLÍDEO	BARREIRA DE FISSÃO (MeV)	REF.	MEIA-VIDA (ANOS)
^{235}U	5,75	58	$1,8 \times 10^{17}$
^{236}U	5,80	57	$2,0 \times 10^{16}$
^{239}Pu	5,31	56	
	5,48	58	$5,5 \times 10^{15}$
^{240}Pu	4,70	57	$1,28 \times 10^{11}$
^{241}Am	5,31	55	$2,30 \times 10^{14}$

(*) As meias-vidas foram tiradas de Hyde et al. (58)

TABELA III.1 - Películas de Emulsão Nuclear (KO-Ilford) Analisadas no Presente Trabalho.

NÚMERO DA CHAPA	ESPESSURA (μm)	MASSA (grama)	CARGA (mg U/g)	TEMPO (dia)	EXPOSIÇÃO TOTAL (mg.dia/cm ²)	CALH ^a (μm)	CALV ^b (μm)	FATOR DE CONTRAÇÃO (μm)
1	453	4,27	21,17	135	477	1,139	1,140	4,881
2	450	4,14	21,17	208	714	1,121	1,120	4,013
3	240	1,82	18,16	1538	2545	1,169	1,156	3,317
4	250	2,33	18,16	1548	3382	1,032	1,036	3,313
5	590	0,80	19,22	3057	12471	1,197	1,169	3,525

^a CALH = Calibração Horizontal

^b CALV = Calibração Vertical

TABELA III.2 - Alcance e ionização relativa para alguns modos de emissão espontânea de ions pesados pelo ^{238}U .

NUCLÍDEO EMITIDO	ENERGIA CINÉTICA (MeV)	ALCANCE EM EMULSÃO (μm)	IONIZAÇÃO RELATIVA
^{10}Be	6	8	5
^{11}B	9	9	5.5
^{12}C	16.7	13.6	5.2
^{14}C	19	14.4	5.3
^{14}N	15.5	10.4	7.7
^{15}N	21	14	6.6
^{15}O	16	9	9.5
^{16}O	25	14.5	7.5
^{16}F	22.5	11	10
^{18}F	28	14	9.5
^{20}Ne	32	14	10
^{21}Ne	33	14.8	10.5
^{22}Ne	38	17	10
^{24}Ne	41	18	10
^{22}Na	30	12	13
^{26}Na	43	17	12
^{24}Mg	40	14	13
^{28}Mg	50	18	12.5
^{27}Al	44	14.5	15
^{30}Al	51	16.8	14.5
^{28}Si	45.5	14	16.4
^{31}Si	55	16.5	15.5
^{30}P	44	13	19
^{31}P	51	14.5	18
^{32}S	50	14	20
^{36}S	67	18	18
^{38}S	68	18	19
^{42}Ar	73	17.5	22
^{47}K	76	18	24
^{40}Ca	60	14	27
^{48}Ca	81	18	25.5
^{51}Sc	81	17.5	28

TABELA III.3 - Energia de desintegração, constante de desintegração e meia-vida para alguns possíveis modos de emissão espontânea de íons pesados pelo ^{238}U .

NUCLEÍDO EMITIDO	NÚCLEO PRODUTO	BARREIRA DE COULOMB (MeV)	ENERGIA DE DESINTEG. (MeV)	λ (10^{21} seg^{-1})	FATOR DE GAMOW	CONSTANTE DE DESINTEG. (ANO^{-1})	MEIA-VIDA (ANO)
^{210}Po	^{210}Pb	100	46	2.32	117	1.3×10^{-22}	5.4×10^{21}
^{210}Po	^{210}Bi	108	51	2.41	122	0.9×10^{-24}	7.0×10^{23}
^{210}Po	^{210}At	116	57	2.49	117	1.6×10^{-22}	4.3×10^{21}
^{210}Po	^{210}Fr	131	69	2.76	111	3.3×10^{-20}	2.1×10^{19}
^{210}Po	^{210}Ac	144	79	2.93	113	0.9×10^{-20}	0.8×10^{20}
^{210}Po	^{210}Th	144	78	2.86	118	3.6×10^{-23}	1.9×10^{22}
^{210}Po	^{210}Pa	143	81	2.94	109	0.6×10^{-18}	1.1×10^{18}
^{210}Po	^{210}U	156	88	3.04	118	6.7×10^{-23}	1.5×10^{22}
^{210}Po	^{210}Np	162	92	3.12	122	0.8×10^{-24}	0.9×10^{24}
^{210}Po	^{210}Pu	161	92	3.18	121	2.7×10^{-24}	3.6×10^{23}
^{210}Po	^{210}Am	161	95	3.20	111	0.9×10^{-19}	0.8×10^{19}
^{210}Po	^{210}Cm	167	96	3.21	122	0.7×10^{-24}	0.9×10^{24}
^{210}Po	^{210}Bk	167	97	3.21	119	1.6×10^{-23}	4.3×10^{22}
^{210}Po	^{210}Cf	167	102	3.32	104	0.6×10^{-16}	1.1×10^{16}
^{210}Po	^{210}Es	167	101	3.33	107	2.4×10^{-18}	2.9×10^{17}
^{210}Po	^{210}Fm	166	102	3.33	103	2.0×10^{-18}	3.4×10^{18}
^{210}Po	^{210}Md	173	101	3.33	120	4.9×10^{-24}	1.4×10^{23}
^{210}Po	^{210}No	172	101	3.34	121	4.2×10^{-24}	1.6×10^{23}
^{210}Po	^{210}Pm	172	103	3.38	114	3.0×10^{-21}	2.3×10^{20}
^{210}Po	^{210}Rf	177	107	3.46	114	2.8×10^{-21}	2.5×10^{20}
^{210}Po	^{210}Ac	187	113	3.63	122	1.9×10^{-24}	3.7×10^{23}
^{210}Po	^{210}Rn	203	128	4.01	117	2.3×10^{-22}	3.0×10^{21}

