

Paulo Gonçalves da Cunha

ESTUDO DA ATIVIDADE ALFA NA REGIÃO DE TERRAS RARAS

Tese de

MESTRADO

CENTRO BRASILEIRO DE PESQUISAS FÍSICAS

Rio de Janeiro

- 1978 -

AGRADECIMENTOS

- ao Professor Jader Benuzzi Martins, orientador deste trabalho, pela oportunidade oferecida, e cujo apoio e segurança me foram fundamentais;
- ao Professor Odilon Antonio Paula Tavares, grande amigo, pela paciente e inestimável colaboração em todas as etapas deste trabalho;
- ao Professor Luis Tauhata, pela amizade e estímulo a mim dis- pensados nos vários anos de convívio;
- ao Professor Hervaldo Guimarães de Carvalho, que idealizou e criou condições para a execução deste trabalho;
- ao Dr. Rex Nazarê Alves e Dra. Dagmar Carneiro da Cunha Reis, ex-diretor e atual diretora do Instituto de Radioproteção e Dosimetria, pelo incentivo e facilidades proporcionadas;
- aos Professores Monica Gall e Helio Schechter, pela dedicação e esmero na preparação e revelação das películas utilizadas;
- ao Professor Alfredo Marques de Oliveira, pela acolhida no Departamento de Física Nuclear, quando de minha iniciação científica;
- ao Professor Vito di Napoli e colegas da Física Nuclear Experimental do CBPF: João de Deus Pinheiro Filho, Emil de Lima Medeiros, Roberti Poledna, Ana Maria Silveira de Aquino, Elizabeth Santos de Almeida, Mioco Foshina e João Lucio Vieira, pela colaboração e estímulo;
- aos colegas do Instituto de Radioproteção e Dosimetria, pela amizade e apoio;
- à química Ivone dos Anjos G. de Almeida, do Instituto de Engenharia Nuclear, pela preparação dos nitratos de terras raras;
- à calculista Celeste Aida Brito Lopes, pela eficiente colaboração;
- às microscopistas Hilda Vieira da Silva, Luísa dos Reis Rosa e Lésia Hryhorczuk pela excelente qualidade de seus trabalhos;
- à Helena de Souza Ciccarino, pela eficiência e carinho que dedicou à composição gráfica deste trabalho.
- Ao Centro Brasileiro de Pesquisas Físicas que me proporcionou oportunidade de estudos e desenvolvimento científico.

RESUMO

Emulsões nucleares Ilford L4 carregadas com complexos de terras raras de composição isotópica natural foram utilizadas para uma redeterminação das meias vidas de desintegração alfa dos isótopos Nd^{144} , Gd^{152} e Er^{162} .

A técnica utilizada permitiu um armazenamento das películas por até 4 anos, correspondendo a exposições totais de 700, 12 e 7 mg. dia/cm² de Nd^{144} , Gd^{152} e Er^{162} , respectivamente. Nas condições da presente experiência não foi constatada ocorrência de "fading".

Os resultados obtidos para a meia vida do Nd^{144} e Gd^{152} foram $(6.1 \pm 2.9) \times 10^{16}$ anos e $(2.1 \pm 0.4) \times 10^{14}$ anos, respectivamente. No caso do Er^{162} , foi somente possível estabelecer um limite inferior de 1.5×10^{15} anos para a sua meia vida.

Esses valores foram confrontados com os obtidos por outros autores, bem como com os calculados através da teoria de penetração de barreira de potencial.

S U M Á R I O

	<u>Pág.</u>
AGRADECIMENTO	iii
RESUMO	iv
LISTA DE FIGURAS	vii
LISTA DE TABELAS	ix
 INTRODUÇÃO	 1
 <u>CAPÍTULO I - TEORIA</u>	 7
1.1 - INTRODUÇÃO	7
1.2 - ENERGETICA DO DECAIMENTO ALFA	8
1.3 - TEORIA DO DECAIMENTO ALFA	15
1.3.1 - Descrição	15
1.3.2 - Fator de Frequência F	21
1.3.3 - Raio Nuclear	24
1.3.4 - Fator de Impedimento	27
1.4 - RADIOATIVIDADE ALFA NA REGIÃO DAS TERRAS RARAS	37
 <u>CAPÍTULO II - PROCEDIMENTO EXPERIMENTAL</u>	 43
2.1 - INTRODUÇÃO	43
2.2 - CARREGAMENTO DE EMULSÕES NUCLEARES	46
2.2.1 - Propriedades dos Complexos Usados no Carrega- mento	46
2.2.2 - Técnica de Carregamento	47
2.3 - EXPOSIÇÃO	49
2.4 - REVELAÇÃO	50
2.5 - MICROSCOPIA	53
2.5.1 - Observaçã dos Traços	53
2.5.2 - Eficiência de Contagem	57

<u>CAPÍTULO III</u> - RESULTADOS E DISCUSSÕES	59
3.1 - INTRODUÇÃO	59
3.2 - CARACTERÍSTICAS DAS PELÍCULAS CARREGADAS COM TERRAS RARAS	61
3.3 - TRAÇOS DEVIDOS À RADIAÇÃO DE FUNDO	62
3.4 - DESVANECIMENTO DA IMAGEM LATENTE	65
3.5 - DETERMINAÇÃO DA MEIA VIDA	67
3.6 - DISCUSSÃO DOS RESULTADOS	73
3.6.1 - Neodímio	73
3.6.2 - Gadolínio	76
3.6.3 - Érbio	77
3.7 - CONCLUSÃO	78
 BIBLIOGRAFIA	 80

LISTA DE FIGURAS

<u>Fig.</u>		<u>Pág.</u>
1.1.1	- Lei de Geiger-Nutall - Relação entre o logarítmo da constante de decaimento alfa e o range da partícula alfa no ar, relativo aos elementos que compõem as três séries radioativas naturais (da ref. (15)).....	8
1.2.1	- Variação da energia de decaimento alfa em função do número de massa, para os núcleos da região dos elementos pesados. A energia de decaimento alfa é igual à soma da energia da partícula alfa da transição para o estado fundamental do núcleo residual com a energia de recuo do núcleo residual (da ref. (17)).....	10
1.3.1.1	- Representação esquemática da energia potencial de uma partícula alfa nas vizinhanças do núcleo, como suposto na teoria do decaimento alfa	18
1.3.4.1	- Relação entre o logarítmo da meia vida e o inverso da raiz quadrada da energia efetiva de decaimento alfa para os núcleos par-par.....	30
1.3.4.2	- Relação entre o logarítmo da meia vida e inverso da raiz quadrada da energia efetiva de decaimento alfa para os núcleos par-ímpar. As retas de referência foram definidas pelas constantes A e B da Tabela 1.3.4.1.; * transição para o estado fundamental ; x transição mais intensa observada quando esta não é para o estado fundamental	32
1.3.4.3	- Distribuição do logarítmo dos fatores de impedimento, calculados por Rasmussen ⁽³¹⁾ para transições	

	com $\ell \neq 0$ nos núcleos pesados par-par	36
1.4.1	- Variação da energia de decaimento alfa em função do número de massa, para os núcleos com $Z < 83$	39
1.4.2	- Relação entre logaritmo de meia vida e a energia efetiva de decaimento alfa para os núcleos de terras raras que possuem estes valores bem medidos.....	41
2.5.1.1	- Orientação espacial da trajetória de uma partícula alfa na emulsão nuclear	54
3.3.1	- Distribuição de alcance de partículas alfa na película carregada com gadolínio	63
3.4.1	- Distribuição de "estrela" na emulsão carregada com érbio	66
3.5.1	- Distribuição de alcance de partículas alfa na película carregada com neodímio	69
3.5.2	- Distribuição de alcance de partículas alfa na película carregada com gadolínio	70
3.5.3	- Distribuição de alcance de partículas alfa na película carregada com érbio	71

LISTA DE TABELAS

<u>Tab.</u>	<u>Pág.</u>
1.3.3.1 - O raio nuclear efetivo determinado por diferentes fórmulas do decaimento alfa e outros fenômenos físicos.....	26
1.3.4.1 - Coeficientes da reta $\log t_{1/2} = A(Q_{\alpha})^{-1/2} + B$ determinados pelo método dos mínimos quadrados	28
1.3.4.2 - Comparação entre a meia vida experimental e a teórica para emissões alfa com $\ell = 2$ em núcleos par-par	31
1.3.4.3 - Fatores de impedimento das transições alfa no Ra^{223} ($t_{1/2} = 11.43$ d) (29)	34
1.3.4.4 - Fatores indicativos da contribuição do momento angular na determinação do fator de penetrabilidade P. Estes fatores foram calculados usando-se a eq.(1.3.1.17).....	35
2.1.1 - Tipos de <i>detetores</i> utilizados na investigação da atividade alfa do Sm^{147} . Detalhes dos métodos experimentais utilizados podem ser encontrados nas respectivas referências	44
3.2.1 - Características das películas de emulsão nuclear carregadas com elementos de terras raras e utilizadas no presente trabalho	61
3.3.1 - Alcance na emulsão nuclear de partículas alfa emitidas por alguns radioisótopos das séries radioativas naturais	64
3.5.1 - Dados experimentais concernentes à determinação das meias vidas de atividade alfa de diferentes elementos de terras raras	73

3.6.1.1 - Resultados de medidas de meia vida do Nd^{144}	74
3.6.1.2 - Comparação entre as meias vidas experimental e teórica para o Nd^{144} e Gd^{152} determinadas no presente trabalho	76
3.6.2.1 - Resultados de medidas de meia vida do Gd^{152}	77

INTRODUÇÃO

A radioatividade alfa foi descoberta em 1896 por Becquerel, ao constatar ser um sal de urânio capaz de impressionar um filme radiográfico se posto em contato com este. Rutherford mostrou então que esta radioatividade era composta de dois tipos de radiação corpuscular, de cargas e massas diferentes. Estas partículas foram chamadas de alfa e beta.

A investigação da radioatividade alfa, ou dos processos de interação destas partículas quando incidem em núcleos, tem fornecido valiosas informações acerca da estrutura atômica e nuclear. Foi estudando o espalhamento de tais partículas que Rutherford mostrou a inconsistência do modelo atômico de Thomson, conceituando então o núcleo como o centro de massa do átomo e atribuindo sinal positivo à carga do núcleo. Além disso, bombardeando núcleos com partículas alfa, induziu transmutações nucleares que resultaram na descoberta de que o núcleo era constituído por prótons. Consequentemente, estabeleceu-se o caráter das forças nucleares como de curto alcance e atrativas, condições estas essenciais à existência do núcleo.

O estudo da sistemática de decaimento alfa dos elementos que compõem as três séries radioativas naturais, permitiu que se estabelecesse empiricamente uma relação exponencial entre a meia vida e a energia de desintegração alfa. Tal relação, foi posteriormente fundamentada com a aplicação da mecânica quântica à física nuclear, que permitiu tratar o decaimento

alfa como um problema de penetração de barreira de potencial. Contudo, nem todos os dados experimentais estavam em concordância com esta teoria.

Embora se soubesse que o Po^{214} (RaC') e o Po^{212} (ThC') emitiam grupos de alfas de longo alcance e com diferentes energias (8 a 11 MeV), acreditava-se que os demais núclídeos emitiam partículas alfa com uma energia característica. Em 1930, Rosenblum mostrou, através de medidas de deflexão magnética, que o espectro de partículas alfa emitidas por alguns núclídeos possuía uma estrutura fina, isto é, as partículas não eram emitidas com uma única energia, e sim com energias muito próximas. A partir da constatação de que a cada partícula do espectro alfa estava associada uma ou mais radiações gama, foi possível interpretar este espectro em termos de níveis de energia do núcleo. O núcleo residual pode ser formado em diferentes estados de excitação, ocorrendo posteriormente uma emissão gama que o levaria ao estado fundamental. Deste modo, através de correlações alfa-gama, pode-se construir o diagrama de níveis de energia do núcleo residual. A origem de partículas alfa de longo alcance pode ser explicada, também, em termos de níveis de energia. O núcleo emissor alfa estaria, antes da emissão, num estado excitado. A esta energia de excitação se somaria a energia de desintegração alfa que o núcleo possuiria se estivesse no estado fundamental, resultando assim energias relativamente altas, em relação a fenômenos espontâneos, para a partícula alfa emitida.

Em 1934, Mme. Curie e Joliot, bombardeando núcleos leves com partículas alfa, constataram, pela primeira vez, ser pos

sível produzir artificialmente núcleos radioativos. O aprimoramento das técnicas de produção desses núcleos possibilitou que se examinasse as propriedades nucleares de um grande número de nuclídeos. Ao mesmo tempo, se fazia necessário prever, pelo menos, a ordem de grandeza das meias vidas e as energias de desintegração alfa dos novos nuclídeos produzidos, a fim de identificá-los e separá-los com maior facilidade. Desde então, a teoria do decaimento alfa tem sofrido refinamentos matemáticos, e foram incorporados efeitos físicos a princípio ignorados. Devido ao maior número de dados experimentais disponíveis e à melhor estruturação da teoria, foi possível estudar-se a sistemática do decaimento alfa e constatar, por exemplo, a influência da estrutura de camada do núcleo em suas propriedades radioativas. Também foi caracterizada a diferença de comportamento entre os núcleos pares e ímpares. Os núcleos pares têm uma sistemática de decaimento bastante regular e teoricamente previsível, enquanto os ímpares apresentam, em geral, uma meia vida maior que a prevista pela teoria de penetração de barreira de potencial. Esta teoria, estruturada por Gamov em 1927, constitui uma base fundamental para a interpretação do decaimento alfa. Posteriormente, a penetração de barreira ("efeito tunel") foi matematicamente desenvolvida pelo método B.K.W.

Contudo, até 1949, o único emissor alfa conhecido na região da tabela periódica onde $Z < 83$, era um emissor do samário natural descoberto em 1932 por Levesy e Pahl⁽¹⁾, que investigações posteriores constataram ser o Sm^{147} . O desconhecimento de outros emissores pode ser explicado em virtude das técnicas experimentais então existentes não serem capazes de detectar a

baixa atividade alfa apresentada pelos isótopos naturais desta região ($t_{1/2} \sim 10^{11}$ a 10^{15} anos). Por outro lado, a medida da meia vida de desintegração alfa da maioria dos isótopos produzidos artificialmente nesta região, é dificultada devido à possibilidade, como alternativa de desexcitação, da captura de elétrons e de emissão β^+ . Os primeiros emissores alfa, abaixo do bismuto, produzidos artificialmente, foram obtidos em 1949 por Thompson e colaboradores⁽²⁾. Numa busca de núclídeos alfa ativos entre os produzidos por um ciclotron, eles detetaram atividade alfa em isótopos do Au, Hg, Dy, Tb, Gd e Eu. Posteriormente, Rasmussen, Thompson e Ghiorso⁽³⁾; Dunlavey e Seaborg⁽⁴⁾ e Toth e Rasmussen⁽⁵⁾, publicaram trabalhos onde divulgavam a descoberta de outros emissores alfa.

O desenvolvimento das técnicas de medidas com emulsões nucleares permitiu a descoberta, na década de 50, da maioria dos isótopos naturais alfa ativos na região $Z < 83$. Grande parte destes trabalhos foi executada pelo grupo formado por Kohn, Porschen e Riezler⁽⁶⁻⁹⁾. O aperfeiçoamento das câmaras de ionização e dos cintiladores líquidos, associado ao desenvolvimento da eletrônica, permitiu que esses detetores tivessem seus limites de detecção estendidos. Macfarlane e Kohman, em 1961⁽¹⁰⁾ e Nurmi, em 1965⁽¹¹⁾, refizeram então algumas medidas, obtendo resultados mais precisos.

No entanto, só são conhecidos na região das terras raras, quatro emissores alfa naturais. Destes, somente o Sm^{147} teve a meia vida satisfatoriamente medida, já que seu valor $\sim 10^{11}$ anos, é bastante inferior aos limites de detecção dos detetores disponíveis. Já o Nd^{144} e o Gd^{152} , cujas meias vidas

($\sim 10^{15}$ anos) são da ordem de grandeza destes limites, têm as atividades alfa pouco investigadas. Dos trabalhos onde foram divulgados resultados de medidas da meia vida da emissão alfa do Gd^{152} , somente um usou a câmara de ionização como detetor.

Várias tentativas têm sido feitas no sentido de se encontrar novos emissores alfa entre as terras raras. Alguns autores, entre eles Kauw⁽¹²⁾, procuraram detetar alguma atividade alfa nos isótopos Ce^{142} , Nd^{143} , Nd^{145} e Dy^{156} . Também Bradley⁽¹³⁾ fez uma tentativa para o Er^{162} . Contudo não obtiveram sucesso, provavelmente devido à existência de impurezas nas amostras ou por terem tais isótopos meias vidas realmente muito grandes, sendo portanto, difícil detetar alguma radioatividade.

Foi desenvolvida, na então Divisão de Física da Fissão e Radioatividade do Centro Brasileiro de Pesquisas Físicas, uma técnica especial em emulsão nuclear, onde o nuclídeo em estudo é diretamente incorporado à emulsão. As películas são então, expostas por vários anos, em condições tais que não ocorra o desvanecimento da "imagem latente". Tornou-se, desta forma, possível estender o limite de detecção de meias vidas para 10^{17} anos. Esta técnica, iniciada pelo Prof. Hervasio Guimarães de Carvalho, permitiu a realização da Tese de Mestrado "Atividade Alfa do Bi^{209} ", e a publicação do trabalho "Alfa Activity of ^{209}Bi "⁽¹⁴⁾. Com o domínio desta técnica iniciou-se, na Divisão de Física da Fissão e Radioatividade, um estudo sistemático dos emissores alfa na região das terras raras.

Neste trabalho nos propuzemos repetir medidas onde a atividade alfa não tenha sido suficientemente investigada e procurar novos emissores cujas meias vidas sejam superiores aos

limites de detecção das técnicas ora existentes. Carregamos então emulsões nucleares com neodímio, gadolínio e érbio naturais a fim de medirmos as meias vidas dos isótopos Nd^{144} , Gd^{152} e Er^{162} .

