

EMIL DE LIMA MEDEIROS

CONSTANTE DE DESINTEGRAÇÃO DO URÂNIO-238 POR FISSÃO ESPONTÂNEA
REDETERMINADA PELO MÉTODO DE TRAÇOS EM VIDRO

Tese de

MESTRADO

CENTRO BRASILEIRO DE PESQUISAS FÍSICAS

Rio de Janeiro

- 1978 -

AGRADECIMENTOS

- Ao Prof. Jader Benuzzi Martins, pela orientação segura e permanente, e pelo estímulo a mim dispensado nas etapas mais difíceis da realização deste trabalho;

- Ao Prof. e amigo Odilon Antônio Paula Tavares, pela ajuda inestimável no trabalho experimental, pela dedicação com que leu e sugeriu modificações em todo o texto, e pelo espírito de equipe com que encara o trabalho científico;

- Ao Prof. Franco Salvetti, da Universidade de Roma, pela gentileza em colocar à minha disposição os filmes de urânio;

- Ao Prof. Hervaldo Guimarães de Carvalho, de quem partiu a idéia deste trabalho;

- Ao Prof. Vito di Napoli, da Universidade de Roma, pelas discussões elucidativas mantidas durante sua permanência no CBPF;

- À Maria Júlia Moraes Toledo de Campos, do Instituto de Radioproteção e Dosimetria, pelo esmero nas medidas realizadas com a microbalança;

- À Marcia de Andrade Nogueira, pelo carinho com que leu e fez correções em todo o texto, e pelo incentivo nos momentos de desânimo;

- Aos bolsistas de Iniciação Científica, Fernando e Ney, da Universidade Federal Fluminense, pela colaboração em algumas etapas do trabalho experimental;

- À Helena de Souza Ciccarino, pela paciência e carinho dedicados à composição gráfica deste trabalho;

- À calculista Celeste Aída Brito Lopes, pela eficiente colaboração;

- Às microscopistas Hilda Vieira da Silva, Luiza dos Reis Rosa e Lésia Hryhorczuk pela excelente qualidade de seus trabalhos;

- Aos colegas João de Deus, Cristina, João Lúcio, Ana Maria, Mioco, Elizabeth, Poledna, Rubens, Paulinho, Mário Assad e Raimundo, do CBPF; aos amigos Paulo Cunha e Tom, do IRD; aos professores Chung Kai Cheong e Luiz Tauhata, do CBPF e aos colegas Sergio Velloso e Adel Quaresma, do Instituto Militar de Engenharia, pela colaboração e estímulo.

- Ao Centro Brasileiro de Pesquisas Físicas que me proporcionou oportunidade de estudos e desenvolvimento científico.

- Ao Conselho Nacional de Desenvolvimento Científico e Tecnológico-CNPq, pela ajuda financeira durante os anos de minha formação científica.

RESUMO

A constante de desintegração do U^{238} por fissão espontânea foi redeterminada usando vidro como detetor de fragmentos de fissão. Um filme de urânio natural (UO_3) de $0,185 \text{ mg de } U/cm^2$ preparado por métodos químicos sobre uma lâmina de vidro foi utilizado numa experiência de longo tempo de exposição (cerca de 16 anos). As boas condições de preparação e armazenamento da amostra (ausência de reticulados, grande estabilidade, uniformidade e perfeita aderência do óxido de urânio ao vidro; não ocorrência de "fading", de origem térmica) permitiram observar, após o ataque químico, traços de fragmentos de fissão com ótima discernibilidade.

Nas condições do presente trabalho, a distribuição de diâmetro obtida para os traços circulares não apresentou qualquer indicação sobre uma possível emissão espontânea pelo U^{238} de íons de massa inferior a de fragmentos da fissão ordinária, como tem sido recentemente admitida, tanto experimental como teoricamente, por alguns autores. Um estudo detalhado das propriedades de detecção de partículas carregadas pesadas mostrou que o vidro utilizado nas condições da presente experiência não é um detetor apropriado para a investigação de um fenômeno desta natureza.