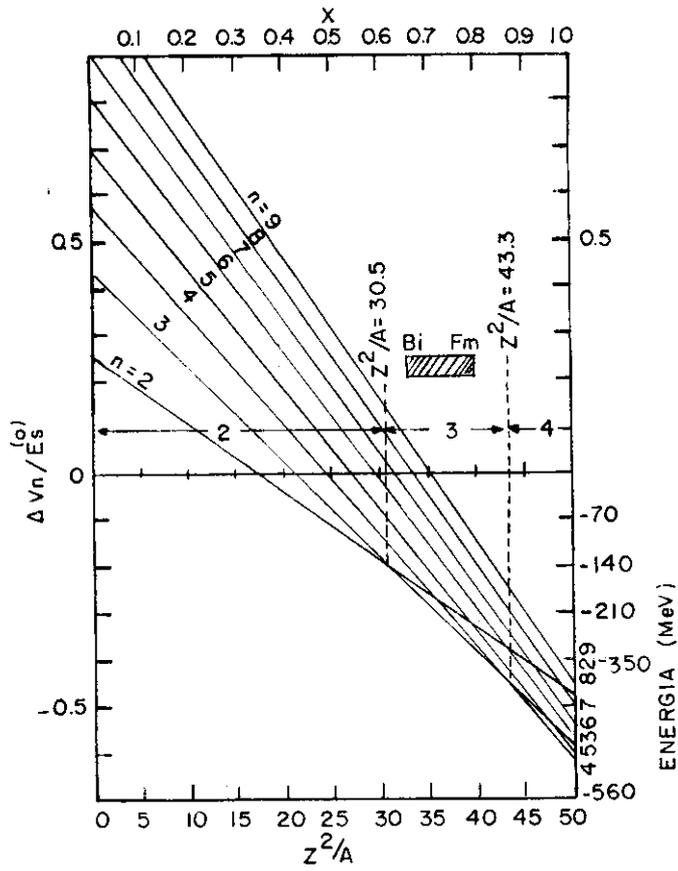


FIG. I. I

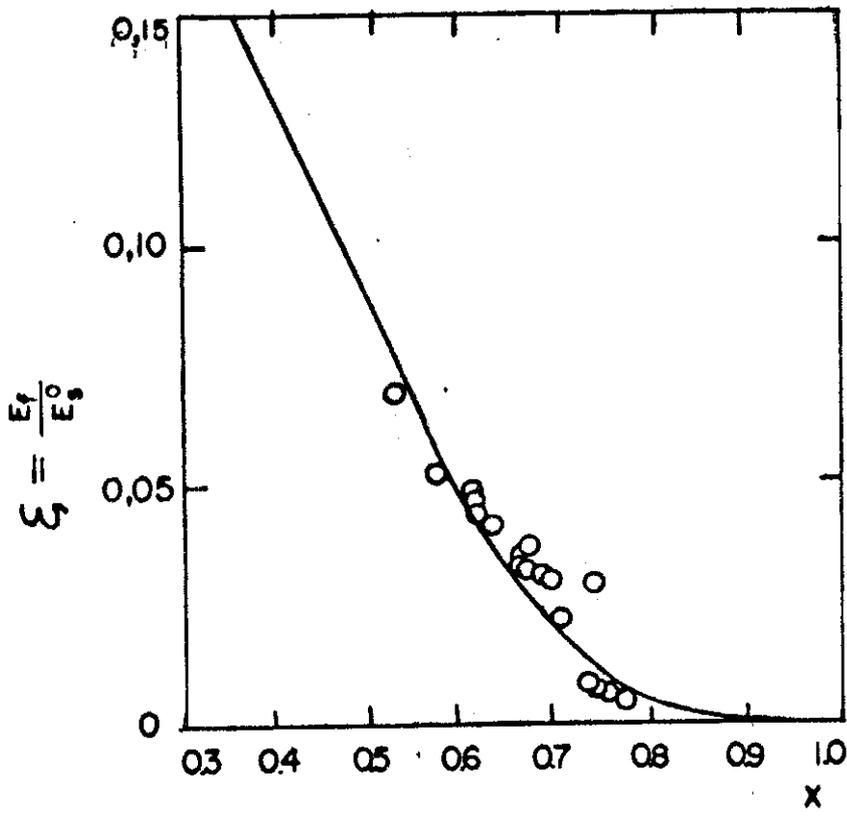


FIG.I.2

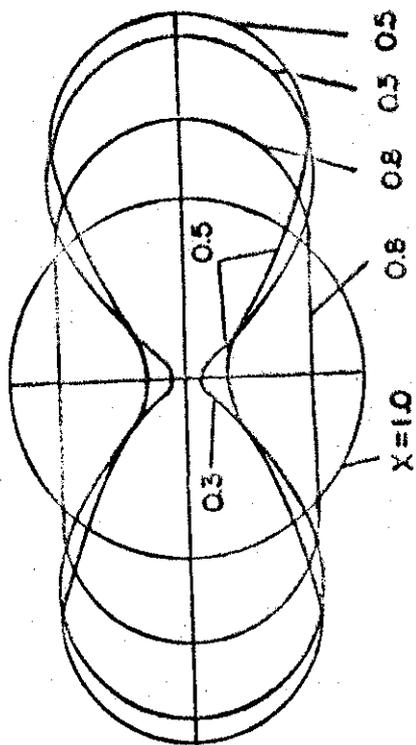