No Capítulo I apresentamos o formalismo da teoria de desintegração alfa e uma estimativa teórica das meias vidas que nos propuzemos medir experimentalmente.

No Capítulo II descrevemos, detalhadamente, o método experimental utilizado na determinação das meias vidas.

Finalmente, no Capítulo III, apresentamos os resultados experimentais obtidos, comparando-os com os de outros autores e com os obtidos teoricamente

CAPÍTULO I

TEORIA

1.1 - INTRODUÇÃO

Uma das primeiras descobertas da Física Moderna foi a constatação de que certos elementos naturais apresentam radioatividade corpuscular de carga elétrica positiva. Esta partícula foi denominada "alfa" e, em 1908 Rutherford concluiu que tais partículas eram núcleos de hélio (He^4). Os parâmetros que então caracterizaram um núcleo emissor alfa e a própria partícula eram o alcance (R_α) desta num determinado meio material (em última análise a sua energia) e o decaimento da atividade com o tempo. A partir de valores experimentais destas grandezas, Geiger e Nuttall, em 1911, fizeram a primeira tentativa de descrever o decaimento α de maneira quantitativa, estabelecendo uma fórmula empírica que relacionava estas grandezas.

Determinaram assim que uma relação linear entre os logaritmos da constante de decaimento e do alcance da partícula alfa no ar, do tipo

$$\ln \lambda = A + B \ln R_\alpha \quad (1.1.1)$$

onde A e B são constantes, estava em satisfatória concordância com os dados experimentais existentes, como pode ser visto na Fig. 1.1.1, onde são apresentados valores relativos aos elementos que compõem as três séries radioativas naturais. O valor

as de ligação dos últimos dois prótons e dois neutrons (cerca de 7 MeV por nucleon para os núcleos pesados) e se admitirmos a hipótese que estes quatro nucleons se unem na superfície do núcleo para formarem uma partícula alfa, então a energia de ligação desta partícula é liberada e a sua emissão torna-se energeticamente possível.

A energia necessária para separar uma partícula alfa do núcleo (energia de separação), é uma medida da estabilidade do mesmo em relação à emissão desta partícula. Para que haja uma emissão alfa espontânea, a massa (energia) do núcleo emissor deve ser maior que a soma das massas (energia) do núcleo residual e da partícula alfa, isto é, a energia de separação deve ser negativa. Assim:

$$\epsilon_{\alpha} = [M(A-4, Z-2) + M({}_2H^4) - M(A, Z)] c^2 < 0 \quad (1.2.2)$$

ou

$$M(A, Z) > M(A-4, Z-2) + M({}_2H^4) \quad (1.2.3)$$

A diferença em energia (energia de excitação do núcleo emissor) será liberada na forma de energia cinética da partícula alfa e do núcleo residual, de modo que o momento seja conservado.

Assim:

$$E_{\alpha} = |\epsilon_{\alpha}| = [M(A, Z) - M(A-4, Z-2) - M({}_2H^4)] c^2 = T_{\alpha} + T_n \quad (1.2.4)$$

supondo o núcleo emissor em repouso,

$$T_{\alpha} = |\epsilon_{\alpha}| \frac{M_n}{M_n + M_{\alpha}} \quad (1.2.5)$$

onde T_α , M_α e T_n , M_n são a energia cinética, a massa da partícula alfa e do núcleo residual, respectivamente.

Na Fig. 1.2.1, algumas medidas experimentais da energia de desintegração E_α para núcleos pesados são mostradas como uma função do número de massa A. Os pontos referentes aos isótopos de um mesmo elemento foram ligados por retas a fim de facilitar a visualização do conjunto. Podemos observar nesta figura a existência de um decréscimo sistemático da energia de desintegração E_α com o aumento do número de massa A para um mesmo conjunto de isótopos, com algumas exceções de núcleos com o número de massa no intervalo $209 < A < 215$. Notamos ainda, que para os núcleos isôbaros a energia de desintegração aumenta com Z.

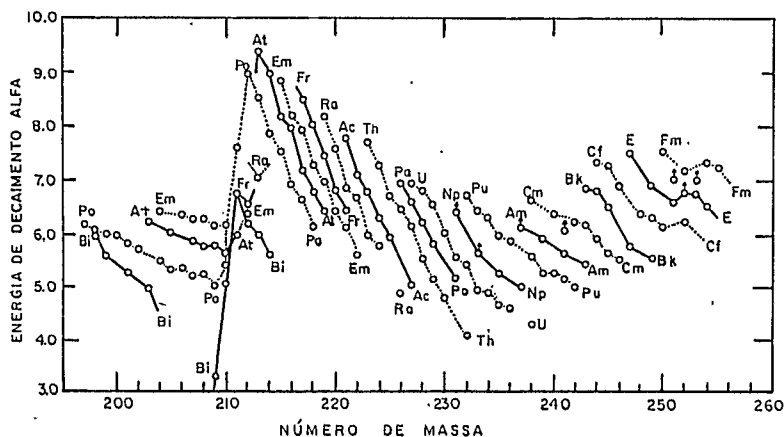


Fig. 1.2.1 - Variação da energia de decaimento alfa em função do número de massa, para os núcleos da região dos elementos pesados. A energia de decaimento alfa é igual à soma da energia da partícula alfa da transição para o estado fundamental do núcleo residual com a energia de recuo do núcleo residual (da ref. (17)).

Estas propriedades do decaimento alfa podem ser explicadas com o auxílio do modelo de camadas e o da gota líquida para o núcleo.

A anomalia no comportamento de E_α com a variação de A na região $209 < A < 215$ é devida, indiscutivelmente, ao fato destes núcleos possuírem um número de neutrons próximo ao da camada fechada de $N = 126$. Efeito semelhante é encontrado na região das terras raras na vizinhança de $N = 82$.

As camadas fechadas de 82 neutrons (prótons) e 126 neutrons, causam uma diminuição da energia de ligação dos nucleons situados fora destas camadas. Como a energia de desintegração alfa é determinada pela energia de ligação dos dois últimos prótons e dos dois últimos neutrons, e não pela energia de ligação média dos nucleons, os núcleos entre os isótopos de um mesmo elemento que apresentarem os menores números de neutrons (a partir de dois) exteriores a estas camadas possuirão as maiores energias de desintegração. Como exemplo, vemos na Fig. 1.2.1 que o isótopo do polinômio que apresenta a maior energia de desintegração, o Po^{212} , é justamente o que possui 128 neutrons, pois é nesta configuração que os dois últimos neutrons possuem a menor energia de ligação possível. À medida que o número de neutrons aumenta, a energia de desintegração alfa diminui, seguindo assim o comportamento geral. Os isótopos que possuem menos que 128 neutrons apresentam valores para E_α bastante inferiores ao do Po^{212} , com um mínimo no isótopo Po^{209} . Os núcleos de polônio a partir deste ponto, que possuem um número de neutrons menor que 126, voltam a ter o comportamento normal, isto é, a energia de desintegração alfa volta a aumentar com a diminuição do número de neutrons.

As curvas para os isótopos do bismuto, actínio, rádio, rádio e frâncio, apresentam comportamento semelhante ao do polônio.

O espaçamento anormal entre as curvas do polônio e do bismuto, observado na Fig. 1.2.1, pode ser explicado devido à proximidade da camada fechada de 82 prótons. A energia de ligação dos dois últimos prótons do bismuto é sensivelmente maior que a dos dois últimos do polônio.

Outro efeito de camadas, este pouco acentuado, pode ser visto na região dos núcleos com 152 neutrons. Se um núcleo possui um número mágico (82, 126) de prótons ou neutrons, ele será extremamente estável, como por exemplo o ${}_{83}\text{Bi}^{209}$, que mesmo dispondo de uma energia para desintegração de 3,12 MeV, tem uma meia vida muito longa, não sendo possível detectar pelas técnicas experimentais disponíveis qualquer resistividade α proveniente deste núcleo. Segundo medidas feitas por Penna⁽¹⁴⁾, esta meia vida é maior que 10^{19} anos.

Excluídos os efeitos de camada, o comportamento da energia de desintegração alfa em relação a A e Z, mostrado na Fig. 1.2.1, pode ser explicado através do modelo da gota líquida do núcleo. Neste modelo a energia de ligação total de um núcleo com A nucleons e Z prótons é dado por⁽¹⁵⁾

$$B(Z,A) = a_v A - a_s A^{2/3} - a_c \frac{Z^2}{A^{1/3}} - a_a \frac{(A-2Z)^2}{A} \pm \delta \quad (1.2.6)$$

onde os coeficientes a_v , a_s , a_c , a_a e δ são escolhidos de modo que $B(Z,A)$ esteja em concordância com as massas nucleares obtidas através de medidas de espectroscopia de massa e da energética envolvida em reações nucleares.

Como foi dito anteriormente, o decaimento alfa só é energeticamente possível se a energia de separação ϵ_α , necessária para remover uma partícula α do núcleo, for negativa.

Esta energia pode ser expressa por

$$\epsilon_{\alpha} = B(Z,A) - B(Z-2,A-4) - B({}_2\text{He}^4) \quad (1.2.7)$$

onde cada termo é determinado por (1.2.6), de modo que ϵ_{α} é expressa unicamente em função de A e Z do núcleo emissor.

Uma análise da expressão (1.2.7) análoga à feita em (15) mostra que o modelo da gota líquida é capaz de explicar o fato experimental de que a energia de desintegração alfa E_{α} aumenta com Z para um mesmo conjunto de isóbaros, bem como estabelece a possibilidade de emissão alfa ($\epsilon_{\alpha} < 0$) para os núcleos com $Z > 73$. A existência de núcleos alfa ativos entre os elementos terras raras ($Z = 60$) sugere que este modelo superestima o limite teórico para a existência de núcleos emissores alfa. Este limite pode ser determinado mais precisamente calculando-se a energia de desintegração alfa por intermédio de (1.2.4), usando valores precisos para as massas, tabuladas por Wapstra⁽¹⁸⁾. Cálculos feitos⁽¹⁶⁾ para núcleos β estáveis indicam que E_{α} é maior que zero para todos os núcleos a partir dos elementos terras raras, isto é, para núcleos com $A > 140$.

Também é explicável por este modelo o fato de que para os núcleos β estáveis a energia de desintegração alfa diminui quando o número de massa A aumenta num conjunto de isótopos. Pode ser mostrado⁽¹⁵⁾ que

$$\left(\frac{\partial E_{\alpha}}{\partial A} \right)_Z < 0,$$

utilizando as expressões (1.2.4), (1.2.6) e (1.2.7). Os desvios

deste comportamento são explicáveis, como já visto anteriormente, pelo modelo de camadas.

Uma análise da energética do decaimento alfa como a que acabamos de fazer, permite a elucidação de alguns fatos experimentais, estabelecendo ainda um limite teórico em $A \approx 140$ para que o decaimento alfa seja energeticamente possível ($\epsilon_\alpha < 0$). Contudo, não contribui para estabelecer a origem da lei de Geiger-Nuttall, ou ainda, para determinar que processo físico é responsável pelo grande espectro de valores de meias vidas de núcleos alfa, sendo exemplo extremo o Po^{213} , que emite alfas de 8.34 MeV com meia vida de 4.2 μs , e os Os^{186} emitindo alfas de 2.76 MeV com meia vida de 2.0×10^{15} anos. Também a existência de núcleos com $A > 140$ que não apresentam nenhuma radioatividade alfa detectável, mesmo que a sua emissão seja energeticamente possível, nos leva à conclusão que a condição $\epsilon_\alpha < 0$, embora necessária, não é suficiente para que um núcleo seja emissor alfa.

Em resumo, que mecanismo impede as partículas alfa, uma vez formadas no núcleo, serem emitidas imediatamente, isto é, num tempo $\tau \approx \frac{R}{V}$ (sendo R o raio nuclear e V a velocidade da partícula alfa no núcleo).

A elucidação deste fato ocorreu após 1927, quando Rutherford, bombardeando núcleos pesados emissores alfa de baixa energia (urânio) com partículas alfa de 8.8 MeV provenientes de ThC' , não conseguiu induzir uma reação nuclear, e observou que as partículas alfa eram espalhadas por um campo Coulombiano, ou seja, moviam-se num potencial do tipo $V \propto \frac{Z}{r}$ para $r > 10^{-12}$ cm. Verificou também que quando $r \rightarrow R$ (raio do núcleo alvo), este potencial assumia valores maiores que a energia da partícula alfa incidente.

A constatação da existência deste potencial, chamado Barreira Coulombiana, além de explicar o insucesso de Rutherford na obtenção da reação nuclear, acrescentou uma valiosa informação ao que já se conhecia sobre decaimento alfa, isto é, para que haja emissão, não basta que esta seja energeticamente possível, é necessário também que a partícula ultrapasse a barreira. Desta forma, foi deixada em aberto uma importante questão, não explicável do ponto de vista da Mecânica Clássica: como uma partícula alfa, por exemplo a de 4.4 MeV do urânio, consegue ultrapassar uma barreira algumas vezes maior que a sua energia.

1.3 - TEORIA DO DECAIMENTO ALFA

1.3.1 - Descrição

Em 1928, Gamow, Condon e Gurney conseguiram, independentemente, interpretar a experiência de Rutherford através da aplicação de conceitos quânticos à teoria do decaimento alfa. A possibilidade de uma partícula alfa de energia $E < V_0$ atravessar uma barreira V_0 existe. Trata-se do chamado efeito túnel, e o problema se resume, então, na determinação da probabilidade de ocorrência de tal evento.

É usual supor-se que o processo de decaimento alfa seja, em última análise, um processo de penetração de uma barreira Coulombiana gerada pelo núcleo residual, estando a partícula alfa já formada no interior do núcleo emissor ("*one-body model*"). Deste modo, a carga nuclear Z , a altura da barreira, o número de massa e o raio nuclear que aparecem no desenvolvimento da teo

ria de decaimento alfa se referem ao núcleo residual.

Como as meias vidas dos emissores alfa são muito grandes (10^{-6} a 10^{22} s) comparadas ao tempo característico do movimento nuclear (10^{-21} s), do momento em que a partícula alfa é formada até a sua emissão, passaram-se vários períodos nucleares, tendo então o núcleo tempo suficiente para retornar ao estado de movimento inicial. Neste caso, podemos tratar o problema como sendo estacionário.

A equação de onda para uma partícula alfa num potencial nuclear genérico, esfericamente simétrico, pode ser escrita, em coordenadas esféricas no sistema centro de massa, como:

$$-\frac{\hbar^2}{2M} \nabla^2 \psi(r, \theta, \phi) + V(r) \psi(r, \theta, \phi) = E \psi(r, \theta, \phi) \quad (1.3.1.8)$$

onde $M = M_\alpha M_r / M_\alpha + M_r$ é a massa reduzida do sistema, M_α a massa da partícula α , M_r a massa do núcleo residual e E a energia total do sistema (a soma da energia da partícula alfa com a energia de recuo do núcleo residual sem os elétrons orbitais).

A função de onda, neste caso, pode ser escrita como o produto entre uma função radial e harmônicos esféricos:

$$\psi = \frac{u}{r} Y_{\ell m}(\theta, \phi) \quad (1.3.1.9)$$

que deverá ser uma solução da equação de Schrödinger para a partícula alfa no interior da barreira e fora dela. A função de onda u é solução da seguinte equação de onda radial:

$$\frac{d^2 u}{dr^2} + k^2(r) u = 0 \quad (1.3.1.10)$$

onde o número de onda k é dado por

$$k^2(r) = \frac{2M}{\hbar^2} \left[E - V(r) - \frac{\ell(\ell+1)\hbar^2}{2Mr^2} \right] \quad (1.3.1.11)$$

onde ℓ é o momento angular da partícula alfa e M a massa reduzida do sistema.

A probabilidade de uma partícula alfa penetrar na região da barreira, chamada "fator de penetrabilidade P " é definida como a razão entre o quadrado da amplitude da função de onda transmitida e o quadrado da amplitude da função de onda incidente.

Como, em geral, o potencial $V(r)$ não possui uma forma analítica simples a equação de Schrödinger não pode ser resolvida de forma exata, sendo necessário para resolvê-la o emprego de métodos aproximativos. A aproximação WKB é a mais usada. Seguindo este método (—) o coeficiente de penetrabilidade P é dado por:

$$P = \exp \left\{ -2 \int_{r_1}^{r_2} k \, dr \right\} \quad (1.3.1.12)$$

onde

$$k(r) = \frac{(2M)^{1/2}}{\hbar} \left[V(r) + \frac{\ell(\ell+1)\hbar^2}{2Mr^2} - E \right]^{1/2}$$

e os limites de integração r_1 e r_2 são chamados de pontos de retorno e correspondem aos zeros da função $k(r)$.

Se admitirmos que a partícula alfa move-se no interior do núcleo com uma velocidade v (a mesma com que é emitida), então ela oscilará entre as paredes do poço de potencial $V(r)$, v/R

vezes por unidade de tempo. A constante de desintegração λ pode ser escrita como o produto da frequência ($f = v/R$) pelo fator de penetrabilidade P . Assim:

$$\lambda = f P \quad (1.3.1.13)$$

Encontramos na literatura científica diferentes modelos para a determinação do fator de frequência f , dando origem, em alguns casos, a valores de diferentes ordens de grandeza. Este fator é algumas vezes chamado de constante de decaimento reduzida que é interpretada como a constante de decaimento na ausência de uma barreira.

Por questões de simplicidade, suporemos que o potencial exterior ao núcleo emissor, a uma distância maior que um determinado raio efetivo R , seja puramente Coulombiano e que possua um valor constante (menor que a energia de decaimento alfa ; para distâncias do centro do núcleo menores que R . A representação esquemática deste potencial pode ser vista na Fig. 1.3.1.1.

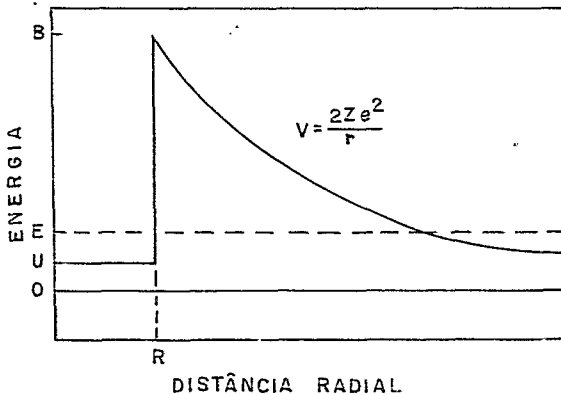


Fig. 1.3.1.1 - Representação esquemática da energia potencial de uma partícula alfa nas vizinhanças do núcleo, como suposto na teoria do decaimento alfa.