O resultado obtido para a constante de desintegração do U^{238} por fissão espontânea foi de $(9,6 \pm 1,0) \times 10^{-17} \text{ ano}^{-1}$, o qual está em bom acordo com os valores encontrados por outros autores que utilizaram vidro e também outros métodos experimentais.

SUMÁRIO

	<u>Pág.</u>
AGRADECIMENTOS	iii
RESUMO	v
LISTA DE FIGURAS	viii
LISTA DE TABELAS	x
INTRODUÇÃO	1
<u>CAPÍTULO I</u> - ASPECTOS FENOMENOLÓGICOS E TEÓRICOS DA FISSÃO NUCLEAR..	18
1.1 - Introdução	18
1.2 - O Modelo da Gota Líquida	22
1.3 - Meia-Vida de Fissão Espontânea do U^{238}	32
<u>CAPÍTULO II</u> - PROCEDIMENTO EXPERIMENTAL	39
2.1 - Introdução	39
2.2 - Preparação e Armazenamento dos Filmes	40
2.3 - Fundamentos do Método de Determinação da Taxa de Fissão Espontânea do U^{238} por Detecção de Fragmentos de Fissão em Vidro	41
2.4 - Determinação de N (número de átomos de urânio por centímetro quadrado de filme)	44
2.4.1 - Contagem de Traços de Partículas Alfa do Urânio em Emulsão Nuclear	44
2.4.2 - Método da Simples Pesagem	49
2.5 - Determinação da Densidade de Traços de Fragmentos de Fissão Observados no Vidro	51
2.6 - Fissão Induzida por Neutrons de Laboratório e Raios Cômicos	54
2.7 - Determinação das Eficiências	57
2.7.1 - Eficiências de Detecção de Traços de Fragmentos de Fissão em Vidro	57

2.7.2 - Eficiências de Observação de Traços	60
<u>CAPÍTULO III</u> - RESULTADOS EXPERIMENTAIS. DISCUSSÕES	62
3.1 - Introdução	62
3.2 - Resultados Experimentais	63
3.2.1 - Número de Átomos de Urânio por Centímetro Quadrado	63
3.2.2 - Eficiências de Detecção e de Observação	68
3.2.3 - Densidades de Traços de Fragmentos de Fis- são Observados no Vidro	70
3.3 - Constante de Desintegração do U^{238} por Fissão Espon- tânea	73
3.4 - Análise de Erros	78
3.4.1 - Erros Sistemáticos	78
3.4.2 - Erros Estatísticos	80
3.5 - Conclusões	81
<u>APÊNDICE A</u> - PREPARAÇÃO DE FILMES DE URÂNIO	83
<u>APÊNDICE B</u> - O VIDRO COMO DETETOR DE FRAGMENTOS DE FISSÃO	85
B.1 - Histórico	85
B.2 - Traços de Partículas Carregadas em Vidro	86
B.2.1 - Formação do Traço e Ataque Químico	86
B.2.2 - Aspecto do Traço e Condições de Ataque Quí- mico	88
B.2.3 - Geometria do Traço	89
B.2.4 - Eficiência de Detecção	91
B.2.5 - Sensibilidade dos Detetores	94
B.2.6 - Annealing	96
<u>BIBLIOGRAFIA</u>	98