FIG.I.3

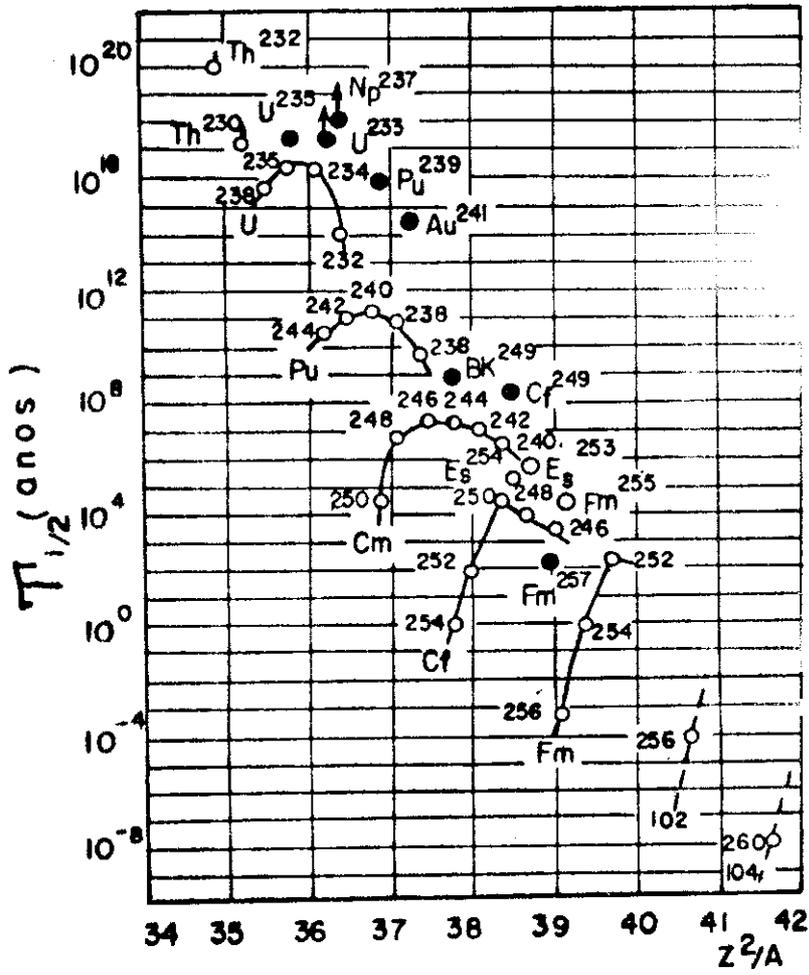


FIG.I.4

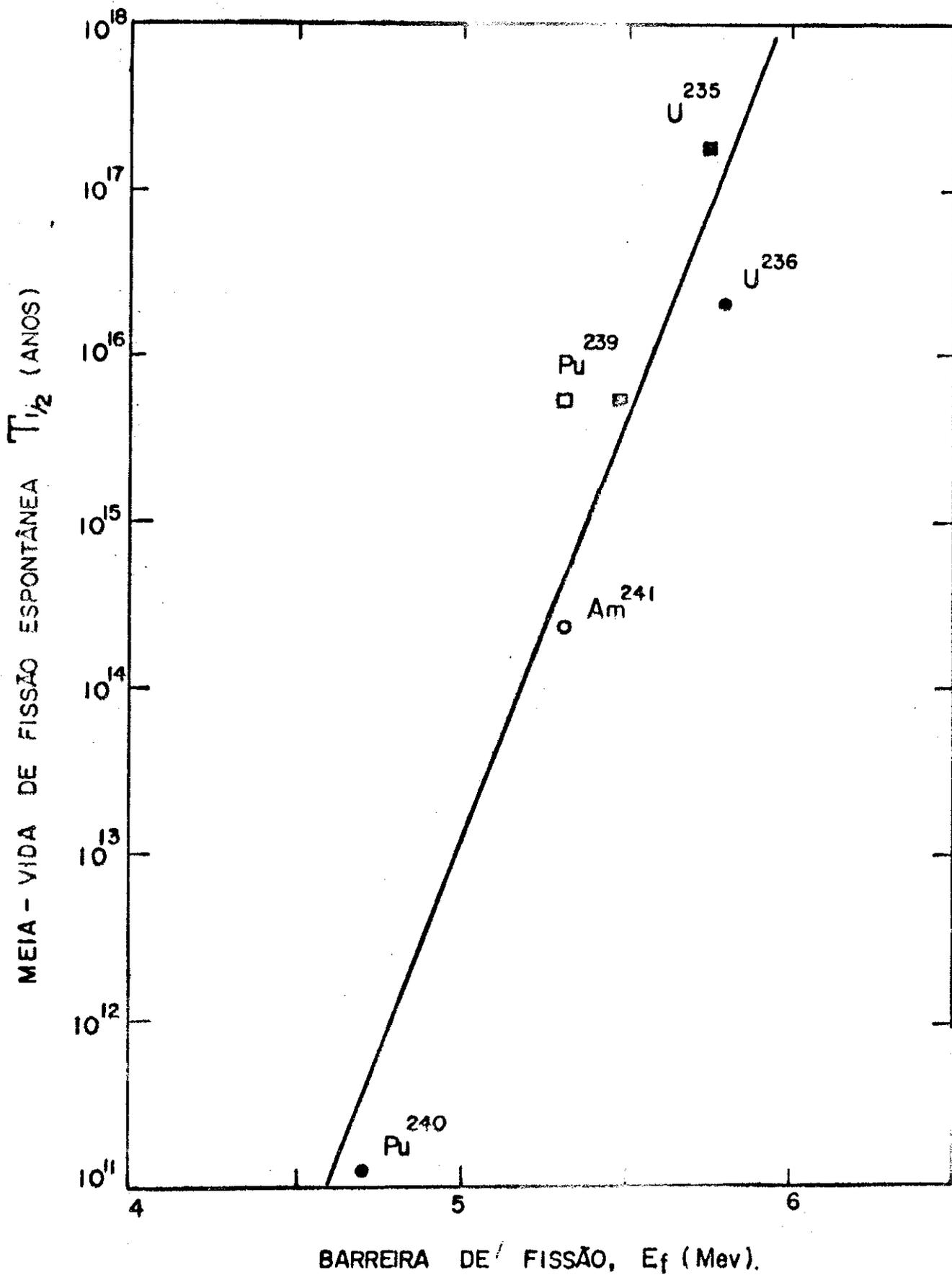