Para a desintegração alfa de núcleos par-par onde os núcleos residuais vão para o estado fundamental, ou seja, caso em que as partículas alfa são emitidas com momento angular $\ell = 0$ (ondas S), o fator de penetrabilidade P pode ser escrito a partir de (1.3.1.12), considerando a função potencial representada na Fig. 1.3.1.1, do seguinte modo:

$$P \approx \exp \left\{ - \frac{2}{\hbar} (2M)^{1/2} \int_R^{R_E} \left(\frac{2Ze^2}{r} - E \right)^{1/2} dr \right\} \quad (1.3.1.14)$$

onde Z é o número atômico do núcleo residual, R o raio nuclear e $R_E = 2Ze^2/E$ a distância para a qual $V(r) = E$.

A integral da expressão (1.3.1.14) pode ser resolvida analiticamente através da mudança de variável $y = r^{1/2}$ e utilizando-se a relação

$$\arccos y = \arcsin 1 - \arcsin y .$$

Usando a notação de Bethe, o fator de penetrabilidade (1.3.1.14) pode ser escrito:

$$P \approx e^{-2g(Z,R)\gamma(x)} , \quad (1.3.1.15)$$

sendo $x = \frac{E}{B}$, onde $B = \frac{2Ze^2}{R}$ é a altura da Barreira Coulombiana,

$$g(Z,R) = \frac{2e}{\hbar} \sqrt{MZR} ,$$

que independe da energia da partícula e

$$\gamma(x) = x^{-1/2} \arccos(x^{1/2}) - (1-x)^{1/2}$$

O valor de γ pode ser determinado graficamente ou através de tabelas apresentadas por Rasmussen na ref. (17).

Expandindo a expressão (1.3.1.15) em série de Taylor em torno do ponto $x = 0$, temos:

$$\log P = \frac{\sqrt{2MBR}}{\hbar} \left[\pi \left(\frac{B}{E} \right)^{1/2} - 4 + \frac{E}{B} - \frac{3}{4} \left(\frac{E}{B} \right)^2 + \dots \right] \quad (1.3.1.16)$$

Vemos que o $\log P$, e portanto também o logaritmo da constante de decaimento, variam principalmente com o inverso da raiz quadrada da energia de decaimento, explicando deste modo a relação empírica estabelecida por Geiger-Nuttall (1.1.1).

Nas transições em que a partícula alfa possui um momento angular diferente de zero é necessário considerar-se, no cálculo do fator de penetrabilidade, a contribuição do potencial centrífugo expresso por $\hbar^2 \ell(\ell+1)/Mr^2$ em (1.3.1.12). Este termo tem o efeito de aumentar a altura da barreira que a partícula alfa deve ultrapassar.

A variação do fator de penetrabilidade numa transição em que o núcleo residual vá para um estado excitado ($\ell \neq 0$) devido a ter-se considerado o potencial centrífugo⁽²⁰⁾, é expressa por:

$$\frac{P_\ell}{P_0} = \exp \left[- 2,027 \ell(\ell+1) Z^{-1/2} A^{-1/6} \right] \quad (1.3.1.17)$$

Além do modelo de decaimento alfa descrito anteriormente ("one-body model"), o modelo de muitos corpos é também bastante usado para construção desta teoria^(3, 21, 22). Neste modelo,

a partícula alfa perde a sua identidade quando no interior do núcleo, de modo que os seus quatro componentes não podem ser distinguidos dos demais nucleons. Isto significa que a partícula alfa não existe no núcleo antes da sua emissão, e somente é formada neste momento. Assim, do ponto de vista deste modelo, só podemos considerar a partícula alfa e núcleo residual como duas entidades distintas após ocorrer a emissão alfa pelo núcleo radioativo. Consequentemente, a probabilidade de decaimento alfa é o produto de dois fatores:

- i) - a probabilidade de formação da partícula alfa;
- ii) - a probabilidade de penetração na barreira de potencial.

1.3.2 - Fator de Frequência F

A teoria do decaimento alfa como apresentada pelas equações (1.3.1.13) e (1.3.1.15) relaciona a constante de decaimento alfa com a energia E do sistema, o número atômico do núcleo residual e o raio nuclear R .

Por ser R o único destes parâmetros não suscetível de medida direta, é comum fazer-se cálculos visando à determinação de um raio efetivo do núcleo emissor alfa. Para tanto, varia-se o limite inferior da integração em (1.3.1.14) de modo que a eq. (1.3.1.13) esteja em concordância com os valores de λ e E determinados a partir de medidas experimentais, sendo o fator de frequência f estimado teoricamente. Tal cálculo é, no entanto, pouco significativo, uma vez que o raio R determinado deste modo é

muito dependente do modelo nuclear adotado para a estimativa do fator f .

Rasmussen *et al.* ⁽³⁾ fizeram um resumo de cinco modelos utilizados por diferentes autores na construção de uma teoria de decaimento alfa. Em todos os modelos, o fator de penetrabilidade P na fórmula $\lambda = fP$ foi determinado por (1.3.1.15) e a diferença entre eles reside na estimativa do fator de frequência. As cinco fórmulas para tal cálculo são as seguintes:

- 1) - utilizada por Biswas e Patro e por Perlman e Ypsilantis:

$$f = v/R \quad , \quad (1.3.2.18)$$

onde v é a velocidade da partícula alfa (no sistema centro de massa e R o raio nuclear);

- 2) - deduzida por J.O. Rasmussen utilizando um modelo de muitos corpos:

$$f = \frac{2D}{\pi \hbar} \left(\frac{E-U}{B-E} \right)^{1/2} \quad , \quad (1.3.2.19)$$

onde: E é a energia de desintegração alfa,

B é a altura da barreira Coulombiana ($B = \frac{2Ze^2}{R}$),

U é a energia potencial da partícula alfa dentro do núcleo (suposto ser igual a zero),

D é uma energia supostamente de mesma ordem de grandeza que o espaçamento médio entre os níveis nucleares de mesmo spin e paridade que o estado emissor alfa.

- 3) - a partir de um modelo "one-body" que envolve um potencial no interior do núcleo, foi proposta por Preston e apro -

ximada por Kaplan

$$f = \frac{2^{1/2} \pi^2 \hbar^2}{m^{3/2} R^3 (B-E)^{1/2}} \quad (1.3.2.20)$$

4) - tem a mesma dependência energética da segunda fórmula

$$f = 1.26 \times 10^{19} \left[\frac{E}{(B-E)} \right]^{1/2} \quad (1.3.2.21)$$

5) - proposta por Bethe a partir de um modelo de muitos corpos

$$f = 6.2 \times 10^{14} E^{1/2} \quad (1.3.2.22)$$

onde R, B, E são grandezas anteriormente definidas.

Estimativas do fator f utilizando a primeira fórmula nos leva a valores da ordem de 10^{21} sec^{-1} enquanto que, pela última fórmula, obtivemos 10^{15} sec^{-1} . Devido a esta variação em f, os valores dos raios efetivos, determinados a partir de medidas experimentais do decaimento alfa na região dos elementos pesados utilizando-se a quinta expressão de f, são maiores em cerca de 45% que os determinados pela primeira fórmula⁽²¹⁾.

Numa outra tentativa de estimar f teoricamente, Enge⁽²³⁾ calcula a probabilidade P de formação de uma partícula alfa na superfície nuclear, baseado na independência de movimento dos nucleons no núcleo. A expressão por ele deduzida para P foi $P = 25 \left(\frac{4}{A} \right)^3$ e a forma final proposta para o fator de frequência $f = 700 \frac{v}{RA^3}$, onde v é a velocidade com que a partícula alfa é emitida; R o raio nuclear e A o número de massa do núcleo emissor.

1.3.3 - Raio Nuclear

O emprego da relação $\lambda = fP$ para a determinação teórica da constante de decaimento alfa, tendo o fator de frequência sido estimado teoricamente, requer o conhecimento do valor do raio nuclear a fim de que o fator de penetrabilidade P possa ser determinado por (1.3.1.15).

Várias tentativas foram feitas no sentido de encontrar uma fórmula geral para o raio nuclear efetivo para o decaimento alfa. Alguns autores, supondo a proporcionalidade entre o volume nuclear e o número de partículas no núcleo, expressaram o raio nuclear pela fórmula $r = r_0 A^{1/3} \times 10^{-13}$ cm, sendo A o número de massa e r_0 determinado através de medidas experimentais da meia vida e energia da partícula alfa.

Pearlman e Ypsilantis⁽²⁴⁾, utilizando o modelo de um corpo na teoria do decaimento alfa e medidas experimentais referentes a vinte e cinco núcleos par-par-emissores alfa, propôs um valor de $r_0 = 1.48$, enquanto Kaplan⁽²⁵⁾, utilizando os mesmos modelos e dados experimentais, mas empregando uma fórmula do decaimento alfa mais elaborada (desenvolvida por Preston⁽²⁶⁾), determinou $r_0 = 1.57$. Em outra obra Bethe⁽²¹⁾, aplicando o modelo de muitos corpos e supondo a mesma fórmula para o raio nuclear, obtém o valor de $r_0 = 2.05$.

Devemos admitir, contudo, que tanto o diâmetro da partícula alfa como o alcance das forças nucleares são finitos, de modo que, seria mais realístico pensar no raio nuclear obtido através da teoria do decaimento alfa como sendo aproximadamente a soma do raio nuclear do núcleo residual com o da partícula alfa e uma quantidade da ordem de grandeza do alcance das forças

nucleares. Assim, a expressão do raio nuclear seria da forma:

$$r = a A^{1/3} + b \times 10^{-13} \text{ cm} \quad (1.3.3.23)$$

ou ainda:

$$r = \left\{ a' A^{1/3} \left[1 + 0.8(A-2Z)^2/A^2 - 0.3/A^{1/3} + 0.01 Z^2/A^{4/3} \right] + b' \right\} \times 10^{-13} \text{ cm} \quad (1.3.3.24)$$

onde foram introduzidas correções devidas ao excesso de neutrons, à repulsão Coulombiana dos prótons e às forças decorrentes da tensão superficial, como proposto por Present⁽²⁷⁾.

Rasmussen⁽³⁾, usando valores experimentais do decaimento alfa do Gd^{148} e Ra^{224} , determinou as constantes \underline{a} e \underline{b} de (1.3.3.23) e $\underline{a'}$ e $\underline{b'}$ de (1.3.3.24) utilizando as fórmulas (1.3.2.18) a (1.3.2.22). Através de (1.3.2.18) ("one-body model") encontrou $a = 1.46$ e $b = -0.10$; $a' = 1.085$ e $b' = 1.79$ enquanto que usando (1.3.2.18) (modelo de muitos corpos), obteve $a = 1.48$ e $b = 0.07$; $a' = 1.10$ e $b' = 2.01$.

Pela observação da Tab. 1.3.3.1, onde são apresentados os valores dos raios nucleares calculados segundo os modelos apresentados nesta seção, torna-se claro que este parâmetro depende fortemente do modelo nuclear escolhido e difere dos determinados por intermédio de outros fenômenos físicos.

Assim, o raio nuclear calculado através da teoria do decaimento alfa deve ser visto com restrições, principalmente onde a diferença entre os raios do par núcleos emissor-resíduo é grande.

Devemos ressaltar ainda, que a maioria dos núcleos emissores

TABELA 1.3.3.1 - O raio nuclear efetivo, determinado por diferentes fórmulas do decaimento alfa e outros fenômenos físicos.

TIPO DE DETERMINAÇÃO	FÓRMULA	RAIO EFETIVO (10^{-13} cm)	
		A = 144	A = 218
Decaimento Alfa (um corpo)	$r = 1.48 A^{1/3}$	7.76	8.91
Decaimento Alfa (muitos corpos)	$r = 2.05 A^{1/3}$	10.75	12.34
Decaimento Alfa (um corpo)	$r = 1.46 A^{1/3} - 0.10$	7.55	8.69
Decaimento Alfa (muitos corpos)	$r = 1.48 A^{1/3} + 0.07$	7.83	8.98
Decaimento Alfa (um corpo)	(1.2.3.24) $a'=1.085$ $b'=1.79$	7.53(Z=60)	8.57(Z=88)
Decaimento Alfa (muitos corpos)	(1.3.3.24) $a'=1.10$ $b'=2.01$	8.83(Z=60)	8.89(Z=88)
Seção de Choque para Espalhamento Alfa (20 - 40 MeV)	$(1.4-1.5)A^{1/3}+2.5(17)$	9.84-10.36	10.93-6.53
Seção de Choque para Espalhamento Alfa Inelástico (240 MeV)	$1.84 A^{1/3}+0.35 (17)$	10.05	11.42

sores alfa não são esfericamente simétricos como se tem suposto na teoria do decaimento alfa descrita nesta seção. Isto implica que o fator de penetração para tais núcleos não esféricos varia em diferentes pontos da superfície nuclear, o que torna esta teoria mais uma vez inadequada para a determinação do raio nuclear.

1.3.4 - Fator de Impedimento

A comparação entre as meias vidas experimentais de emissores alfa e as obtidas empregando-se a teoria de penetração de barreira, mostra que existe concordância somente para os núcleos par-par, onde as transições alfa deixam o núcleo residual no estado fundamental (17, 28). Estas transições são chamadas de favorecidas e são encontradas excessões na região próxima ao número de neutrons 126, devido a efeitos de camadas.

É tradicional no estudo das transições alfa que têm um comportamento não previsto pela teoria, como é o caso nos núcleos ímpares e nas transições para estados excitados de núcleos par-par, fazer-se comparações gráficas das meias vidas experimentais, tomando por referência curvas $\log t_{1/2}$ (meia vida) *versus* energia de decaimento alfa, ou simplesmente, a energia da partícula alfa das transições favorecidas. Estas curvas são obtidas considerando-se a variável Z como um parâmetro e ligando-se os pontos referentes a um mesmo elemento. O raio nuclear é suposto uma função suave do número de massa A. Geralmente é usada a forma $R = R_0 A^{1/3}$ e as curvas assim obtidas definem os chamados modos *normais* de decaimento alfa.

Tendo em vista que as eqs. (1.3.1.13) e (1.3.1.16) predizem uma relação linear entre o logaritmo da meia vida alfa e o inverso da raiz quadrada da energia de decaimento alfa, é mais simples utilizar esta relação para construir as curvas que definirão o modo *normal* de decaimento alfa. Estas retas podem ser expressas de modo simplificado pela equação:

$$\log t_{1/2\alpha}(s) = \frac{A}{\sqrt{Q_{\alpha f}(\text{MeV})}} + B, \quad (1.3.4.25)$$

onde A e B são constantes a serem determinadas por cada elemento e Q_{ef} a energia efetiva do decaimento que consiste na soma das energias da partícula alfa, do núcleo de recuo e um termo ΔE_{BE} . Este termo tem a finalidade de corrigir o efeito da blindagem eletrônica exercida pela nuvem de elétrons do núcleo emissor, e é expresso pela fórmula

$$\Delta E_{BE} = 65.3 Z^{7/5} - 80 Z^{2/5} \text{ eV} , \quad (1.3.4.26)$$

sendo Z o número atômico do núcleo emissor.

Utilizando valores experimentais atualizados ^(29,30) de meia vida e energia alfa de decaimento que envolvem as transições chamadas favorecidas, construímos as retas definidas por (1.3.4.25), ajustando-as pelo método dos mínimos quadrados. Os valores das constantes A e B para os elementos Po, Rn, Ra, Th, U, Cm e Cf são apresentados na Tab. 1.3.4.1.

TABELA 1.3.4.1 - Coeficientes da reta $\log t_{1/2} = A(Q_{ef})^{-1/2} + B$ determinados pelo método dos mínimos quadrados.

ELEMENTO	A	B
Po	125.80993	- 48.60991
Rn	130.88927	- 49.79534
Ra	137.17159	- 51.31115
Th	142.14469	- 52.34849
U	146.54971	- 53.26830
Pu	146.84987	- 52.32664
Cm	151.64063	- 53.30656
Cf	151.82150	- 52.45858

Na Fig. 1.3.4.1, onde são mostradas as retas ajustadas e os pontos experimentais, pode-se constatar a perfeita linearidade entre $\log t_{1/2}$ e $(Q_{ef})^{-1/2}$, prevista pela teoria do decaimento alfa.

As transições alfa de núcleos par-par onde o núcleo residual é produzido num estado excitado, o que ocorre quando a partícula alfa é emitida com um momento angular diferente de zero, são em geral, mais lentas que as previstas pela teoria do decaimento alfa. Na Tab. 1.3.4.2 são mostrados alguns exemplos.

As transições cujas meias vidas experimentais são maiores que as calculadas são chamadas de proibidas e costuma-se expressar quantitativamente este fato através de um fator de impedimento F ("*Hindrance Factor*") definido como

$$\log F = \log t_{1/2} - (A Q_{ef}^{-1/2} + B) \quad , \quad (1.3.4.27)$$

onde $t_{1/2}$ é a meia vida experimental e $A Q_{ef}^{-1/2} + B$ a meia vida calculada. Ele expressa o quanto a meia vida experimental é maior que a calculada.

No caso dos núcleos ímpares de Z par expressa-se o modo *normal* de decaimento alfa usando os valores de A e B já calculados para os núcleos par-par de mesmo Z . Na Fig. 1.3.4.2 podemos observar o quanto as emissões alfa dos núcleos deste tipo se afastam do modo normal de decaimento. Para os núcleos de Z ímpar as retas que definirão o modo normal de decaimento são construídas de modo que as meias vidas por elas determinadas sejam as médias aritméticas das meias vidas referentes a uma mesma energia de decaimento, obtidas pelas retas adjacentes dos emissores par-par.