LISTA DE FIGURAS

<u>Fig.</u>		<u>Pág.</u>
I	- Distribuição dos resultados experimentais obtidos para λ_f	4
1.1.1	- Distribuição dos números de massa dos fragmentos da fissão espontânea do U^{238}	19
1.1.2	- Probabilidade de fissão induzida por neutrons em isótopos do urânio	20
1.1.3	- Seções de choque de fotofissão para isótopos do urânio	21
1.2.1	- Barreira de fissão para fragmentos arbitrários e fragmentos com camadas fechadas	31
1.2.2	- Barreira de fissão para núcleos par-par e para núcleos de número de massa ímpar	32
1.3.1	- Meia-vida de fissão espontânea de núclídeos par-par versus Z^2/A	36
2.4.1.1	- Geometria do traço de partícula alfa em emulsão nuclear	48
2.4.2.1	- Massa do sistema vidro-filme de urânio em função do tempo de imersão no ácido nítrico	50
2.7.1	- Determinação experimental das eficiências de detecção de traços de fragmentos de fissão em vidro ; (a) arranjo experimental; (b) ângulos críticos de detecção; (c) regiões da superfície do vidro onde traços são observados como elípticos e circulares.....	58
3.2.1.1	- Distribuição de ângulo de profundidade de traços de partículas alfa do urânio em emulsão nuclear.....	66

3.2.1.2	- Distribuição de alcance de partículas alfa do urânio em emulsão nuclear	67
3.2.3.1	- Distribuição de diâmetro de traços de fragmentos de fissão em vidro comum	71
B.2.3.1	- Geometria de traços de partículas carregadas, em sólidos isolantes, para o caso em que V_G e V_T são constantes - (a) partícula incidente normalmente; (b) partícula incidente em um ângulo de profundidade ϕ	90
B.2.4.1	- Geometria de revelação de traços de partículas carregadas em sólidos isolantes quando V_G e V_T são constantes - (a) partícula incidente em um ângulo de profundidade ϕ menor que θ ; (b) o ângulo crítico, ϕ_c , acima do qual os traços são revelados é $\text{arc sen}(V_G/V_T)$; (c) ângulo sólido Ω no qual as partículas são reveladas	92
B.2.5.1	- Ionização primária de diversos íons no vidro soda-lime em função da energia	95

LISTA DE TABELAS

<u>Tab.</u>		<u>Pág.</u>
I	- Compilação dos resultados experimentais obtidos para a constante de desintegração do U^{238} por fissão espontânea	2
1.2.1	- Comparação de limiares de fissão observados com os calculados pelo modelo da gota líquida	28
3.2.1.1	- Resultados das experiências de simples pesagem e medida da atividade alfa do urânio com emulsão nuclear	68
3.2.2.1	- Ângulos críticos e eficiências de detecção e de observação de traços de fragmentos de fissão em vidro comum	70
3.2.3.1	- Número e densidade de traços de fragmentos de fissão observados na lâmina de vidro	72
3.3.1	- Resultados para λ_f^{238} obtidos por contagem de traços de fragmentos de fissão em vidro comum	74
3.3.2	- Comparação do resultado experimental encontrado para λ_f^{238} no presente trabalho com os obtidos por outros autores	77

INTRODUÇÃO

O objetivo do presente trabalho é a determinação experimental da constante de desintegração do U^{238} por fissão espontânea. Apesar da existência de um grande número de medidas sobre o valor desta grandeza (1-40), há uma discrepância considerável entre os valores obtidos, como pode ser visto na Tab. I. Examinando-a mais detalhadamente, verificamos que os valores da constante de desintegração 1,7, 28, 22, 23 e 693 (em unidades de 10^{-17} ano $^{-1}$) podem ser desprezados numa análise global dos resultados existentes, em virtude de sua baixa frequência e do grande afastamento que apresentam em relação à maioria dos resultados experimentais. A construção de um histograma com os demais valores da constante de desintegração, λ_f , nos mostra claramente a ocorrência de três picos, correspondentes aos seguintes valores de λ_f : $6,9 \times 10^{-17}$ ano $^{-1}$, $8,7 \times 10^{-17}$ ano $^{-1}$ e $11,8 \times 10^{-17}$ ano $^{-1}$ (Fig. I). Mesmo considerando como mais prováveis apenas os dois primeiros resultados, resulta uma incerteza de 21 ou 26% em λ_f , dependendo de qual valor for escolhido como o correto. A motivação para o presente trabalho veio da existência desta incerteza, já que um melhor conhecimento da constante de desintegração do U^{238} por fissão espontânea é de grande importância em diversos campos científicos, como por exemplo em Geocronologia, Geofísica e Arqueologia.