FIG. I.5

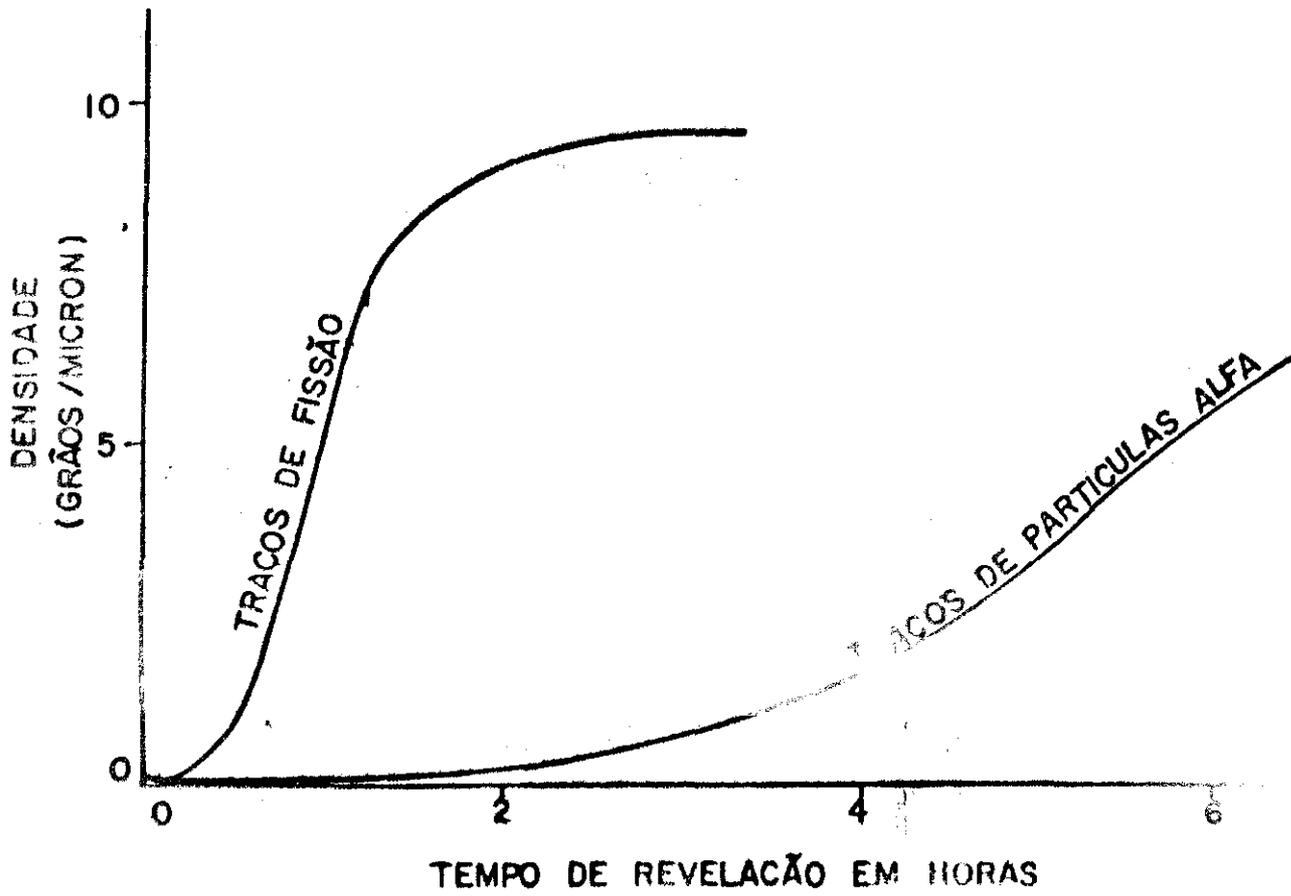


FIG. II. I

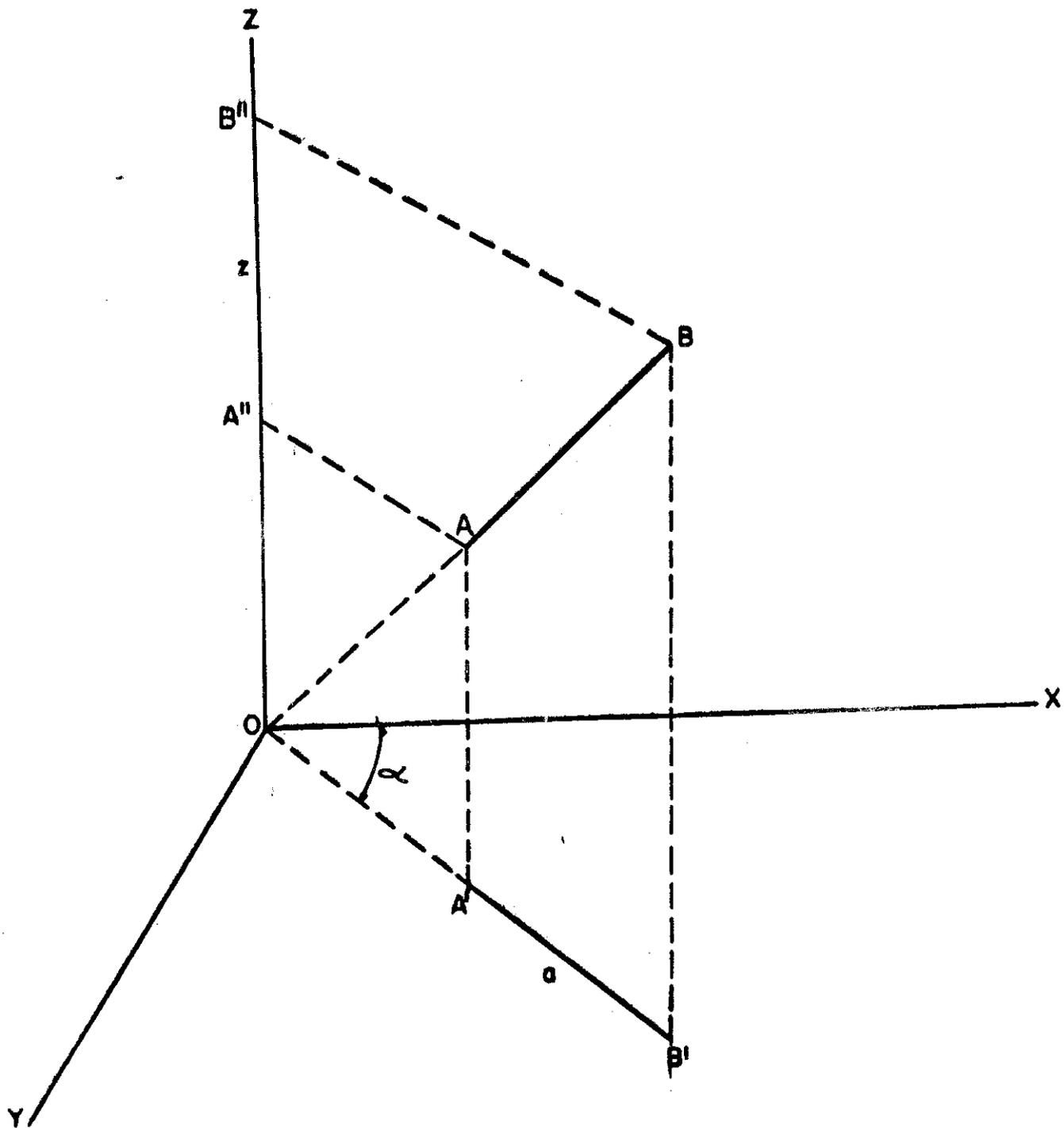


FIG. II.2