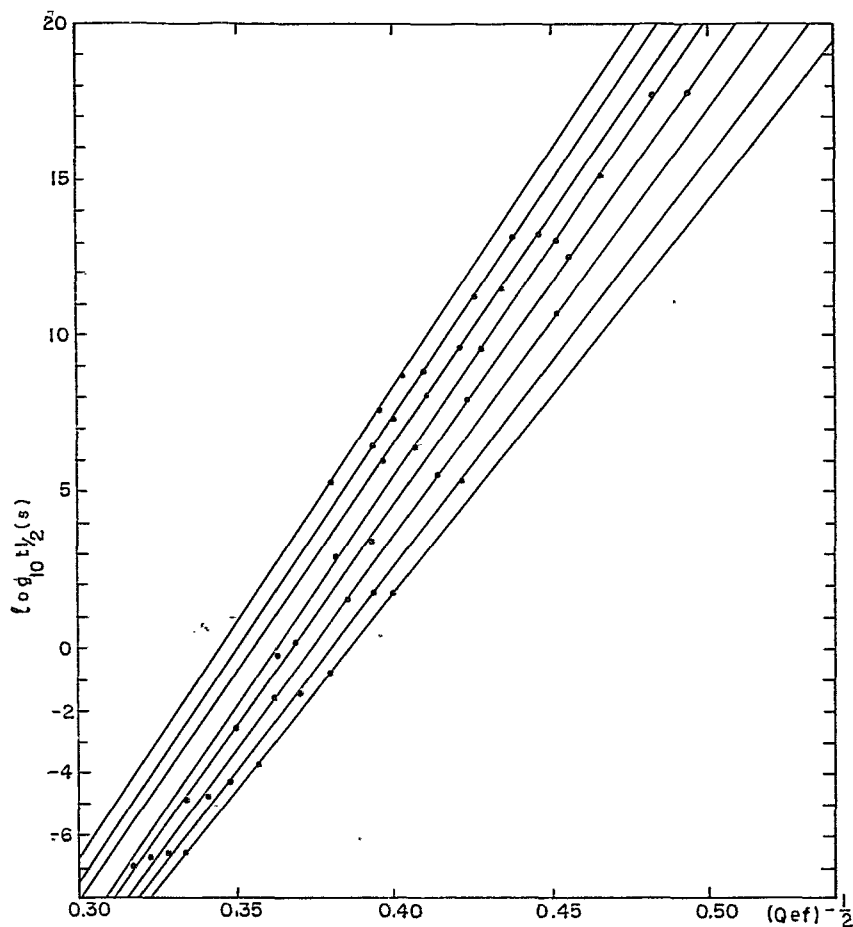


Fig. 1.3.4.1 - Relação entre o logaritmo da meia vida e o inverso da raiz quadrada da energia efetiva de decaimento alfa para os núcleos par-par.

TABELA 1.3.4.2 - Comparação entre a meia vida experimental e a teórica para emissões alfa com $\ell = 2$ em núcleos par-par.

NÚCLEOS	MEIA VIDA (s)	INTENSIDADE (%)	ENERGIA (MeV)	$\frac{t_{1/2\text{exp.}}}{t_{1/2\text{teor.}}}$
Ra ²²⁶	5.05×10^{10}	6	4.60	0.72
Ra ²²⁴	3.14×10^5	6	5.45	0.54
Th ²³²	4.45×10^{17}	24	3.95	0.97
Th ²³⁰	2.43×10^{12}	24	4.62	1.30
Th ²²⁸	6.03×10^7	28	5.34	0.69
Th ²²⁶	1.86×10	19	6.22	1.12
U ²³⁸	1.41×10^{17}	25	4.15	0.89
U ²³⁶	5.61×10^{14}	24	4.44	1.06
Pu ²⁴²	1.22×10^{13}	24	4.86	1.77
Pu ²⁴⁰	2.06×10^{11}	24	5.12	1.21
Pu ²³⁸	2.77×10^9	28	5.46	1.58
Pu ²³⁶	8.99×10^7	31	5.72	1.37
Cm ²⁴⁶	1.51×10^{11}	19	5.34	1.99
Cm ²⁴²	1.41×10^6	26	6.07	1.70
Cf ²⁵⁰	4.12×10^8	17	5.99	3.18
Cf ²⁴⁸	2.36×10^7	18	6.22	3.45
Cf ²⁴⁶	1.00×10^5	22	6.72	2.42

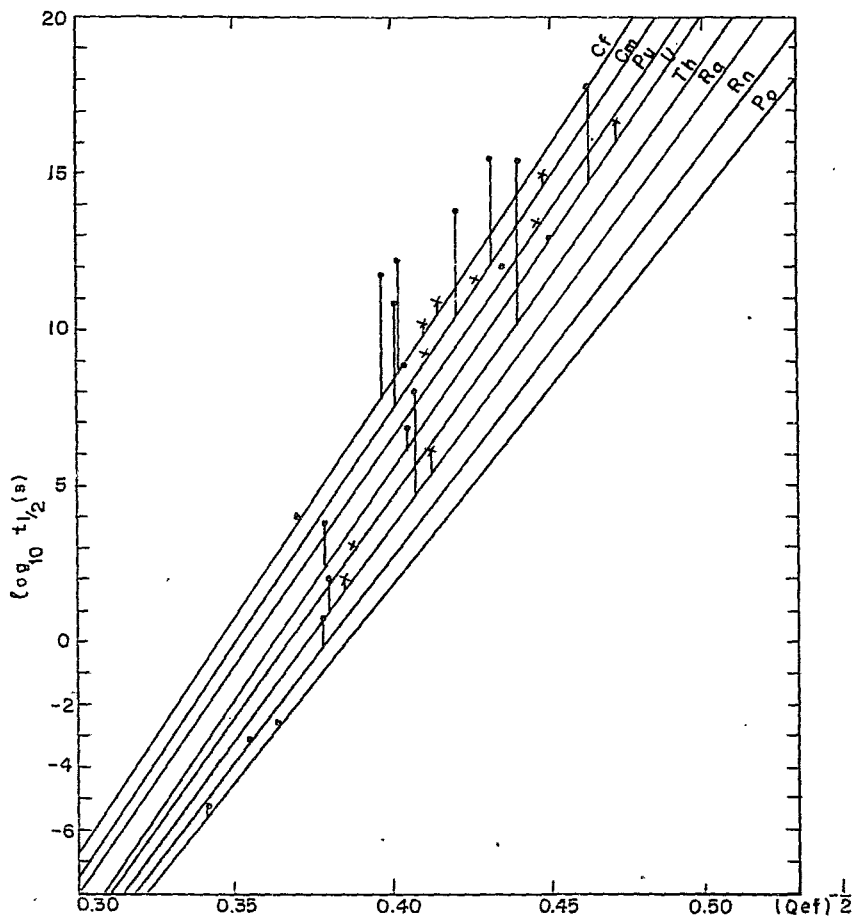


Fig. 1.3.4.2 - Relação entre o logaritmo da meia vida e inverso da raiz quadrada da energia efetiva de decaimento alfa para os núcleos par-ímpar. As retas de referência foram definidas pelas constantes A e B da Tab. 1.3.4.1.

- transição para o estado fundamental
- × transição mais intensa observada quando esta não é para o estado fundamental.

Vários autores (17, 28, 29), têm calculado os fatores de impedimento relativos aos emissores alfa que se desviam da sistemática do decaimento alfa. Devido a diferentes valores experimentais da meia vida e, principalmente, das energias das partículas alfa utilizadas por estes autores, os fatores de impedimento por eles calculados diferem bastante em alguns casos, sem contudo levar a situações conflitantes, uma vez que uma análise global destes fatores conduzem às mesmas conclusões.

Pela observação dos fatores de impedimento dos diferentes tipos nucleares (par e ímpar), pode-se estabelecer como regra geral que as transições alfa em núcleos ímpares são sempre mais lentas que o previsto através das retas de referência que definem o modo *normal* de decaimento. Nota-se ainda, neste tipo nuclear, que nos núcleos emissores de dois ou mais grupos de partículas as transições que envolvem as menores energias alfa são, em geral, menos proibidas que a transição para o estado fundamental do núcleo residual. Como exemplo deste comportamento, podemos citar o Ra^{223} cujas energias dos grupos de alfa e os correspondentes fatores de impedimento são mostrados na Tab. 1.3.4.3. Eventualmente são encontrados fatores de impedimento da ordem de grandeza de 10^3 . Tal fato é de difícil explicação, embora se possa enumerar alguns fatores que contribuem para a sub-estimativa da meia vida alfa. O modo *normal* de decaimento alfa foi definido a partir de uma teoria que não levou em consideração a contribuição nem de potenciais não centrais no caso dos núcleos elipsoidais, nem a do momento angular da partícula alfa. Porém, a omissão do potencial centrífugo que causaria um aumento na altura da barreira de potencial não é capaz de justi

TABELA 1.3.4.3 - Fatores de impedimento das transições alfa no Ra^{223} ($t_{1/2} = 11.43 \text{ d}$) (29).

E (MeV)	ABUNDÂNCIA %	MEIA VIDA PARCIAL (anos)	FATOR DE IMPEDIMENTO
5.870	0.85	3.68	2800
5.856	0.31	1.01×10	6900
5.745	8.9	3.52×10^{-1}	69
5.714	52	6.00×10^{-2}	8.2
5.605	25	1.25×10^{-1}	4.7
5.538	8.9	3.52×10^{-1}	5.8
5.500	0.8	3.92	40
5.479	0.008	3.92×10^2	3200
5.432	2.2	1.42	6.5
5.364	0.11	2.59×10^2	55
5.337	0.10	3.13×10	43
5.285	0.13	2.41×10	17
5.281	0.10	3.13×10	23
5.257	0.042	7.46×10	36
5.234	0.041	7.64×10	27
5.210	0.053	5.91×10^2	150
5.171	0.025	1.25×10^2	19
5.150	0.020	1.57×10^2	17
5.133	0.0017	1.84×10^3	170
5.110	0.0006	5.22×10^3	350
5.084	0.0003	1.04×10^4	480
5.054	0.0002	1.57×10^4	480
5.034	0.0004	7.83×10^3	180
5.023	0.0006	5.22×10^3	100
5.012	0.0004	7.83×10^3	130

ficar grandes valores para F. Isto pode ser comprovado se observarmos a eq. (1.3.1.17) ou a Tab. 1.3.4.4. A meia vida aumenta somente de um fator 10 se o momento angular envolvido for 5, e es-

tes casos são raros.

TABELA 1.3.4.4 - Fatores indicativos da contribuição do momento angular na determinação do fator de penetrabilidade P . Estes fatores foram calculados usando-se a eq. (1.3.1.17).

ℓ	0	1	2	3	4	5	6
P_{ℓ}/P_0	1	0.839	0.590	0.349	0.173	0.072	0.025

Rasmussen⁽³¹⁾, utilizando um potencial mais realístico para a região superficial do núcleo e levando em consideração o potencial centrífugo, calculou os fatores de impedimento para os núcleos par-par. O potencial usado foi o proposto por Igo que, analisando dados experimentais de espalhamento alfa por núcleos de vários elementos, sugeriu que se somasse ao potencial Coulombiano na região da superfície nuclear um outro potencial atrativo da forma:

$$V(r) = - 1100 \exp \left\{ - \left[\frac{r - 1.17 A^{1/3}}{0.574} \right] \right\} \text{ MeV} , \quad (1.3.4.28)$$

onde A é o número de massa do núcleo residual e r medido em Fermi (10^{-13} cm). Este potencial só é válido se na região considerada $|V| \approx 10$ MeV. Com as meias vidas experimentais dos núcleos par-par e o fator de penetrabilidade P , calculado por (1.3.1.12) usando o potencial

$$V = V(r) + \frac{2Ze^2}{r} + \frac{\hbar^2}{2Mr^2} \ell(\ell+1) , \quad (1.3.4.29)$$

onde M é a massa reduzida do sistema e ℓ o momento angular da partícula alfa emitida, ele expressou o fator de frequência $f(\lambda = fP)$ em termos da largura reduzida ("*reduced width*") δ^2 de finida como $\delta^2 = \frac{\lambda}{P} h$, sendo h a constante de Planck. A quantidade de δ^2/h , que é interpretada como uma hipotética constante de decaimento na ausência de uma barreira, está relacionada ao fator de formação da partícula alfa sendo, portanto, importante no estudo da dinâmica nuclear. O fator de impedimento reduzido (asim chamado quando considera-se o efeito do potencial centrífugo), foi determinado simplesmente como a razão δ^2/δ_L^2 , entre a largura reduzida da transição para o estado fundamental e a do estado excitado de momento angular L . O histograma da distribuição dos fatores de impedimento reduzido (δ^2/δ_L^2) calculado em (31) é mostrado na Fig. 1.3.4.3.

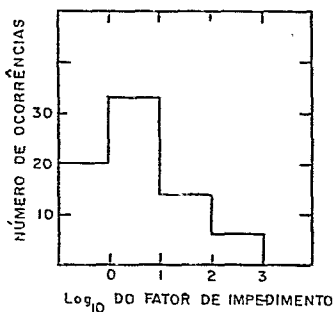


Fig. 1.3.4.3 - Distribuição do logaritmo dos fatores de impedimento, calculados por Rasmussen⁽³¹⁾ para transições com $\ell \neq 0$ nos núcleos pares par-par.

Além dos dois fatos acima vistos, temos um terceiro a considerar que é o de formação da partícula alfa. Ao desenvolvermos a teoria do decaimento alfa partimos da premissa que esta partícula já existia no interior do núcleo. Entretanto, se supusermos que ela é formada por ocasião da sua emissão, então o fator de formação não será o mesmo para diferentes núcleos. Este efeito pode causar

variações na meia vida de um fator $10^{(28)}$. Como o fator de impedimento está também relacionado ao momento angular e às interações não centrais da partícula alfa, e o fator de formação nos núcleos par-par não é unitário, o fator F é simplesmente um número da mesma ordem de grandeza da razão entre o fator de formação num núcleo par-par e no núcleo em questão. Parece certo que, nos núcleos ímpares, o fator de formação é o principal responsável pelo fato das meias vidas experimentais serem maiores que as calculadas. Vejamos: os núcleos ímpares possuem um nucleón não emparelhado, sendo portanto menos ligado que os demais. Como a partícula é formada preferencialmente por nucleons já emparelhados, uma formação que envolva este nucleon deverá apresentar algum impedimento. Mas, nos casos em que o nucleon ímpar não necessita variar o seu estado quântico, podemos esperar que o fator de formação seja aproximadamente igual ao dos núcleos par-par, uma vez que nos dois casos os nucleons que formam a partícula alfa teriam funções de onda semelhantes. Assim, se o núcleo residual dispuser de um estado que possua uma função de onda semelhante a do núcleo emissor, podemos esperar que a transição para este estado seja mais favorecida que as demais. Isto explicaria um fato típico dos núcleos ímpares, que é o de apresentarem transições menos impedidas para os estados excitados que para o estado fundamental do núcleo residual.

1.4 - RADIOATIVIDADE ALFA NA REGIÃO DAS TERRAS-RARAS

Como foi exposto na seção 1.2, podemos atravêr de uma análise das energias de decaimento alfa usando valores experi -

mentais das massas nucleares, prever que os núcleos beta estáveis com um número de massa maior que 140 são possíveis emissores alfa. O perfil da curva de variação da energia de decaimento alfa com o número de massa, para os núcleos mais beta estáveis entre os de mesmo Z ⁽¹⁶⁾, apresenta dois máximos: um em $A \approx 145$ e o outro em $A \approx 212$. Estes máximos correspondem, respectivamente, aos efeitos de camada nas regiões de 82 e 126 neutrons. O estudo da sistemática das energias de decaimento alfa nos elementos pesados (Fig. 1.2.1), está em concordância com a previsão teórica em relação ao máximo em $A \approx 212$. A Fig. 1.4.1, onde apresentamos a variação da energia de decaimento alfa com o número de massa para os elementos com $Z < 83$, completa a de número 1.2.1 e pode-se notar em $A = 152$ o máximo previsto.

Embora os dados na região das terras raras sejam muito segmentados, notamos um comportamento idêntico aos dos núcleos pesados em relação ao aumento da energia de desintegração alfa, quando o número de neutrons diminui num mesmo conjunto de isótopos. Porém, o comportamento dos núcleos com $N < 84$ difere bastante dos de $N < 128$. Na região em torno de $N = 126$, a energia de desintegração alfa atinge o máximo em $N = 128$, diminuindo bruscamente para os de $N = 127$ e 126, quando volta, então a aumentar com o decréscimo de N . Como exemplo típico deste comportamento pode-se citar o polônio. Tal fato não ocorre, entretanto, na região das terras raras onde não são encontrados emissores com menos que 84 neutrons. Isto pode ser explicado devido ao fato da estrutura de 82 neutrons ser mais ligada que a de 126. A energia de ligação de um neutron na última camada da estrutura $N = 82$ é tão grande que, ou é energeticamente impossível a

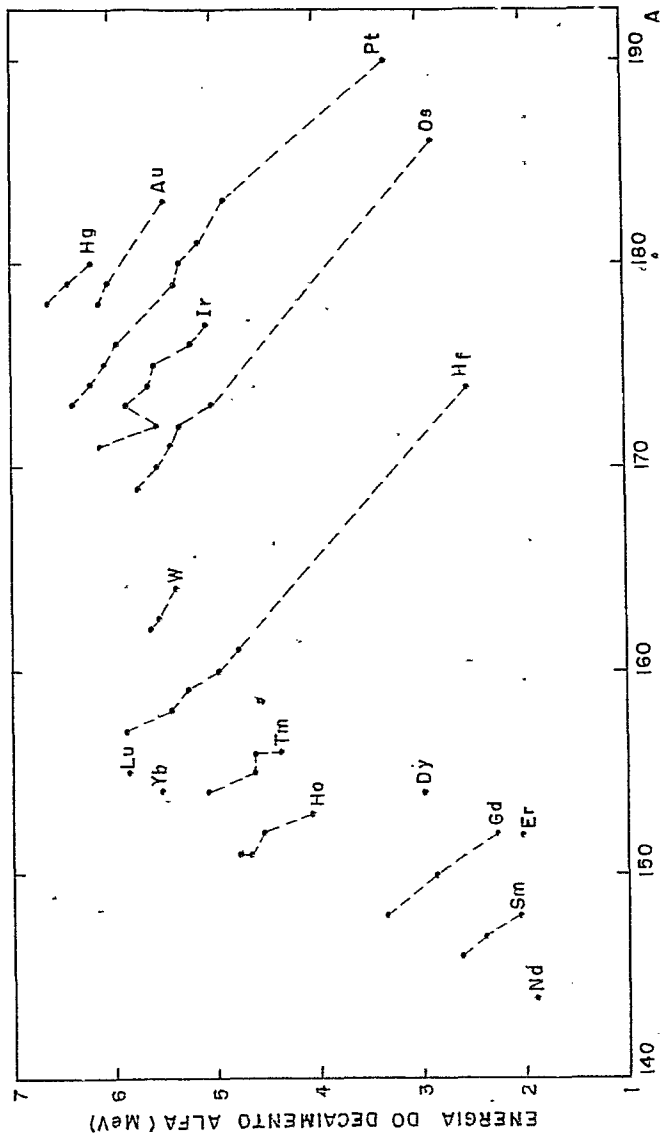


Figura 1.4.1 - Variação da energia de decaimento alfa em função do número de massa, para os núcleos com $Z < 83$.

formação de uma partícula alfa ou, caso seja possível, a sua energia é muito pequena e então, de acordo com a teoria de penetração de barreira, as meias vidas alfa são extremamente grandes, sendo impossível observá-las. A energia de separação de dois neutrons nos núcleos com $N=82$ e 83 é maior 4 e 2 MeV, respectivamente, que para os de $N=84$. Deste modo, a energia de decaimento alfa para os núcleos com $N=83$ e 82 são menores 2 MeV e 4 MeV, respectivamente, que para os de $N=84$. Por outro lado, a probabilidade do núcleo decair por captura eletrônica ou emissão β^+ também aumenta quando o número de neutrons diminui, de forma que são estes os modos de decaimento que predominam na região das terras raras com $Z < 84$.