O primeiro trabalho sobre a fissão nuclear* foi publica

*Entende-se por fissão nuclear o processo no qual ocorre a divisão do núcleo em dois ou mais fragmentos de massas comparáveis.

TABELA I - Compilação dos resultados experimentais obtidos para a constante de desintegração do U^{238} por fissão espontânea.

AUTORES	ANO	MÉTODO EXPERIMENTAL	CONSTANTE DE DESINTEGRAÇÃO (10 ⁻¹⁷ ano ⁻¹)	MEIA-VIDA (10 ¹⁵ anos)	REF.
Libby	1939	Radioquímica	< 693	> 0,1	1
Petrzhak et al.	1940	Câmara de Ionização	1,7 ± 0,4	40 ± 10	2
Maurer et al.	1943	Contador BF ₃ com parafina	28 ± 7	2,5 ± 0,6	3
Pose	1943	Contador BF ₃ com parafina	22 ± 2	3,2 ± 0,3	4
Scharff et al.	1946	Câmara de Ionização	23	3,0 ±	5
Perfi lov	1947	Emulsão Nuclear	5,3 ± 0,8	13 ± 2	6
Whitehouse et al.	1950	Câmara de Ionização	8,38 ± 0,52	8,3 ± 0,5	7
Segrè	1952	Câmara de Ionização	8,60 ± 0,29	8,04 ± 0,30	8
Hoff Lu et al.	1952	Câmara de Ionização	1,7 ± 0,2	41 ± 5	9
Kuroda et al.	1954	Radioquímica	11,7 ± 1,2	5,9 ± 0,6	10
Kuroda et al.	1954	Radioquímica	11,4 ± 2,8	6,1 ± 1,5	10
Podgurskaja et al	1955	Câmara de Ionização	6,9 ± 1,0	10,0 ± 1,5	11
Kuroda et al.	1956	Radioquímica	6,7 ± 0,7	10,3 ± 1,0	12
Parker et al.	1956	Radioquímica	8,3 ± 0,8	8,4 ± 0,8	13
Kuroda et al.	1957	Radioquímica	11,7 ± 0,8	5,9 ± 0,4	14
Parker et al.	1958	Radioquímica	8,7 ± 0,5	8,0 ± 0,5	15
Kuz'minov et al.	1959	Contador BF ₃ com parafina	10,7 ± 0,5	6,5 ± 0,3	16
Gerling et al.	1959	Radioquímica	11,9 ± 1,0	5,8 ± 0,5	17
de Barros et al.	1963	Emulsão Nuclear	8,2 ± 0,5	8,5 ± 0,5	18
Fleischer et al.	1964	Radioquímica	6,9 ± 0,2	10,0 ± 0,3	19

(continua)

TABELA I - (continuação)