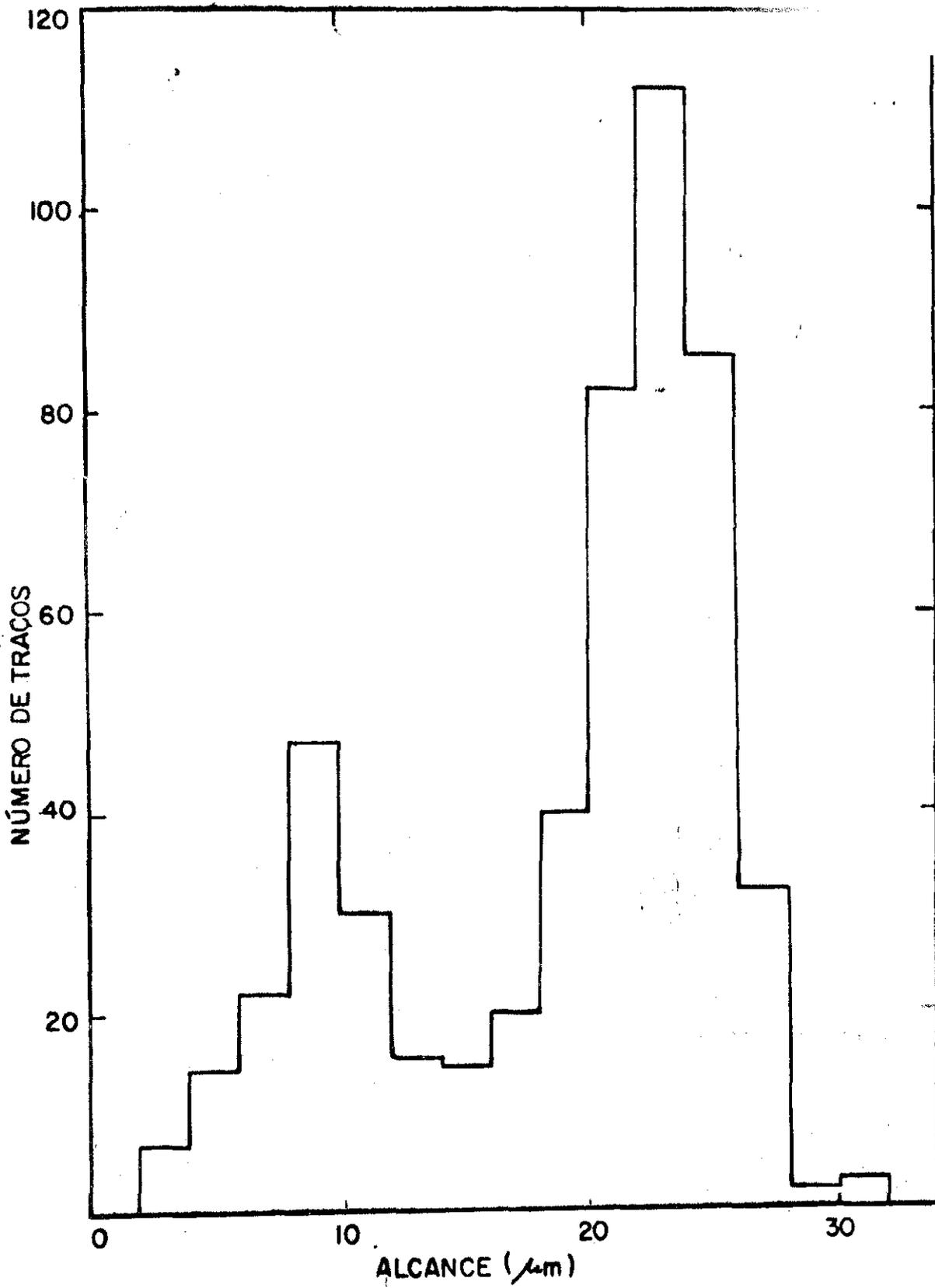


FIG II. I

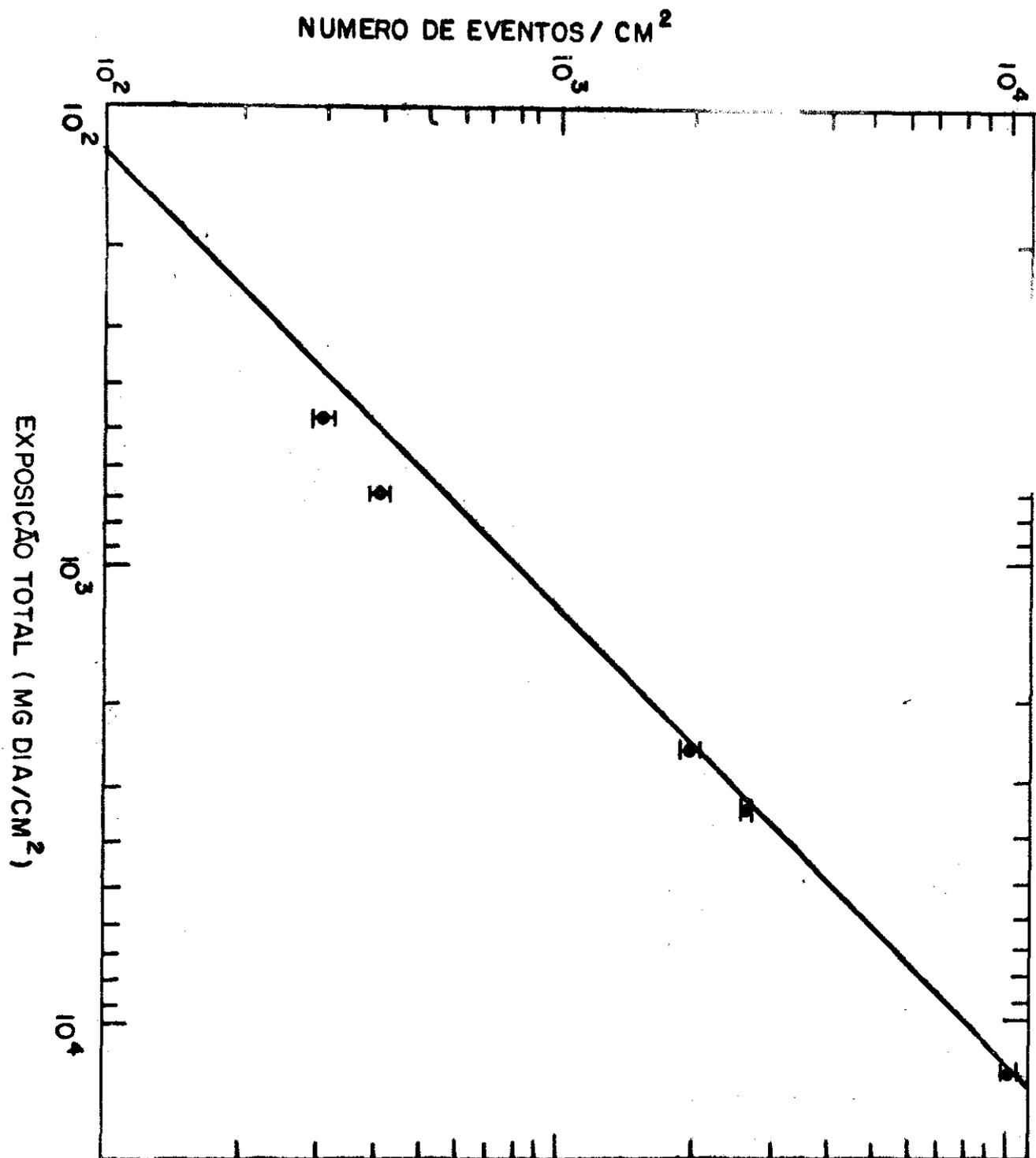
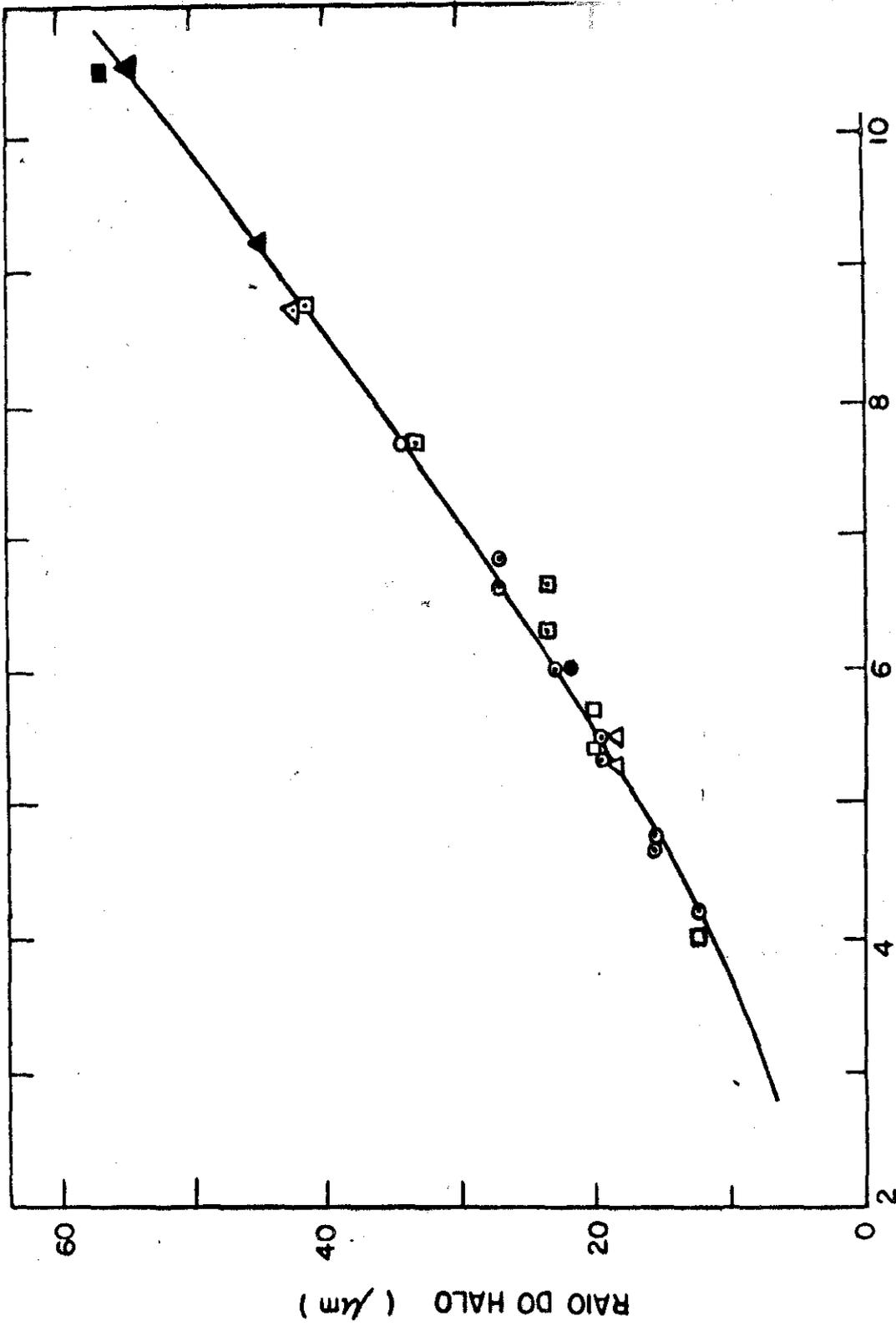