A relação linear entre os logaritmos das meias vidas alfa e o inverso da raiz quadrada das energias de decaimento, para um mesmo conjunto de isótopos, obtida através das eqs. (1.3.1.16) e (1.3.4.25) pela teoria de penetração de barreira e confirmada experimentalmente para os núcleos pesados par-par (Fig. 1.3.4.1), não pode ser testada para os elementos terras raras por existirem poucos emissores alfa nesta região. Na Fig. 1.4.2 são apresentados os logaritmos das meias vidas em função do inverso da raiz quadrada da energia efetiva de decaimento alfa ($Q_{\alpha f}$) para os elementos terras raras.

São encontrados, nesta região, quatro emissores alfa naturais: Nd^{144} , Sm^{147} , Sm^{148} e o Gd^{152} . Eles possuem Z par e emitem alfas em torno de 2 MeV. Os próximos elementos com o número atômico par são o disprósio e o érbio.

Usando as massas atômicas tabuladas por Wapstra⁽¹⁸⁾, calculamos as energias de decaimento alfa para os isótopos do érbio. O de número de massa 162 é o que apresenta maior energia de

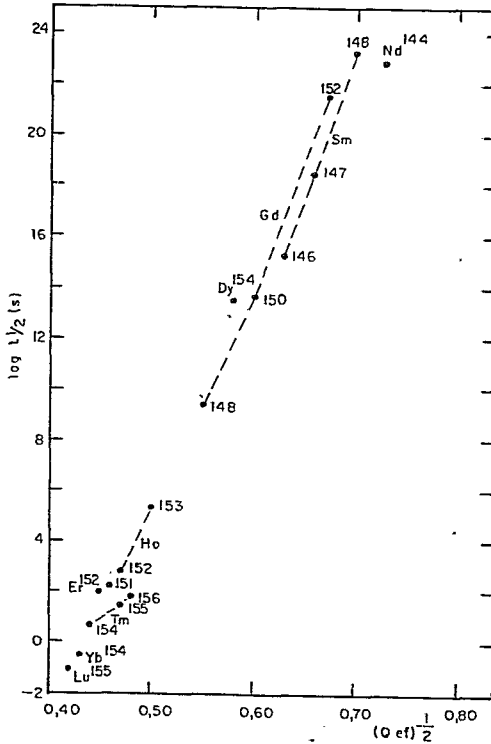


Figura 1.4.2 - Relação entre logaritmo de meia vida e a energia efetiva de decaimento alfa para os núcleos de terras raras que possuem estes valores bem medidos.

decaimento, igual a 1.66 MeV. Pela teoria de penetração de barreira, determinamos a meia vida $t_{1/2}$ de desintegração alfa dos isótopos Nd^{144} , Gd^{152} e Er^{162} , através da

relação $t_{1/2} = \frac{\ln 2}{\lambda}$, sendo λ a constante de desintegração definida por $\lambda = fP$, onde

$$P = \exp \left\{ - \frac{2}{\hbar} (2M)^{1/2} \int_R \left(\frac{2Ze^2}{r} - E \right)^{1/2} dr \right\} \quad (1.3.1.14)$$

e $f = v/R$. O valor considerado para o raio nuclear foi $r = 1.48 A^{1/3} \times 10^{-13}$ cm e encontramos para o isótopo Er^{162} a meia vida de 5.08×10^{29} anos. Este valor é concordante com a sistemática do decaimento alfa, pela qual a meia vida decresce com

o número de neutrons exteriores a última camada fechada. Portanto, a meia vida obtida para o Er^{162} , apesar de extremamente longa, era esperada visto que ele possui doze neutrons exteriores à camada fechada de 82 neutrons.

Os valores calculados para as meias vidas do Nd^{144} e Gd^{152} foram 2.82×10^{16} e 3.51×10^{14} anos, respectivamente. As energias de decaimento alfa (Q_{α}) foram determinadas a partir de medidas experimentais das energias das partículas alfa emitidas por estes isótopos⁽³⁰⁾, levando-se em consideração a energia de recuo do núcleo residual e os efeitos da nuvem eletrônica do núcleo emissor.

CAPÍTULO II

PROCEDIMENTO EXPERIMENTAL

2.1 - INTRODUÇÃO

Desde a sua descoberta, em 1896, vários métodos experimentais têm sido usados na *detecção* da radioatividade alfa (Tab. 2.1.1). Quando o objetivo da medida é a *detecção* de uma atividade muito baixa (meia vida $> 10^{15}$ anos), poucos *detetores* têm se mostrado adequados, devido à necessidade de alta estabilidade e eficiência durante todo o tempo da medida.

Em 1962, o então Departamento de Radioatividade do Centro Brasileiro de Pesquisas Físicas, iniciou uma linha de pesquisa em radioatividade alfa de baixa atividade. A técnica empregada foi desenvolvida nesse Departamento por de Carvalho e Muchnik⁽⁵¹⁾, e consiste no carregamento de emulsões nucleares com o elemento em estudo, sem que as características das mesmas sejam alteradas. Anteriormente, as emulsões nucleares eram postas em contato com um filme do elemento radioativo em estudo, ou então pulverizava-se sua superfície com o material. Estes procedimentos foram substituídos devido à baixa eficiência na *detecção*.

Em 1967, iniciou-se um estudo sistemático visando à determinação da atividade alfa natural de elementos na região das terras raras. Para tanto, foram carregadas emulsões nucleares Ilford L4 com os elementos Érbio, Neodímio e Gadolínio, com

TABELA 2.1.1 - Tipos de *detetores* utilizados na investigação da atividade alfa do Sm^{147} . Detalhes dos métodos experimentais utilizados podem ser encontrados nas respectivas referências.

AUTOR	ANO	DETETOR	MEIA VIDA (ano)	REF.
Hevesy e Pahl	1933	Contador Geiger	1.2×10^{12}	33
Mäder	1934	Câmara de Ioniz.	-	34
Lyford e Bearden	1934	Câmara de Ioniz.	-	35
Libby	1934	Contador Geiger	6.3×10^{11}	36
Taylor	1935	Emulsão Nuclear	-	37
Hosemam	1936	Contador Geiger	$(1.00 \pm 0.07) \times 10^{12}$	38
Lewir	1936	Câmara de Ioniz.	-	39
Wilkins e Dempster	1938	Emulsão Nuclear	-	40
Cuer e Lattes	1946	Emulsão Nuclear	$(1.3 \pm 0.1) \times 10^{11}$	41
Beard e Wudenbeck	1954	Contador Proporc.	$(1.25 \pm 0.06) \times 10^{11}$	42
Leslie	1956	Emulsão Nuclear	$(1.15 \pm 0.03) \times 10^{11}$	43
Beard e Kelly	1957	Cintil. Líquido	$(1.28 \pm 0.04) \times 10^{11}$	44
Karras	1960	Câmara de Ioniz.	$(1.17 \pm 0.05) \times 10^{11}$	45
Karras e Nurmia	1960	Câmara de Ioniz.	$(1.14 \pm 0.05) \times 10^{11}$	46
Wright e col.	1961	Cintil. Líquido	$(1.05 \pm 0.02) \times 10^{11}$	47
MacFarlane e Kohman	1961	Câmara de Ioniz.	$(1.15 \pm 0.05) \times 10^{11}$	10
Donhoffer	1964	Cintil. Líquido	$(1.04 \pm 0.03) \times 10^{11}$	48
Valli e col.	1965	Câmara de Ioniz.	$(1.083 \pm 0.020) \times 10^{11}$	49
Valli e col.	1965	Cintil. Líquido	$(1.075 \pm 0.015) \times 10^{11}$	49
Gupta e MacFarlane	1970	Câmara de Ioniz.	$(1.06 \pm 0.02) \times 10^{11}$	50

composição isotópica natural, a partir de óxidos fornecidos pela American Potash and Chemical Corporation, com os seguintes graus de pureza:

érbio	99,9%
gadolínio	99,99%
neodímio	99,999%

Neste trabalho, não descreveremos as propriedades químicas e físicas da emulsão nuclear, nem os processos pelos quais uma partícula ionizante sensibiliza os cristais de brometo de prata nela contidos. Não trataremos, tampouco, da atuação do revelador e fixador que tornam visíveis pelo microscópio os traços (imagem) devidos à interação de tais partículas com a emulsão, por considerarmos que tal assunto encontra-se descrito de forma bastante detalhada em vários livros e publicações (52, 53, 54). Termos como "*imagem latente*", "*desvanecimento da imagem latente*" ("*fading*") e outros, serão usados sem a preocupação de defini-los, já que se referem a mecanismos básicos do processo fotográfico. Procuraremos nos restringir à descrição do caráter técnico do processo utilizado e relatar a experiência por nós adquirida no emprego e desenvolvimento deste método.

Para termos uma descrição sequencial do método experimental utilizado neste trabalho, o dividiremos em quatro etapas:

- carregamento da emulsão nuclear;
- exposição;
- revelação;
- microscopia.

2.2 - CARREGAMENTO DE EMULSÕES NUCLEARES

As emulsões nucleares têm sido usadas para registrar traços de partículas ionizantes nos casos em que se deseja conhecer o número de partículas emitidas por uma determinada amostra por unidade de tempo. São também utilizadas para se obter o espectro de energia de tais partículas. Para aumentarmos a eficiência da detecção utiliza-se o recurso de incorporar a amostra à própria emulsão: é o que chamamos "*Carregamento da Emulsão Nuclear*". O carregamento deve ser feito de tal modo que seja possível determinarmos a quantidade exata do elemento incorporado e que o mesmo não altere as propriedades físicas e químicas da emulsão. Dentre as técnicas de carregamento existentes, optamos por aquela segundo a qual se incorpora o elemento à emulsão através de um complexo estável deste misturado ao gel derretido. Esta escolha foi feita por considerarmos tal técnica a que melhor satisfaz aos requisitos acima mencionados, obtendo-se também uma distribuição uniforme do elemento através do volume da emulsão. Foram preparadas emulsões carregadas com érbio, neodímio e gadolínio, bem como emulsões puras.

2.2.1 - Propriedades dos Complexos Usados no Carregamento

As soluções passíveis de uso para o carregamento de uma emulsão nuclear devem apresentar as seguintes propriedades:

- soluções aquosas estáveis de pH entre 6 e 8;
- permitam a determinação de sua concentração;

- não alterem as propriedades físicas e químicas das emulsões;
- não provoquem o desvanecimento da imagem latente nem a criação de vênus de fundo ("fog");
- não contenham impurezas microscópicas;
- mantenham o pH da gelatina em torno de 7 após o elemento ser retirado por lavagem.

A solução aquosa utilizada para o érbio, o neodímio e o gadolínio, que pode ser usada para qualquer elemento terra rara, tem a seguinte composição^(*):

- 1 cm³ de uma solução 0,5 M de nitrato de terra rara;
- 0,5 cm³ de uma solução 1 M de citrato de amônia;
- 0,3 cm³ de uma solução 1 M de carbonato de amônia;
- hidróxido de amônia até dissolver o precipitado.

2.2.2 - Técnica de Carregamento

Após a preparação do complexo de terra rara, passamos para a fase de preparação da emulsão, que pode ser descrita através das seguintes etapas:

- 1) Pesou-se uma certa quantidade do complexo e de emulsão em forma de gel, de modo que a película de emulsão ao secar contivesse uma carga aproximada de 70 mg/cm³ do elemento (isto para o caso do érbio e do neodímio; para o gadolínio, esta concentração deve ser de ≈ 90 mg/cm³). Sabemos que 10,4 g

(*) M.M. de Araújo Penna, comunicação particular.

de gel produzem 1 cm^3 de emulsão seca.

- 2) Aqueceu-se o gel num banho termostático a 55°C durante 10 minutos. Após a fusão do gel, misturou-se então o complexo até que se obtivesse uma completa homogeneização.
- 3) Derramou-se a mistura numa bandeja de lucite previamente nivelada.
- 4) Após a mistura adquirir consistência, a bandeja foi colocada numa câmara apropriada, à temperatura de 40°C e 40% de umidade relativa, a fim de concluir a secagem.
- 5) A quantidade de resíduo seco foi determinada para correções.
- 6) A emulsão seca foi então retirada da bandeja e cortada em pedaços de tamanho de fácil manipulação. Cada pedaço foi pesado e medidas as suas dimensões, sendo tais medidas feitas em pontos bem determinados, de modo que após a revelação pudessem ser identificados.

Durante todo o processo de carregamento adotamos cuidados especiais no sentido de se evitar a contaminação da emulsão por elementos radioativos estranhos ao trabalho. As bancadas do laboratório e todo o material utilizado foram completamente limpos, cuidado esse imprescindível já que pretendeu-se medir atividades baixas. Procurou-se também evitar a contaminação por bactérias, que causaria deterioração da gelatina ou provocaria a formação de manchas negras na película, dificultando o trabalho de microscopia. Para tanto, todo o material utilizado, inclusive bancadas e câmaras de secagem, foram esterilizados com formol. Após a secagem, as películas foram envolvidas

em papel preto e seladas a vácuo em envólucros plásticos.

A partir de uma mesma porção de gel preparamos dois tipos de películas de emulsão nuclear: um de películas carregadas com o elemento que se pretendia estudar e outro com o gel puro. Este último foi utilizado para o registro tanto dos traços de partícula alfa devidos a elementos de contaminação presentes na gelatina como dos traços induzidos por radiação cósmica.

2.3 - EXPOSIÇÃO

O número de traços registrados em uma emulsão nuclear carregada depende, em última análise, do número de átomos presentes do elemento em estudo e do tempo durante o qual a emulsão permaneceu armazenada desde o seu carregamento até a revelação (tempo de exposição). Estes são, portanto, os parâmetros passíveis de variação.

Quando o elemento em estudo possui uma atividade muito baixa (meia vida da ordem de 10^{17} anos), torna-se necessário incrementar ao máximo estes dois parâmetros (número de átomos e tempo de experiência) para que a contagem dos eventos seja estatisticamente representativa. Deve-se, no entanto, observar que existem limitações inerentes à emulsão nuclear. Como dissemos acima, as propriedades físico-químicas da emulsão não devem ser alteradas, existindo portanto uma quantidade máxima permitível para o elemento carga. Outra limitação é quanto ao tempo de exposição, já que pode ocorrer deterioração da gelatina ou

desvanecimento da imagem latente. São vários os mecanismos físicos e químicos responsáveis por tal fenômeno, sabendo-se que o "fading" aumenta com a quantidade de água presente na emulsão e com a temperatura, sendo também função do pH da emulsão. Para preveni-lo, as películas devem estar bem secas e serem estocadas à baixa temperatura.

O registro de traços induzidos pela radiação cósmica deve ser minimizado. Eles ocorrem principalmente através da captura de um neutron por um núcleo de nitrogênio 14 presente na emulsão, podendo resultar um próton que deixa registrado um traço de aproximadamente $6,6\mu\text{m}$ ⁽⁵⁵⁾, valor este que está dentro da região de alcance de interesse, já que os traços devidos a partículas alfa provenientes de elementos terras raras tem cerca de $6\mu\text{m}$. Tal minimização foi obtida armazenando-se as películas no interior do Túnel Santa Bárbara. Para proporcionar às películas um ambiente de baixa temperatura, evitando-se assim o desvanecimento da imagem latente, elas foram colocadas num refrigerador, acondicionadas num recipiente térmico que garantisse a ausência de atmosfera oxidante.

2.4 - REVELAÇÃO

O processo de revelação de uma emulsão nuclear pode ser dividido em três etapas principais, a saber:

- a revelação propriamente dita;
- o banho interruptor ("stop");
- a fixação.

Antes da revelação, as películas são lavadas em água corrente, destilada, a uma temperatura de 5°C, durante 10 horas. O objetivo desta lavagem é a remoção dos complexos de terras raras com que as emulsões foram carregadas. As propriedades de um revelador são determinadas pelos seguintes fatores:

- concentração do agente revelador;
- quantidade de solvente;
- concentração de brometo;
- pH;
- temperatura.

O conhecimento da influência destes fatores no processo de revelação é fundamental para se determinar que quantidades dos produtos químicos deverão estar presentes no banho revelador para se alcançar o tipo de revelação desejado, isto é, que se apareçam os traços da partícula ionizante estudada.