Fleischer et al.	1964	Mica	6,6 ± 0,8	10,5 ± 1,3	19
Rao et al.	1966	Radioquímica	7,8 ± 0,9	8,88 ± 1,03	20
Spadavecchia et al.	1967	Spinner	8,42 ± 0,10	8,23 ± 0,10	21
Ishimori et al.	1967	Radioquímica	9,64 ± 0,05	7,191 ± 0,158	22
Roberts et al.	1968	Mica	7,03 ± 0,11	9,85 ± 0,15	23
Shukoljukov et al.	1968	Radioquímica	10,3 ± 0,5	6,7 ± 0,3	24
von Gunten	1969	Radioquímica	8,66 ± 0,22	8,0 ± 0,2	25
Galliker et al.	1970	Spinner	8,46 ± 0,06	8,19 ± 0,06	26
Storzer	1970	Vidro	8,49 ± 0,76	8,16 ± 0,73	27
Kleeman et al.	1971	Lexan	6,8 ± 0,6	10,2 ± 0,9	28
Leme et al.	1971	Mica	7,30 ± 0,16	9,5 ± 0,2	29
Condé et al.	1971	Câmara de Ionização	6,3 ± 1,2	11 ± 2	30
Nishimura	1972	Minerais	7,0 ± 0,3	9,9 ± 0,4	31
Gentner et al.	1972	Detetores Sólidos de Traços	8,4	8,3.	32
Khan et al.	1973	Mica	6,82 ± 0,55	10,2 ± 0,8	33
Suzuki	1973	Detetores Sólidos de Traços	7,5	9,2	34
Ivanov et al.	1975	Mica	7,12 ± 0,32	9,74 ± 0,44	35
Emma et al.	1975	Vidro	7,2 ± 0,2	9,6 ± 0,3	36
Wagner et al.	1975	Vidro	8,7 ± 0,6	8,0 ± 0,6	37
de Carvalho et al.	1975	Emulsão Nuclear	11,6 ± 0,8	6,0 ± 0,4	38
Thiel et al.	1976	Vidro	8,57 ± 0,42	8,09 ± 0,40	39
D.M.C. Rizzo	1977	Câmara de Ionização (U ₃ O ₈ em suspensão)	10,24 ± 0,22	6,77 ± 0,15	40

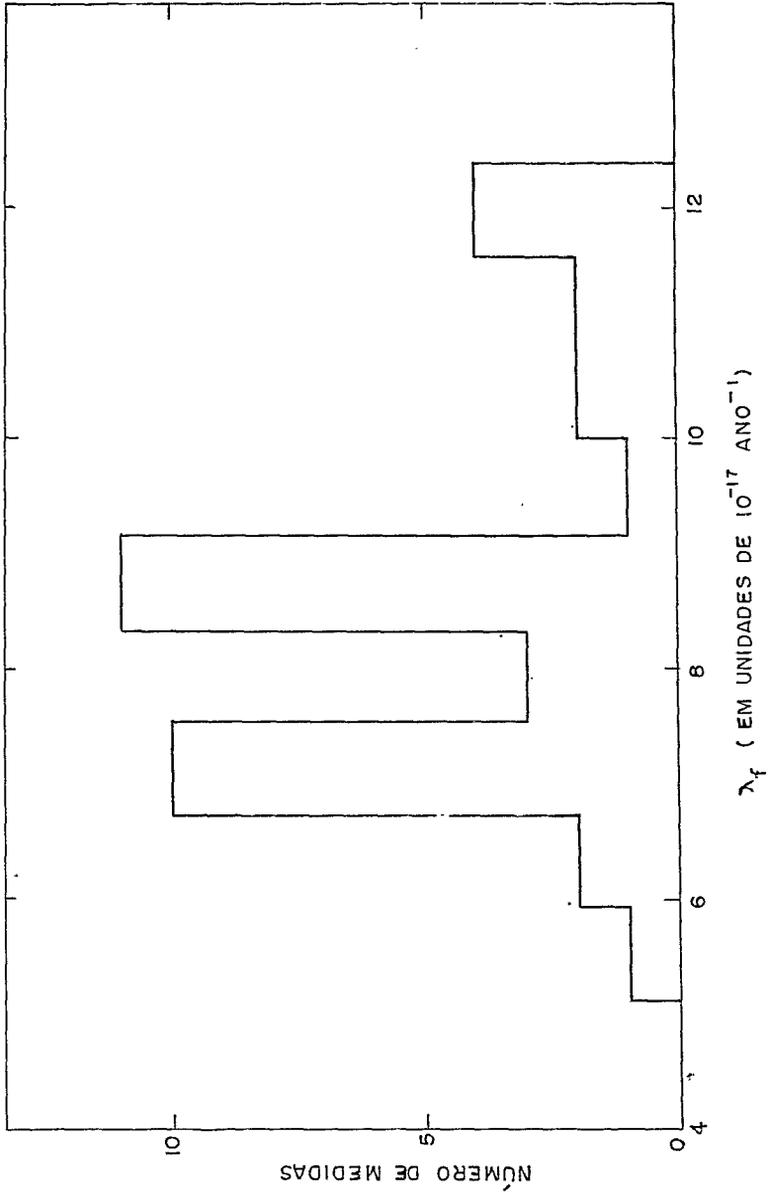
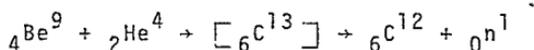