FIG. III.2



ENERIA DA PARTÍCULA ALFA (MeV)

FIG. III. 3

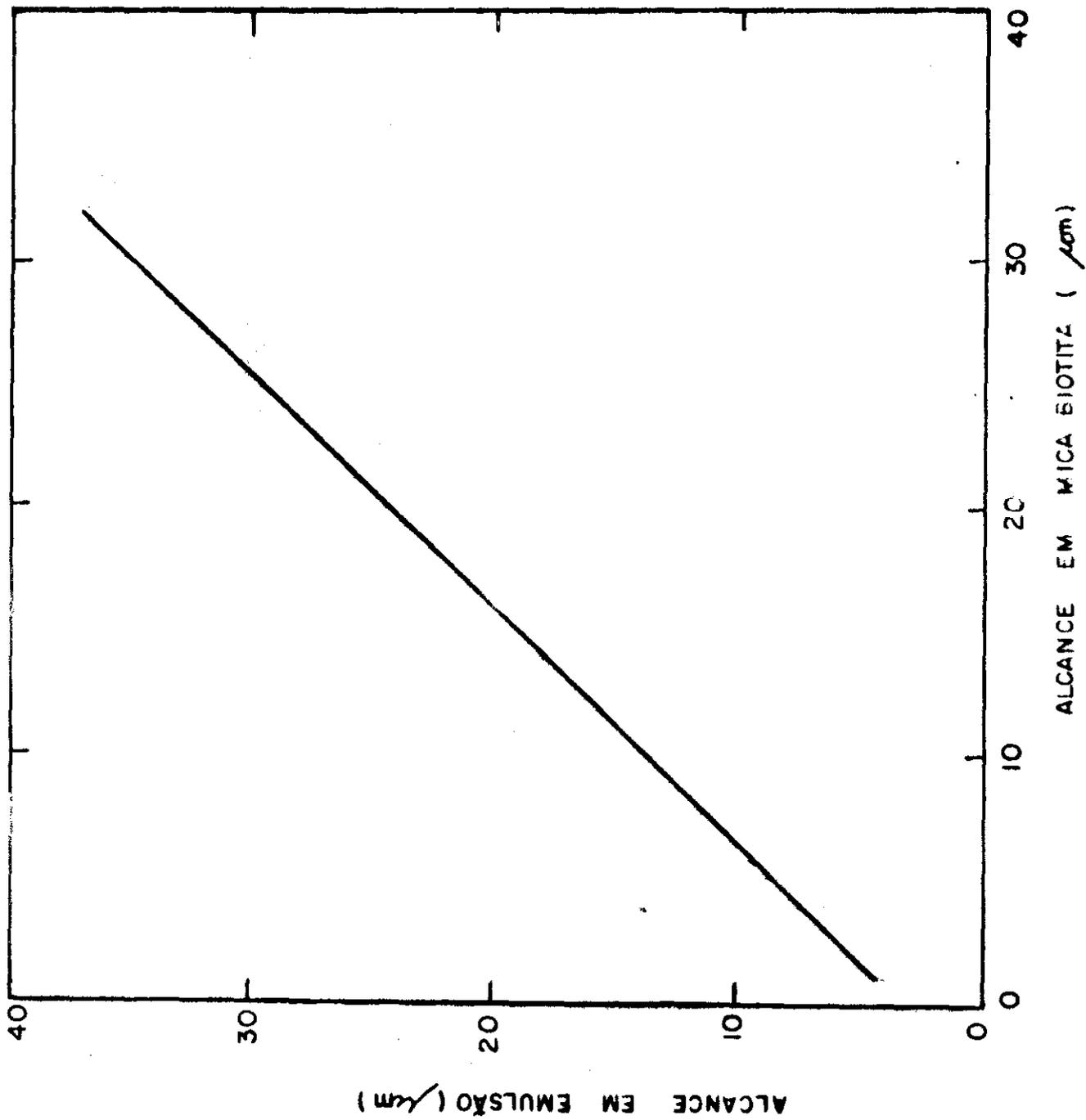


FIG.III.4

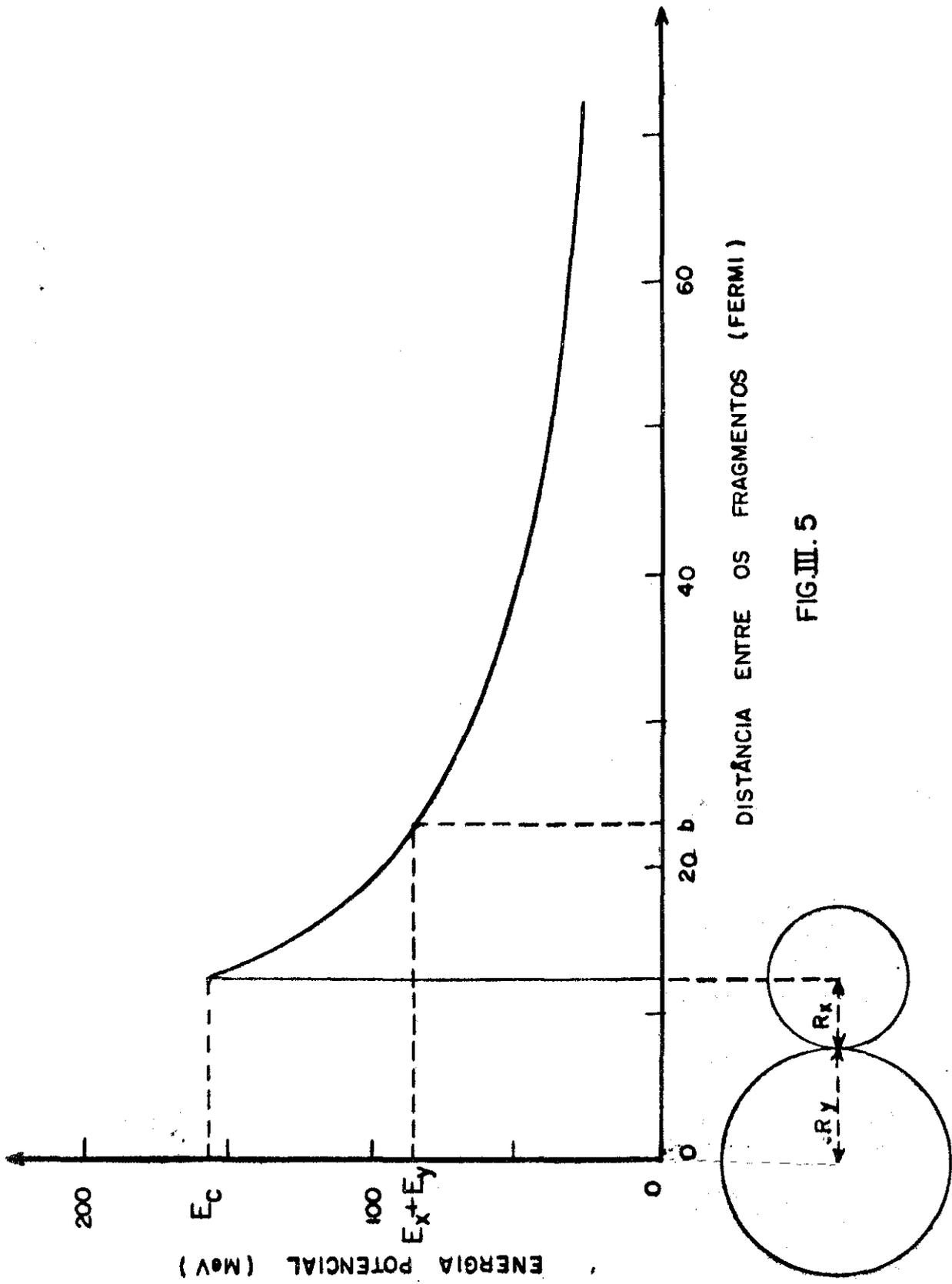


FIG. III. 5

DISTÂNCIA ENTRE OS FRAGMENTOS (FERMI)

ENERGIA POTENCIAL (MeV)