A solução reveladora à base de amidoI é a mais utilizada na técnica de emulsão nuclear pois, tendo o amidoI carga unitária negativa, permitirá uma boa difusão na gelatina, mesmo quando esta possuir carga dominante negativa. Uma boa difusão é importante, principalmente em se tratando de emulsões espessas, que foi o nosso caso. O único inconveniente do uso de tal revelador é que o amidoI se oxida facilmente, sendo por isso necessário preparar o banho revelador no momento da revelação, e que seja utilizado à baixa temperatura (cerca de 5°C). Devido a estes quesitos, o processo de revelação é lento, não podendo contudo ultrapassar doze horas, tempo este em que a oxidação do amidoI ainda não é suficiente para tornar o revelador inoperante.

A solução reveladora utilizada para a revelação das películas no presente trabalho foi:

- ácido bórico : 10g
- sulfito de sódio : 5g
- brometo de potássio : 0,5g
- amido1 : 0,45g
- água destilada : 1000 cc.

A emulsão foi inicialmente imersa nesta solução a 5°C durante 3 horas, elevando-se em seguida a temperatura a 9°C, onde as películas permaneceram por mais uma hora.

Finda a revelação, é aconselhável que as películas sejam lavadas em água corrente a 5°C, e banhadas numa solução interruptora ("stop"), a fim de que os resíduos do revelador sejam removidos e sua ação interrompida, evitando-se que, nos primeiros instantes da fixação haja a formação de uma nuvem escura ("fog"). A solução interruptora usada é composta de 5g de sulfito de sódio por litro de água destilada a ácido acético em quantidade tal que a solução atinja pH 3,5. A emulsão deve permanecer nesta solução por duas horas, à temperatura de 5°C.

A última etapa é a fixação. Sendo o banho fixador basicamente um solvente, deve-se tomar cuidado para que a gelatina e a prata não sejam afetadas. Os únicos componentes a serem dissolvidos são os cristais de brometo de prata não sensibilizados pela radiação. O fixador usado é composto de 350g/l de hipossulfito de sódio e 5g/l de sulfito de sódio, devendo ser mantido a 5°C durante esta fase. O tempo de imersão neste banho não pode ser longo a fim de evitar corrosão do traço revelado.

Ao término desta etapa, a emulsão deve ser novamente lavada para que o sal fixador seja removido, de modo que ele não corroa os traços ou manche a emulsão. A lavagem foi realizada com água corrente a aproximadamente 9°C, durante cerca de vinte e quatro horas. Nas emulsões espessas, como as que utilizamos, a fixação e a lavagem final são etapas que devem ser cuidadosamente realizadas para evitar distorções.

A etapa final do processo de revelação é a secagem da emulsão nuclear. Nesta fase devem ser tomadas precauções no sentido de evitar a criação de um forte gradiente de concentração de água entre a superfície da película e o restante da emulsão, responsável também por distorções na película. Um método que tem se mostrado eficiente para contornar essa dificuldade consiste em desidratar a emulsão em solução de álcool etílico a concentração de 65%, e deixar então que a película atinja o equilíbrio com a unidade do meio ambiente. Uma vez secas, as películas de emulsão nuclear foram coladas a uma base de vidro.

2.5 - MICROSCOPIA

2.5.1 - Observação dos Traços

A microscopia foi feita com microscópios E LEITZ WETZLAR, ora utilizando-se ocular 6x e objetiva 53x para a contagem e mapeamento dos eventos, ora utilizando-se ocular 6K e objetiva 100x para a medida dos alcances dos traços.

Para que fosse possível fazer um mapeamento da posição dos traços de partículas e para evitar que um mesmo traço

fosse contado duas vezes, colou-se na superfície da película uma rede de referência. Este recurso permitiu também um controle da eficiência de observação dos traços por duas microscopistas que observaram as mesmas chapas.

A observação do traço de uma partícula alfa na emulsão nuclear, nos permite fazer uma série de medidas, que levarão à determinação do comprimento e real \overline{AB} da trajetória da partícula alfa na emulsão (fig. 2.5.1.1):

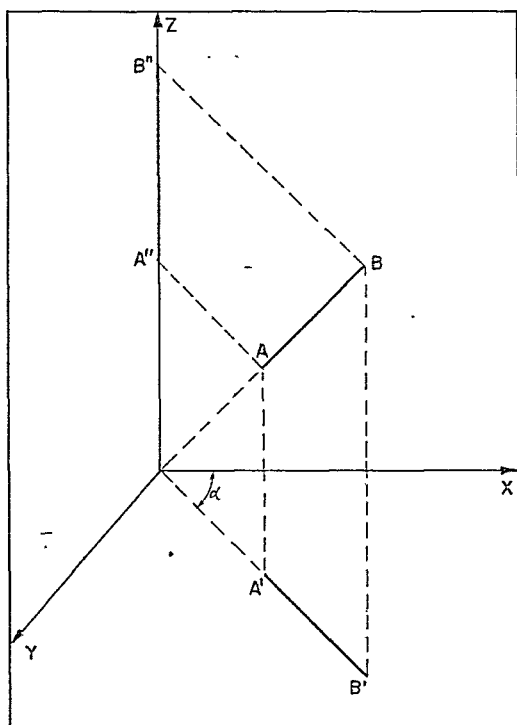


Figura 2.5.1.1 - Orientação espacial da trajetória de uma partícula alfa na emulsão nuclear.

$\overline{A'B'}$ - Distância entre as extremidades da projeção do traço no plano da emulsão.

$\overline{A''B''}$ - Distância vertical entre as extremidades do traço.

ALFA - Ângulo entre a projeção do traço no plano da emulsão e uma direção arbitrária escolhida para o eixo-x.

As medidas dos parâmetros acima descritos são realizadas da seguinte maneira:

$\overline{A'B'}$ - Por intermédio de uma ocular com escala previamente calibrada.

$\overline{A''B''}$ - Por um micrômetro acoplado ao movimento vertical do canhão do microscópio.

ALFA - Por um goniômetro adaptado à ocular do microscópio.

Na Fig. 2.5.1.1 vemos que o comprimento \overline{AB} da trajetória da partícula alfa na emulsão é dado por:

$$\overline{AB} = \sqrt{\overline{A'B'}^2 + \overline{A''B''}^2} \quad (2.5.1.1)$$

Contudo, este comprimento não é o verdadeiro.

Uma película ao passar pelo processo de revelação sofre dilatações laterais e contrações na espessura, principalmente durante a fase de fixação devido à dissolução dos cristais de brometo de prata não sensibilizados pelas partículas ionizantes. Como as medidas de $\overline{A'B'}$ e $\overline{A''B''}$ são feitas após a revelação, faz-se necessário introduzir fatores de correção para a obtenção do comprimento do traço nas condições iniciais. Para a correção da medida $\overline{A''B''}$ define-se um fator de contração FC como a razão entre a espessura média ℓ_i da película an-

tes e a espessura média ℓ_f obtida após a revelação. As medidas dessas espessuras foram feitas em pontos identificados por ocasião da preparação da película. As correções devidas às dilatações laterais são feitas através das grandezas CALH e CALV. A calibração horizontal CALH é definida como o produto da calibração da escala da ocular (o número de microns correspondente a uma divisão) pela razão entre o comprimento inicial da película (antes da revelação) e o final (após a revelação). A calibração vertical CALV é definida de modo análogo. Resumindo:

$$FC = \ell_i / \ell_f$$

$$CALH = \text{calibração} \cdot H_i / H_f$$

$$CALV = \text{calibração} \cdot V_i / V_f$$

Deste modo, a projeção do traço verdadeiro no plano XY da emulsão é dada por

$$\sqrt{(\bar{A}^T \bar{B}^T \cdot \text{sen} \text{ALFA} \cdot \text{CALV})^2 + (\bar{A}^T \bar{B}^T \cdot \text{cos} \text{ALFA} \cdot \text{CALH})^2}$$

e o alcance verdadeiro da partícula na emulsão nuclear é calculada por:

$$\text{ALCANCE} = \sqrt{\bar{A}^T \bar{B}^T \left[(\text{sen} \text{ALFA} \cdot \text{CALV})^2 + (\text{cos} \text{ALFA} \cdot \text{CALH})^2 \right] + (\bar{A}^T \bar{B}^T \cdot FC)^2} \quad (2.5.1.2)$$

A maior parcela de erro associado à medida de meia vida de um emissor alfa usando-se a técnica de emulsão nuclear, é aquela devida ao erro estatístico na contagem do número de eventos observados numa determinada área da película. Torna-se por-

tanto, necessário um tratamento estatístico cuidadoso destes dados.

2.5.2 - Eficiência de Contagem

A partir do mapeamento dos traços de partículas alfa encontrados e medidos por duas microscopistas, que observaram num mesmo volume de uma dada película, obedientes às mesmas instruções, é possível determinar a eficiência de cada observador e o número provável de traços existentes no volume observado. Isto é feito pelo método estatístico da dupla coincidência⁽⁵⁶⁾.

A eficiência de um observador na contagem de eventos é medida através da razão entre o número de eventos por ele encontrados e o número total mais provável de eventos. Assim, se T representa este último e A e B representam o número de eventos encontrados por dois observadores, teremos respectivamente:

$$E_A = \frac{A}{T} \quad \text{e} \quad E_B = \frac{B}{T} ,$$

que são as eficiências individuais.

A eficiência de uma observação dupla é dada por:

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

e o número total de eventos é dado por

$$T = \frac{A \cdot B}{N_{AB}} ,$$

onde N_{AB} é o número de traços em coincidência encontrados pe -

Los dois observadores.

O erro estatístico máximo associado a T é \sqrt{T} .

Como a eficiência diminui com o decréscimo da densidade de eventos, o tempo de exposição das emulsões nucleares deve ser programável de modo que se obtenha um máximo de eficiência, dentro dos limites inerentes à técnica experimental usada.

CAPÍTULO III

RESULTADOS E DISCUSSÕES

3.1 - INTRODUÇÃO

A medida da meia vida de um nuclídeo emissor alfa , usando a técnica de emulsão nuclear, requer que determinemos o número de traços de partículas alfa registrados por unidade de volume da emulsão. Este número é obtido analisando-se a distribuição de frequência dos alcances de partículas alfa observadas num dado volume da emulsão. Torna-se também necessário conhecer com a melhor precisão possível a quantidade do elemento radioativo em estudo incorporado à emulsão, pois a incerteza na medida da meia vida depende também da precisão daquela determinação.

A obtenção de resultados satisfatórios pressupõe, além de boas medidas, a consideração de efeitos inerentes à esta técnica e que possam induzir a erros. Para tanto, devemos corrigi-los quando controláveis, ou tentar evitá-los quando houver impossibilidade de correção.

O alcance de uma partícula alfa na emulsão nuclear não é medido diretamente, mas calculado a partir das medidas de $\overline{A^+B^+}$ e $\overline{A^+B^-}$ como definidas na Seção 2.5.1. Como o processo de revelação causa distorções na película, é ainda necessário medir o ângulo ALFA definido pela projeção $\overline{A^+B^+}$ e uma direção

arbitrária escolhida como eixo x (Fig. 2.5.1.1). Estando os traços distribuídos uniformemente no volume da película, as medidas de $\overline{A^1B^1}$, $\overline{A^2B^2}$ e ALFA são feitas a diferentes profundidades, sendo necessário também fazer a correção à espessura inicial (fator de contração).

Uma importante fonte de erros é a possível ocorrência de "*fading*". Quando total, este efeito impossibilita qualquer medida e, se parcial, além de diminuir o comprimento dos traços registrados, pode causar a redução de seu diâmetro. Isto conduz a erros na medida do ângulo ALFA, o que leva a correções devidas ao considerarmos os efeitos de distorção da película após a revelação. Embora seja relativamente fácil constatar a ocorrência ou não de "*fading*", é difícil e imprecisa, no primeiro caso, a determinação de um fator de correção.

Os traços de partículas alfa registrados na emulsão devido a impurezas de elementos alfa radioativos (urânio, tório e samário) incorporados naturalmente à gelatina e à amostra do elemento com que a emulsão foi carregada ou àqueles devido à radiação cósmica, constituem outra fonte de erros. Esta radiação alfa de fundo ("*background*") quando não corrigida provoca um acréscimo na contagem do número de eventos originados do emissor alfa em estudo. Nas condições da presente experiência, o "*background*" devido a impurezas na gelatina e à radiação cósmica, é facilmente controlável usando-se uma película de referência não carregada, e feita do mesmo gel com que foram preparadas as películas carregadas. Já a correção devido a impurezas na amostra só é possível conhecendo-se o grau de contaminação.

No presente trabalho não foi constatada a presença de colônias de bactérias nem de efeitos que pudessem comprometer as medidas. O ótimo aspecto das chapas demonstrou que os cuidados no carregamento e armazenamento das películas, bem como a técnica de revelação, foram adequadamente utilizados.

3.2 - CARACTERÍSTICAS DAS PELÍCULAS CARREGADAS COM TERRAS RARAS

A técnica de carregamento de emulsões nucleares utilizada neste trabalho possibilitou a incorporação dos elementos érbio e neodímio numa concentração de 17 mg do elemento por grama de película seca, e no caso do gadolínio 21 mg. Na Tab. 3.2.1 são apresentadas as características das películas utilizadas. Estas medidas, além de permitirem o cálculo da concentração do elemento emissor alfa na emulsão, possibilitam também a obtenção dos fatores de distorção CALH e CALV, e do fator de contração FC. Estes são usados na correção dos efeitos de dilatação e contração das chapas após a revelação.

Tabela 3.2.1 - Características das películas de emulsão nuclear carregadas com elementos de terras raras e utilizadas no presente trabalho.

Elemento	Dimensões (cm)	Massa (g)	Espessura (μ m)
Gd	2 \times 3	1,3319	550
Nd	1,9 \times 3	0,6462	300
Er	2,1 \times 3	1,1726	510

Para cada película, o número de átomos do elemento em estudo incorporado à emulsão por unidade de volume é calculado mediante a seguinte expressão:

$$N_{at}/cm^3 = \frac{M \times C \times N_0 \times 10^{-3}}{V \times A} \quad (3.2.1)$$

onde M é a massa da película em gramas; C a concentração do elemento na emulsão em mg/g; V o volume da película em cm³; N₀ o número de Avogadro e A o átomo-grama do elemento. Os elementos incorporados à emulsão apresentavam a composição isotópica natural. Assim, o resultado obtido a partir da fórmula acima deve ser multiplicado pela concentração do isótopo do elemento que se deseja determinar a meia vida.

3.3 - TRAÇOS DEVIDOS À RADIAÇÃO DE FUNDO

Examinando ao microscópio uma película carregada com um emissor alfa, constatamos a presença de traços de partículas alfa de diferentes alcances bem como de estrelas de vários ramos. Na Fig. 3.3.1 é apresentada a distribuição de alcances de traços de partículas alfa de uma película com gadolínio. A contaminação natural da emulsão e da amostra do elemento em estudo, com os elementos das séries radioativas naturais (U²³⁸, U²³⁵ e Th²³²) é responsável pelos traços de comprimento maior que 15µm. Existe ainda traços de comprimentos em torno de 7µm que podem ser devido às partículas alfa emitidas pelo Sm¹⁴⁷ da contaminação de samário natural, e também traços de 6,6µm de com

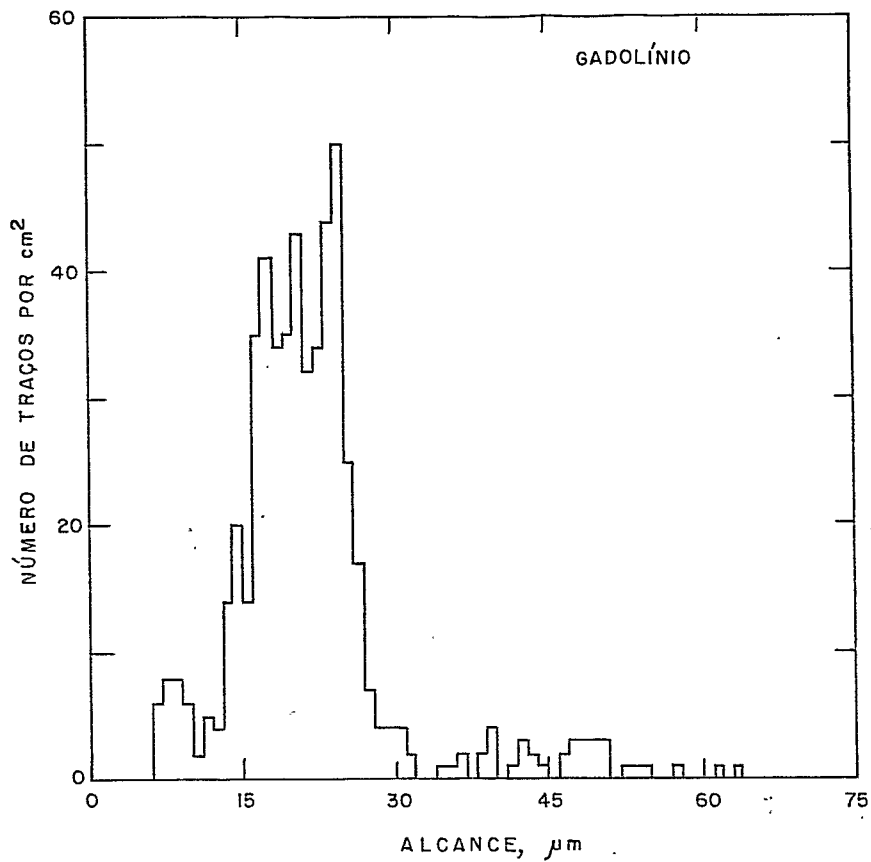


Figura 3.3.1 - Distribuição de alcance de partículas alfa na película carregada com gadolínio.

primento devido a prótons da reação $N^{14}(n,p)C^{14}$, como já mencionado na Seção 2.3. Como exemplo, observa-se na Fig. 3.3.1 o pico centrado em $15\mu m$ correspondente aos traços de partículas alfa emitidas pelo Th^{232} . Na Tab. 3.3.1 são apresentados os alcan-
ces na emulsão nuclear de partículas alfa emitidas por alguns componentes das três séries radioativas naturais.

Tabela 3.3.1 - Alcance na emulsão nuclear de partículas alfa emitidas por alguns radioisótopos das séries radioativas naturais.

Isótopo	Energia (MeV)	Alcance (μm)
U^{238}	4,19	16,0
U^{234}	4,75	19,3
Th^{230}	4,67	18,7
Po^{210}	5,30	22,6
U^{235}	4,41	17,4
Pa^{231}	4,95	20,5
Th^{232}	4,10	15,2

Como os traços de partículas alfa emitidas pelos isótopos de terras raras em estudo têm alcance aproximado de $6\mu m$, os traços maiores que $10\mu m$ não são considerados para a determinação da meia vida. Como aqueles provenientes do Sm^{147} e da reação $N^{14}(n,p)C^{14}$ podem contribuir para uma sub-estimativa da meia vida do isótopo de terra rara, foram preparadas, por ocasião do carregamento das emulsões nucleares, algumas películas so

mente com gel L4 Ilford. Estas tiveram o mesmo tratamento que as películas carregadas. Este expediente possibilitou a subtração do total de traços observados na região de alcance de nosso interesse, daqueles provenientes da radiação de fundo devido à contaminação da emulsão e à radiação cósmica. Os traços devido a possíveis impurezas de samário na amostra serão analisados por ocasião da determinação da meia vida (Seção 3.5).

3.4 - DESVANECIMENTO DA IMAGEM LATENTE

Quando se armazena uma emulsão nuclear por um período de tempo muito grande a imagem latente pode sofrer alterações, e até mesmo, em condições extremas, desaparecer. Este efeito é importante em nosso trabalho, onde as exposições se estenderam por até quatro anos.

Penna⁽¹⁴⁾ fez um minucioso estudo da ocorrência de "fading" em películas armazenadas por períodos de tempo muito prolongados. Investigou o "fading" a diferentes profundidades da película a partir da superfície, analisando o comprimento e o diâmetro dos traços de prótons de recuo, comparando-os aos de uma película de referência. Foi possível mostrar, nas películas encapsuladas à vácuo e armazenadas à baixa temperatura ($\approx 5^{\circ}\text{C}$), a impossibilidade de detectar a ocorrência de "fading" após um período máximo de seis anos.

Um método usado no presente trabalho e que permitiu o controle de um possível "fading", constituiu em irradiar algu-

mas películas de emulsão não carregadas com neutrons de uma fonte Ra-Be, a fim de registrar traços de prótons de recuo. Algumas destas películas foram reveladas imediatamente após a irradiação, e as demais, juntamente com as películas carregadas, após o período de exposição. A comparação das distribuições de alcance de prótons registrados em ambos os grupos de chapas permitiu a constatação de que, nas condições da presente experiência, nenhum "*fading*" foi observado.

Outro método também utilizado para a verificação de ocorrência de "*fading*" foi o estudo da distribuição de frequência de ramos de estrelas de tório de contaminação. Na Fig. 3.4.1 é mostrada a distribuição de estrelas de um determinado número de pernas, observadas numa emulsão carregada com érbio. Seja por um método, seja por outro, a conclusão a que se chega é de que não ocorreu "*fading*" nas películas usadas no presente trabalho, pois além de terem sido armazenadas em condições idênticas

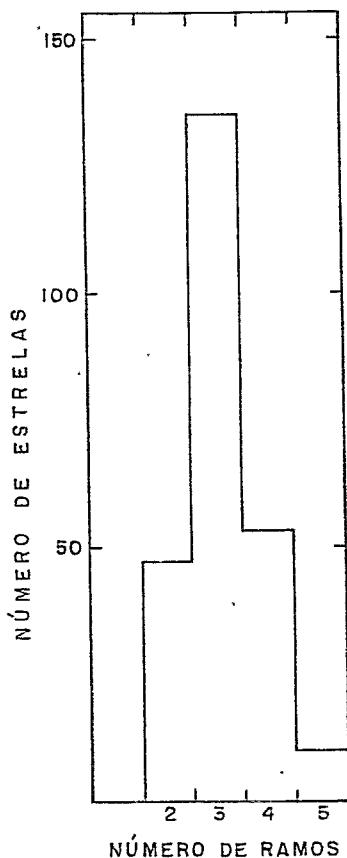


Figura 3.4.1 - Distribuição de "estrela" na emulsão carregada com érbio.

ãs de Penna (¹⁴), a análise cuidadosa dos traços não revelou qualquer efeito que possa ser atribuído à ocorrência de "fading".

3.5 - DETERMINAÇÃO DA MEIA VIDA

O número de traços de partículas alfa, registrado por centímetro quadrado de uma emulsão, é dado pela expressão

$$N_{\alpha} = N_{at} \lambda t \quad (3.5.2)$$

onde: N_{at} é o número de átomos por centímetro quadrado do elemento radioativo incorporado à emulsão; λ a constante de desintegração e t o tempo de exposição. A fórmula acima aplica-se ao caso de meias vidas longas, onde N_{at} permanece praticamente constante. O uso da expressão (3.5.2) para a determinação da meia vida de um emissor alfa, requer que determinemos o número de traços cujo comprimento corresponde à energia da partícula alfa emitida.

Evidentemente, seria um trabalho exaustivo e desnecessário examinarmos ao microscópio uma área muito grande ($\sim 6\text{cm}^2$). Foi examinado um determinado volume da emulsão carregada e da emulsão pura, normalizando então as contagens para um mesmo volume. O exame das películas ao microscópio foi feito em duas etapas:

- 1 - foram determinados os comprimentos dos traços individuais de qualquer comprimento no volume observado;

2 - foram contados e mapeados por dois observadores , eventos numa mesma região da película, bem como determinada a distribuição de estrelas.

Pelo método estatístico da dupla coincidência⁽⁵⁶⁾, obtivemos a eficiência dos observadores e feita então a correção do número de eventos observados. Usando a expressão (2.5.1.2) , calculamos os comprimentos reais dos traços observados. Nas Figs. 3.5.1, 3.5.2 e 3.5.3 são apresentadas as distribuições de alcance de partículas alfa para as películas carregadas com neodímio, gadolínio e érbio, respectivamente. As linhas tracejadas correspondem à distribuição de alcance observada na película de referência (emulsão pura).

Podemos observar que para cada grupo de partículas alfa a distribuição de alcance se assemelha a uma distribuição gaussiana. A largura da distribuição está relacionada com a resolução em energia do sistema de medidas utilizado. A largura das distribuições é devida à variação do alcance, na emulsão nuclear das partículas alfa de uma mesma energia e ao erro na medida do comprimento do traço. Por não conhecermos a contaminação da amostra do elemento com que a emulsão nuclear foi carregada, e devido à possibilidade desta conter Sm^{147} , é fundamental, neste caso, que a resolução em energia seja bastante boa. Desse modo, pode-se subtrair a distribuição de alcance de partículas alfa devido ao Sm^{147} .

No histograma de alcance das partículas alfa na emulsão nuclear carregada com neodímio (Fig. 3.5.1), observamos dois picos na região de 5 a 10 μm . O primeiro, centrado em $\sim 7\mu\text{m}$, cor

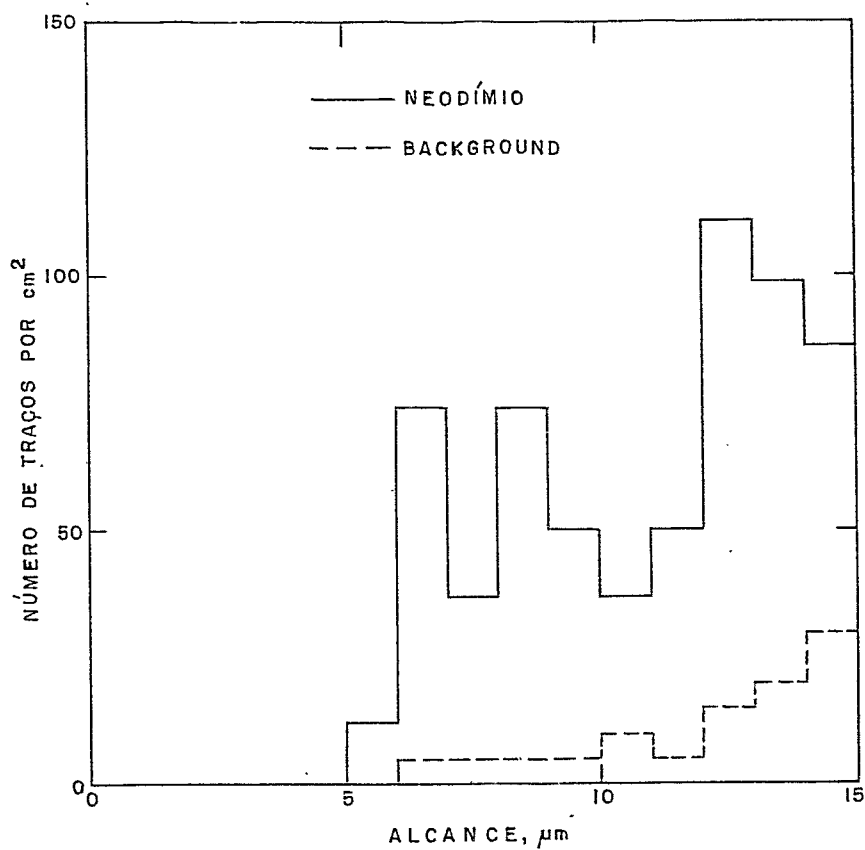


Figura 3.5.1 - Distribuição de alcance de partículas alfa na película carregada com neodímio.

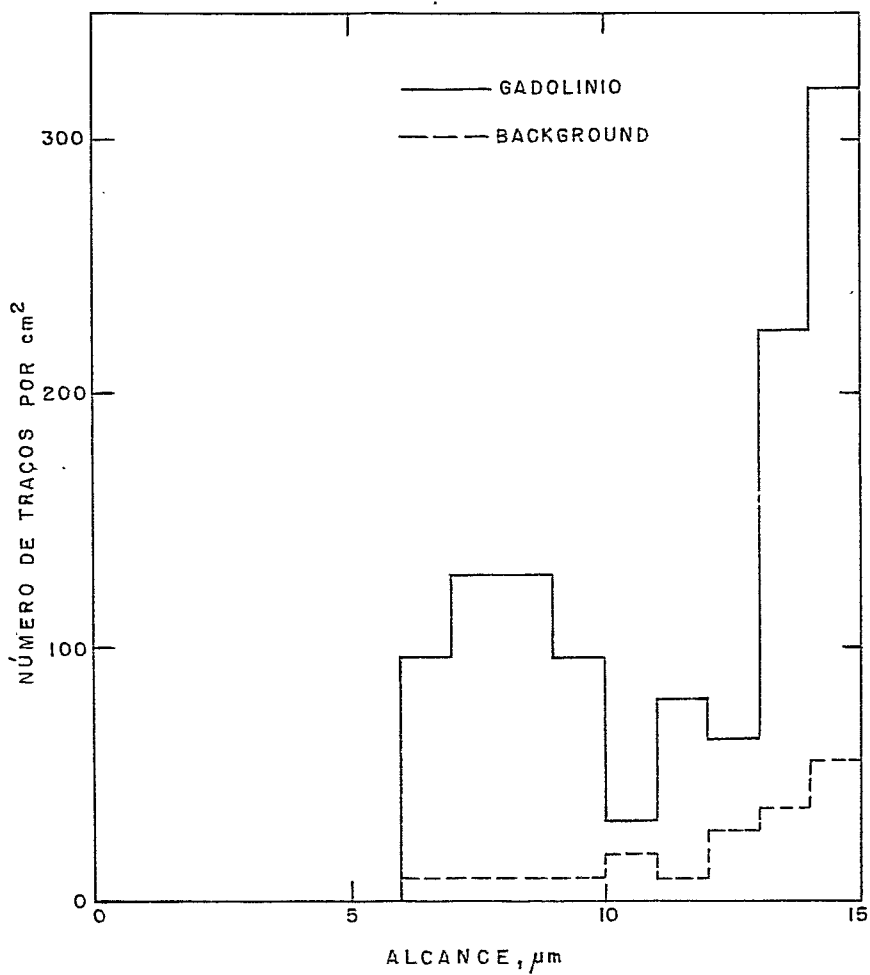


Figura 3.5.2 - Distribuição de alcance de partículas alfa na película carregada com gadolínio.

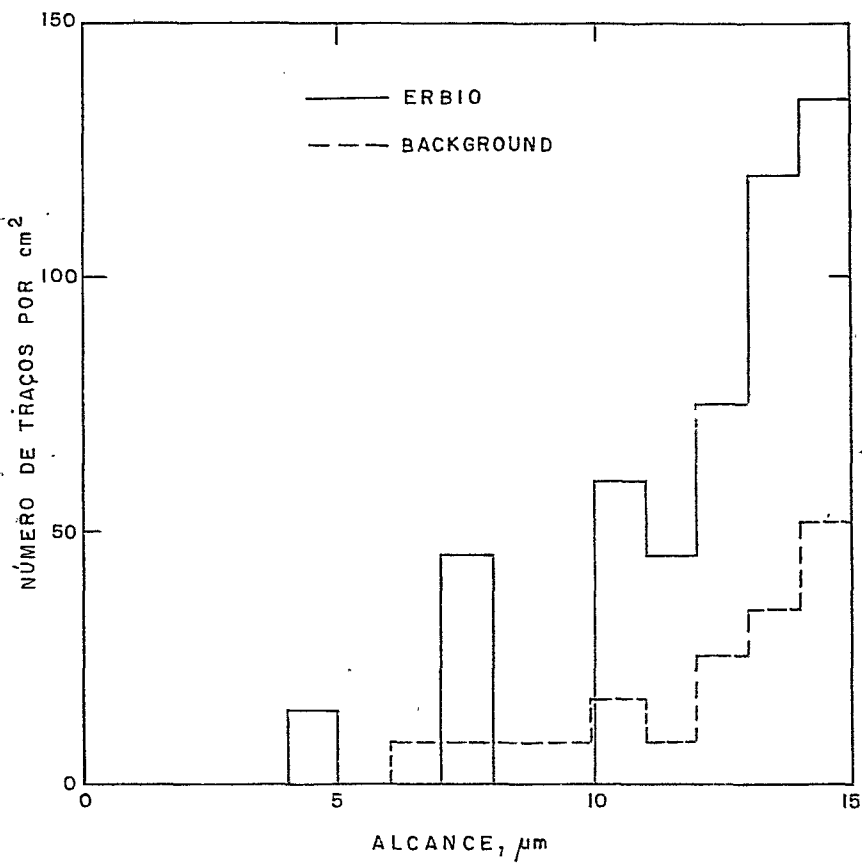


Figura 3.5.3 - Distribuição de alcance de partículas alfa na película carregada com érbio.

responde às partículas alfa no Nd^{144} (1.83 MeV) e o segundo, centrado em $\sim 9\mu\text{m}$, as do Sm^{147} (2.23 MeV). Supondo haver simetria na distribuição relativa ao Sm^{147} determinamos, para este núcleo, a densidade de 119 traços por cm^2 de emulsão. Este valor corresponde a uma contaminação de 2,3 ppm em relação ao número de átomos de Nd^{144} presentes na emulsão. Tal contaminação é compatível com o grau de pureza química do óxido de neodímio utilizado no carregamento (99,999%). Tal teor de pureza corresponderia a uma proporção máxima de 6,2 ppm de Sm^{147} em relação ao Nd^{144} . Foi atribuído ao Nd^{144} a densidade de 89 ± 42 traços por cm^2 .

Na Fig. 3.5.2 observamos uma distribuição de traços centrada em $\sim 8\mu\text{m}$ e com uma semi-largura $\sim 2\mu\text{m}$. A causa provável desta distribuição apresentar-se muito larga é a contaminação de samário na amostra de gadolínio. As partículas alfa emitidas pelo Gd^{152} possuem energia (2.14 MeV) muito próximas das do Sm^{147} (2.23 MeV). Como a resolução do sistema de medidas não é suficiente para diferenciar tais energias, as distribuições dos respectivos traços sobrepor-se-ão, resultando numa única distribuição de maior largura, tornando-se impossível determinar com exatidão a densidade de traços devido às partículas alfa do Gd^{152} . Supondo que os traços observados na região de alcances até $10\mu\text{m}$ pertencem às partículas alfa do Gd^{152} , pode-se atribuir uma densidade de 412 ± 104 traços por cm^2 de emulsão. No caso em estudo, admitindo-se uma contaminação de Sm^{147} 100 vezes menor que a máxima atribuível a partir do grau de pureza da amostra de gadolínio (99,99%), o número de traços de partícula alfa do Sm^{147} seria apenas de 46, o que não alteraria subs-

tancialmente o valor da meia vida do Gd^{152} .

Na Fig. 3.5.3, observamos uma distribuição em torno de $8\mu m$ devido, possivelmente, à contaminação da amostra de Er - bio por Sm^{147} . Devido a este fato e à baixa população de traços que poderiam ser atribuídos às partículas alfa do Er^{162} (centrado em $\sim 5\mu m$), nada podemos afirmar a respeito desses traços. Neste caso, é unicamente possível estimar um limite inferior para a meia vida.

Conhecendo-se o número de traços por unidade de área correspondente à energia das partículas alfa emitidas, calculamos as meias vidas usando a expressão (3.5.2). Os resultados são apresentados na Tab. 3.5.1.

Tabela 3.5.1 - Dados experimentais concernentes à determinação das meias vidas de atividade alfa de diferentes elementos de terras raras.

Isótopo	Densidade de átomos, cm^{-2}	Tempo de exposição, ano	Densidade de traços, cm^{-2}	Meia vida ano
Nd^{144}	1.9×10^{18}	4,11	89 ± 42	$(6.1 \pm 2.9) \times 10^{16}$
Gd^{152}	3.6×10^{16}	3,52	412 ± 104	$(2.1 \pm 0.4) \times 10^{14}$
Er^{162}	1.6×10^{16}	4.11	15 ± 15	$> 1.5 \times 10^{15}$

3.6 - DISCUSSÃO DOS RESULTADOS

3.6.1 - Neodímio

Dos núclídeos cujas meias vidas investigamos, somente

o Nd^{144} foi mais vezes estudado por outros pesquisadores. Na Tab. 3.6.1.1 são apresentados os resultados obtidos por diferentes métodos experimentais.