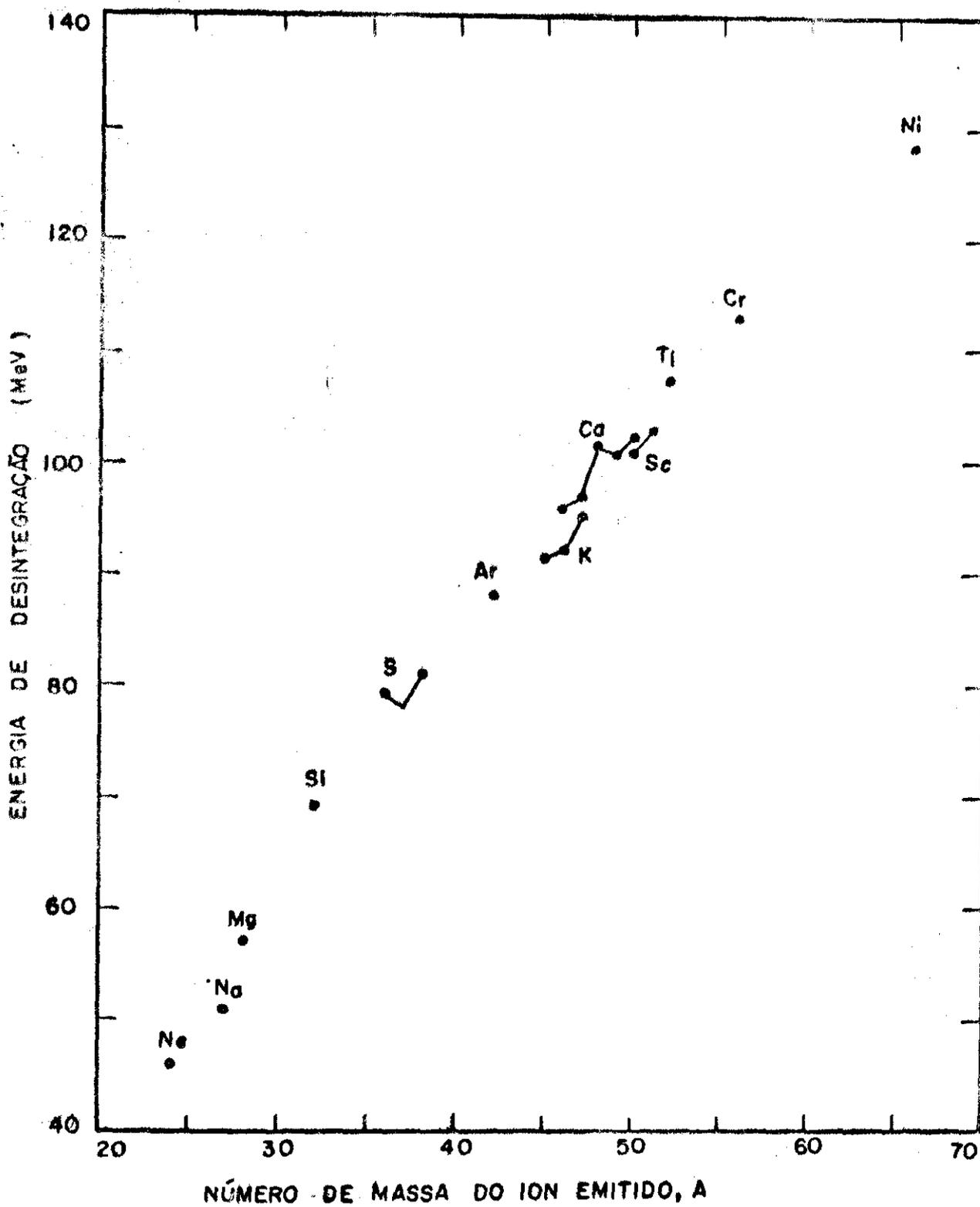


FIG. III.6

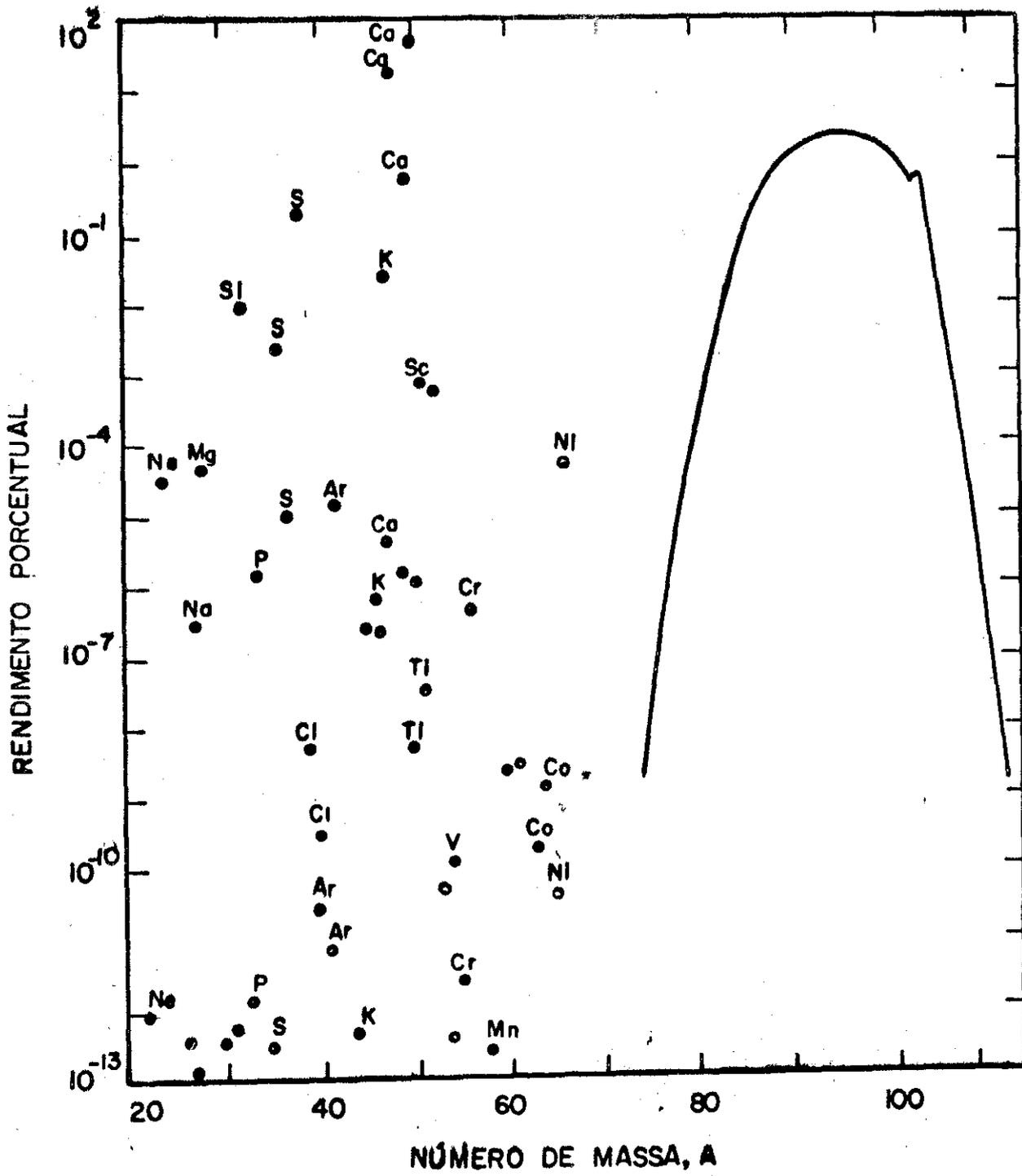