Tabela 3.6.1.1 - Resultados de medidas de meia vida do Nd^{144} .

Autores	Ano	Método Experimental	Meia Vida (ano)	Ref.
Porschen e Riezler	1954	Emulsão Nuclear Impregnada (7mg-d de $\text{Nd}^{144}/\text{cm}^2$)	4.8×10^{15}	6
Waldron e colab.	1954	Emulsão Nuclear Impregnada (36.6 mg-d de $\text{Nd}^{144}/\text{cm}^2$)	1.5×10^{15}	57
Porschen e Riezler	1956	Emulsão Nuclear Impregnada (20.4mg-d de $\text{Nd}^{144}/\text{cm}^2$)	2.2×10^{15}	7
Kelly e Beard	1959	Cintilador Líquido (neodímio natural)	2×10^{13}	58
Bradley e colab.	1959	Câmara de Ionização (neodímio enriquecido)	$>1.8 \times 10^{16}$	13
McFarlane e Kolman	1961	Câmara de Ionização (neodímio enriquecido)	$(2.0 \pm 0.3) \times 10^{15}$	10
Isola e Nurmia	1965	Câmara de Ionização (neodímio enriquecido)	2.1×10^{15}	11
Isola e Nurmia	1965	Câmara de Ionização (neodímio natural)	1.9×10^{15}	11
Presente Trabalho		Emulsão Nuclear Carregada (700mg-d $\text{Nd}^{144}/\text{cm}^2$)	$(6.1 \pm 2.9) \times 10^{16}$	-

Podemos notar que as meias vidas são bastante concordantes entre si, exceto as da ref. (13) e (58). Isto indica que a meia vida do Nd^{144} está bem determinada, tendo sido recomendado o valor 2.1×10^{15} anos (30,59). Contudo, é importante tecermos alguns comentários acerca dos trabalhos (13), (58) e (11).

O valor apresentado por Kelly e Beard⁽⁵⁸⁾ é bastante inferior aos dos demais autores. Possivelmente tal resultado seja devido à contaminação da amostra de neodímio por samário e não ao tipo de detetor por eles utilizado. Bradley e colaboradores⁽¹³⁾, não observando atividade alfa no intervalo de energia entre 1.2 a 2.6 MeV, estabeleceram um limite inferior da meia vida do Nd^{144} . Isola e Nurmia⁽¹¹⁾, estimulados por este último resultado e devido a cálculos teóricos feitos anteriormente por Nurmia⁽⁶⁰⁾, que indicavam ter o Nd^{144} uma meia vida de 10^{16} anos, tentaram confirmar este valor. Contudo, os resultados encontrados confirmaram os já obtidos por outros autores, permanecendo assim inexplicada a discrepância entre os valores teóricos e experimental.

No presente trabalho, utilizou-se uma técnica de emulsões nucleares até então não empregada na determinação da meia vida do Nd^{144} e uma exposição (mg-dias de Nd^{144}/cm^2 muito maior que as usadas em medidas anteriores que empregaram este tipo de detetor, como pode ser visto na Tab. 3.6.1.1. Como o número de eventos observados é proporcional à exposição total, é de se esperar que a estatística de eventos no presente trabalho seja melhor que a das medidas anteriores. Foi encontrado um valor 30 vezes maior que o recomendado para a meia vida do Nd^{144} . Contudo, este resultado está em boa concordância com o valor teórico calculado no Capítulo I. Tais valores são apresentados na Tabela 3.6.1.2. É conveniente que no futuro se repita esta experiência usando amostras de diferentes graus de pureza e possivelmente de diferentes procedências para que se confirme este resultado.

TABELA 3.6.1.2 - Comparação entre as meias vidas experimental e teórica para o Nd^{144} e Gd^{152} determinadas no presente trabalho.

Núcleo	Q_{ef} (MeV)	Meia Vida Teórica (ano)	Meia Vida Experimental (ano)	Razão Exp./Teór.
Nd^{144}	1.90	2.8×10^{16}	6.1×10^{16}	2.16
Gd^{152}	2.22	3.5×10^{14}	2.1×10^{14}	0.60

3.6.2 - Gadolínio

Dos emissores alfa naturais na região das terras raras, o Gd^{152} é o nuclídeo que tem a atividade alfa menos investigada. São encontramos 3 publicações na literatura científica que apresentaram valores concludentes para a meia vida (Tabela 3.6.2.1). O valor recomendado para a meia vida do Gd^{152} é 1.1×10^{14} anos, determinado por MacFarlane e Kohman (29,30). O resultado obtido no presente trabalho está em excelente concordância com este último, sendo maior somente por um fator 2. Verifica-se um ótimo acordo (veja Tab. 3.6.1.2) entre o valor experimental por nós determinado e a meia vida obtida teoricamente como descrito no Capítulo I.

Tabela 3.6.2.1 - Resultados de medidas de meia vida do Gd^{152} .

Autores	Ano	Método Experimental	Meia Vida (ano)	Ref.
Riezler e Kawn	1959	Emulsão Nuclear Impregnada (5.1 mg-d de Gd^{152})	9.5×10^{14}	9
MacFarlane e Kohman	1961	Câmara de Ionização (gadolínio enriquecido)	$(1.08 \pm 0.08) \times 10^{14}$	10
Kawn	1968	Emulsão Nuclear	10^{15}	12
Presente trabalho		Emulsão Nuclear Carregada (72 mg-d de Gd^{152})	$(2.1 \pm 0.4) \times 10^{14}$	—

3.6.3 - Érbio

As tentativas de medir a meia vida do Er^{162} não obtiveram sucesso. Porschen e Riezler⁽⁷⁾, utilizando emulsões nucleares e érbio natural, não constataram indícios de que algum dos seus isótopos fosse emissor alfa. Com Er^{162} enriquecido a 14.1% e através de uma câmara de ionização, Bradley e colaboradores⁽¹³⁾ também não obtiveram resultados positivos. Nenhum evento foi observado no intervalo de energia de 1.4 a 2.9 MeV, sendo assim estabelecido o limite inferior de 10^{15} anos para a meia vida deste isótopo. No presente trabalho não foi possível atribuir ao érbio nenhum dos grupos de traços observados na emulsão nuclear. Isto nos levou também a uma determinação de um limite inferior (1.5×10^{15} anos) para a meia vida do isótopo Er^{162} . (Este limite é de fato inferior à meia vida determinada

teoricamente no Capítulo I.) O fato de termos usado amostras de érbio natural dificultou esta medida, uma vez que o isótopo ^{162}Er é o de menor abundância (0.14%). É oportuno lembrar neste ponto que o Er^{162} teoricamente é dos isótopos do érbio o mais provável emissor alfa natural, como já foi anteriormente salientado na Seção 1.4.

3.7 - CONCLUSÃO

No presente trabalho determinou-se as meias vidas de desintegração alfa para os isótopos Nd^{144} , Gd^{152} e Er^{162} , utilizando a técnica de carregamento em emulsões nucleares. Com exceção do Er^{162} , onde só foi possível estabelecer um limite inferior para a meia vida, os resultados foram comparados com os obtidos teoricamente através da aplicação da teoria de penetração de barreira à desintegração alfa. Apesar das incertezas nos valores das meias vidas obtidos experimentalmente, e do valor teórico ser função do modelo nuclear adotado, o acordo foi excelente. Contudo, o valor experimental da meia vida do Nd^{144} por nós determinado difere daqueles obtidos por outros autores.

A análise das distribuições de alcance das partículas alfa em emulsão nuclear (Fig. 3.5.1 a 3.5.3) e das incertezas que envolvem os valores das meias vidas determinadas neste trabalho, permitem concluir que não esgotamos as potencialidades da técnica de carregamento em emulsões nucleares, em medidas dessa natureza. Por exemplo, é possível obter resultados mais

precisos usando-se amostras isotopicamente enriquecidas, bem como desenvolvendo métodos que permitam determinar distorções na distribuição de alcance de partículas alfa do isótopo em estudo, devido a impurezas de Sm^{147} no óxido utilizado como amostra.

BIBLIOGRAFIA

- (1) G. Hevesy e M. Pahl, Radioactivity of Samarium, *Nature*, 130, (1932), 846.
- (2) S.G. Thompson, A. Giorso, J.O. Rasmussen, G.T. Seaborg, Alpha-Decay in Isotopes of Atomic Number Less Than 83. *Phys. Rev.*, 76, (1949), 1406.
- (3) J.O. Rasmussen Jr., S.G. Thompson, A. Giorso, Alpha Radioactivity in the 82- Neutron Region. *Phys. Rev.*, 89, (1953), 33.
- (4) D.C. Dunlavey, G.T. Seaborg, Alpha Activity of Sm^{146} as Detected with Nuclear Emulsions, *Phys. Rev.*, 92, (1953) 206.
- (5) K.S. Toth e J.O. Rasmussen, Studies of Rare Earth Alpha Emitters. *Phys. Rev.* 109, (1958), 121.
- (6) W. Porschen, W. Riezler, Natürliche Radioaktivität von Platin und Neodym. *Z. Naturforschg*, 9a, (1954), 701.
- (7) W. Porschen, W. Riezler, Sehr langlebige natürliche α -Strahler, *Z. Naturforschg*, 11a, (1956), 143.
- (8) W. Riezler, G. Kauw, Natürliche Radioaktivität von Blei 204 und die Frage einer natürlichen Aktivität von Dysprosium 156, *Z. Naturforschg*, 13a, (1958), 904.
- (9) W. Riezler, G. Kauw, Natürliche Radioaktivität von Gadolinium 152 und Hafnium 174, *Z. Naturforschg*, 14a, (1959), 196.
- (10) R.D. MacFarlane, T. Kohman, Natural Alpha Radioactivity in Medium-Heavy Elements. *Phys. Rev.*, 121 (1961), 1758.
- (11) A. Isola, M. Nurmiä, Alpha Activity of Natural Neodymium, *Z. Naturforschg*, 20a, (1965), 541.
- (12) G. Kauw, Natural α -radiation of isotopes, collected on nuclear photofilm, *Chemical Abstracts*, 69 (1968), 9546.
- (13) F.J. Bradley, G.P. Bowman, J.P. Kurbatov, Search of α Ac-

- tivity in Nd^{144} , Dy^{156} and Er^{162} , *Bull. Am. Phys. Soc.*, 9, (1964), 9.
- (14) M.M. de Araujo Penna, Atividade Alfa do ^{209}Bi , Tese de Mestrado. CBPF (1970).
H.G. de Carvalho, M.M. de Araujo Penna, Alpha Activity of ^{209}Bi , *Lettere al Nuovo Cimento*, 3, (1972), 720.
- (15) R.D. Evans, The Atomic Nucleus, 12^a ed., McGraw-Hill, (1969), cap. 16.
- (16) K.N. Mukhin, Nuclear Physics, MacDonald Technical and Scientific, (1970), sec. 2.2.
- (17) I. Perlman e J.O. Rasmussen, Alpha Radioactivity. Handbuch der Physik, Springer, (1957), 109.
- (18) A.H. Wapstra, N.B. Gove, Atomic Mass Table, *Nuclear Data Tables*, 9, (1971), 265.
- (19) J.L. Powell, B. Crasemann, Quantum Mechanics, 2^a ed. Addison-Wesley (1961), cap. 5.
- (20) J.O. Rasmussen, Alpha Decay Barrier Penetrabilities with an Exponential Nuclear Potential: Odd-Mass Nuclei, *Phys. Rev.* 115, (1959), 1675.
- (21) H.A. Bethe, Nuclear Physics Part B, *Rev. Mod. Phys.* 9, (1937), 16.
- (22) B.L. Cohen, Theory of Natural Alpha-Radioactivity, *Phys. Rev.*, 80, (1950), 105.
- (23) H.A. Enge, Introduction to Nuclear Physics, Addison-Wesley, (1966), cap. 10.
- (24) I. Perlman e T.J. Ypsilantis, Consistency of Nuclear Radii of Even-Even Nuclei from Alpha Decay Theory, *Phys. Rev.*, 79, (1950), 30.
- (25) I. Kaplan, On the Systematics of Even-Even Alpha Emitters, *Phys. Rev.*, 81 (1951), 962.
- (26) M.A. Preston, The Theory of Alpha-Radioactivity, *Phys. Rev.*, 71, (1947), 865.

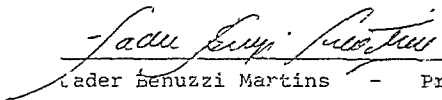
- (27) R. Present, A Note on Nuclear Radii, *Phys. Rev.*, 60, (1941), 28.
- (28) M.A. F eston, Physics of the Nucleus, 1st ed., Addison -
-Wesley, 1965), cap. 14.
- (29) C.M. Lederer, J.M. Hollander, I. Perlman, Table of Isotopes, 6th ed., John Wiley, (1967).
- (30) W. Seelmann-Eggebert, G. Pfennig, H. Münzel, Nuklidkarte, 4th ed., Gesellschaft für Kernforschung m.b.H. Karlsruhe, (1974).
- (31) J.O. Rasmussen, Alpha-Decay Barrier Penetrabilities with an Exponential Nuclear Potencial: Even-Even Nuclei, *Phys. Rev.*, 112, (1959), 1593.
- (32) A.H. Wapstra, N.B. Gove, Systematics of Separation and Decay Energies, *Nuclear Data Table*, 9, (1971), 45.
- (33) G. Hevesy, M. Pahl, Range of Radiation from Samarium, *Nature*, 131, (1933), 434.
- (34) H. Mäder, Die Eigenschaften der Samarium-Strahlung, *Z. Physik*, 88, (1934), 601.
- (35) D. Lyford, G.A. Bearden, Radioactivity of Samarium, *Phys. Rev.*, 45, (1934), 743.
- (36) W.F. Libby, Radioactivity of Neodymium and Samarium, *Phys. Rev.*, 46, (1934), 196.
- (37) H.J. Taylor, Radioactivity of Samarium, *Nature*, 136, (1935), 719.
- (38) R. Hosemann, Die Radioaktivität der Samariums, *Z. Physik*, 99, (1936) 405.
- (39) L. Lewin, Ranges of Particles Emitted by Samarium, *Nature*, 138, (1936), 326.
- (40) T.R. Wilkins, A.J. Dempster, The Radioactive Isotope of Samarium, *Phys. Rev.*, 54, (1938), 315.
- (41) F. Guer, C.M.G. Lattes, Radioactivity of Samarium, *Nature* 158, (1946), 197.

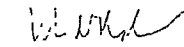
- (42) G. Beard, M.L. Wudenbeck, Natural Radioactivity of ^{147}Sm , *Phys. Rev.*, 95, (1954), 1245.
- (43) G.E. Leslie, Radioactivity of Samarium, *Nucl. Sci. Abstr.*, 10, (1956), 1099.
- (44) G.P. Beard, W.H. Kelly, The Use of a Samarium Loaded Liquid Scintillator for the Determination of the Half-Life of Sm^{147} , *Nucl. Phys.*, 8, (1958), 207.
- (45) M. Karras, On the Natural Radioactivity of Samarium, *Ann. Acad. Sci. Fennicae*, 65, (1960), 1.
- (46) M. Karras, M. Nurmiä, Natural Radioactivity of Samarium and Neodymium, *Nature*, 185, (1960), 601.
- (47) P.M. Wright, E.P. Steinberg, L.E. Glendenin, Half-Life of Samarium-147, *Phys. Rev.*, 123 (1961), 205.
- (48) D. Donhoff, Determination of the half Life of the Naturally Occurring Radioactive Nuclides Sm^{147} and Lu^{176} with Liquid Scintillators, *Nucl. Phys.*, 50, (1964), 489.
- (49) K. Valiä, J. Aaltonen, G. Graeffe M. Nurmiä, R. Polyhoenen, *Ann. Acad. Sci. Fennicae*, 177, (1965), 1.
- (50) M.C. Gupta, R.D. MacFarlane, The Natural Alpha Radioactivity of Samarium, *J. Inorg. Nucl. Chem.*, 32, (1970) 3425.
- (51) H.G. de Carvalho e M. Muchnik, The Loading of Nuclear Emulsion with Bismuth, *Nucl. Instr. Meth.*, 15, (1962), 101.
- (52) V.H. Barkas, Nuclear Research Emulsions, Academic Press, (1963).
- (53) P. Demers, Ionographie - Les Émulsions Nucléaires, Les Presses Universitaires de Montreal, (1958).
- (54) H.G. de Carvalho, Progress in Nuclear Techniques and Instrumentation, North-Holland, (1965) cap. V
- (55) F.A. El-Bedewi, The Range of Protons from the Reaction $^{14}\text{N}(p)^{14}\text{C}$ in Ilford C2 Photographic Emulsion, *Proc. Phys. Soc. 51A*, (1951), 584.
- (56) S.R. Sokolov, K.D. Tolstov, Control of Scanning Efficiency

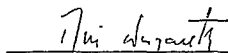
cy and Estimation of the True Number of Events, Korpusskularphotographie IV, Institut für Wissenschaftliche Photographie der Technischen Hochschule München, (1963), 468.

- (57) E.C. Waldron, V.A. Schultz. T. J. Cochran, Natural Alpha Activity of Neodymium, *Phys. Rev.*, 93, (1954), 254.
- (58) W.H. Kelly, G.B. Beard, Natural Alpha Activity of Nd^{144} , *Bull. Am. Phys. Soc.*, 4, (1959) 324.
- (59) S. Raman, $A = 144$, *Nuclear Data*, 2 (1967).
- (60) M. Nurmiä, *Nuclear Data Sheets*, Appendix, NRC 5-6-23 (1964).

Tese apresentada ao Centro Brasileiro de Pesquisas Físicas
do Conselho Nacional de Desenvolvimento Científico e Tec-
nológico, fazendo parte da Banca Examinadora os seguintes
professores:


Eder Benuzzi Martins - Presidente


Vito di Nàpoli


Rui Alberto Mira dos Santos Nazareth

Rio de Janeiro, 24 de outubro de 1978