FIG. III. 8

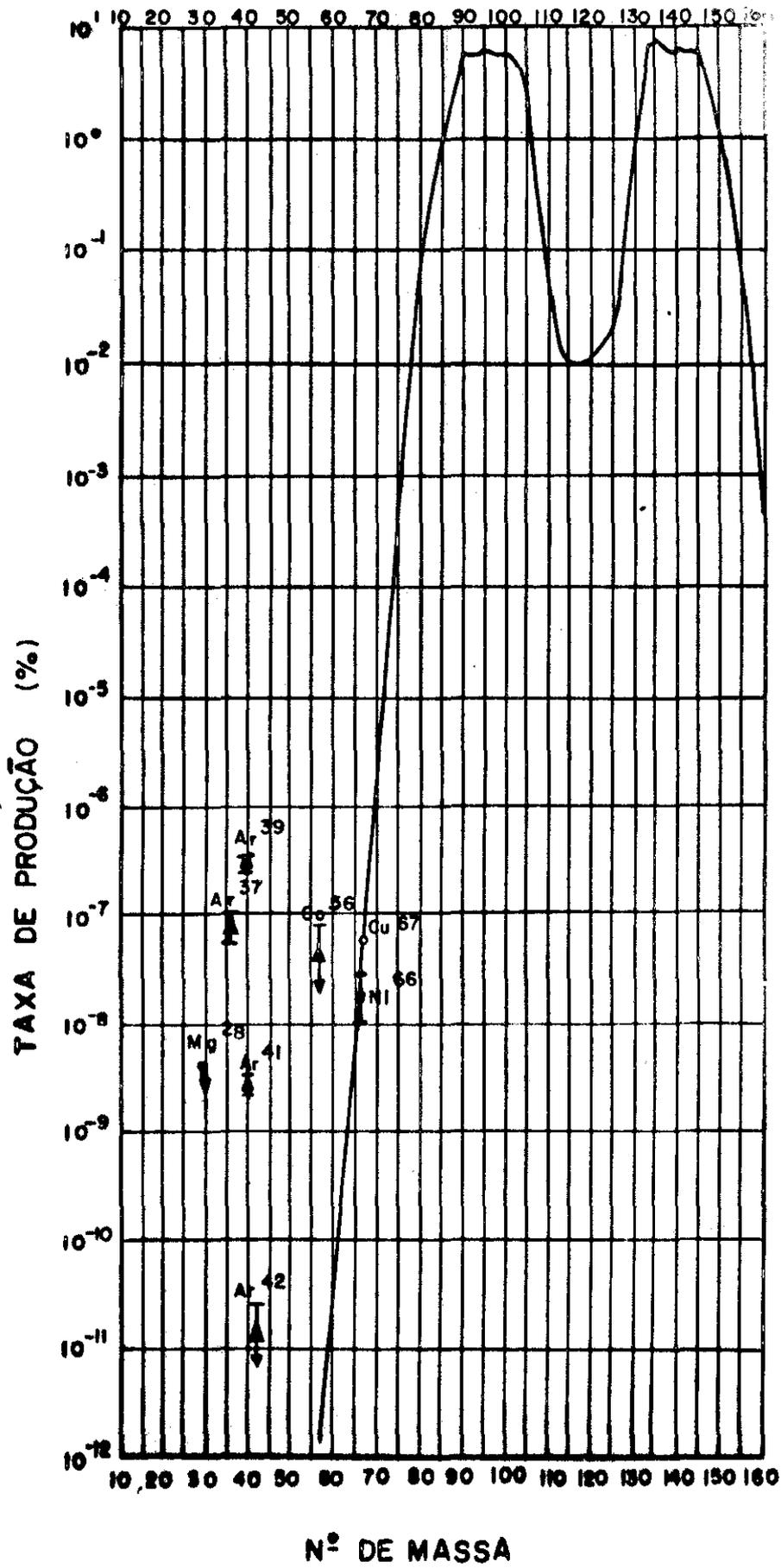


FIG. III 9