Figura I - Distribuição dos resultados experimentais obtidos para λ_f .

do em janeiro de 1939, quando Hahn e Strassmann⁽⁴¹⁾ anunciaram haver induzido uma reação deste tipo no urânio, através do bombardeamento deste elemento com neutrons. O fenômeno da fissão espontânea, entretanto, só foi observado em meados de 1940 por Petrzhak e Flerov⁽²⁾, que foram os primeiros a determinar a meia-vida do urânio para este processo de desintegração. Para um melhor entendimento dos estudos e experiências que culminaram na descoberta deste fenômeno*, resumiremos alguns aspectos experimentais da pesquisa em física nuclear na década de trinta.

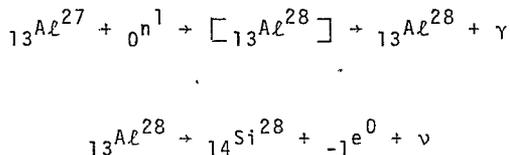
Após a descoberta do neutron em 1932 por Chadwick⁽⁴⁹⁾, e a descoberta da radioatividade artificial em 1934 por Curie e Joliot⁽⁵⁰⁾, Fermi tentou produzir radioatividade artificial com neutrons⁽⁵¹⁾. A grande vantagem do uso de neutrons como projéteis estava na ausência de carga elétrica, não sendo portanto repelidos pelo núcleo alvo. Os neutrons originavam-se quando o berílio era bombardeado por partículas alfa provenientes do rádio ou do radônio, ocorrendo então a reação:



Se os neutrons fossem capturados por um elemento qualquer, seria obtida uma reação (n,γ) que usualmente dá um produto emissor de elétron. Este fato sugeriu a possibilidade de produzir elementos de número atômico mais elevado que o do elemento alvo. Fermi e seus colaboradores haviam observado que a reação (n,γ) tinha um maior rendimento quando os neutrons, antes de

* Existe uma grande quantidade de publicações sobre a descoberta da fissão nuclear. Para uma descrição mais detalhada, ver por exemplo as referências (42), (43), (44), (45), (46), (47) e (48).

atingirem o alvo, eram desacelerados pela passagem através de pa-
rafina. Usando neutrons lentos eles conseguiram transformar um
elemento químico no seu vizinho de número atômico mais eleva-
do (52), um processo que pode ser ilustrado, para um caso particu-
lar, como:



Fermi teve então a idéia de bombardear o urânio com neutrons, nu-
ma tentativa de produzir elementos com número atômico superior ao
do urânio (53). A procura de tais elementos foi o objetivo princi-
pal de uma série de pesquisas desenvolvidas em vários laborató-
rios da Europa, cujo produto secundário foi a descoberta da fis-
são. Para entendermos melhor como isso ocorreu, consideremos com
certo detalhe o método experimental com o qual os elementos ra-
dioativos podem ser separados dos elementos estáveis.

Quando um elemento radioativo é formado numa reação nu-
clear, sua quantidade é geralmente tão pequena que ele não pode
ser separado por métodos químicos ordinários. A separação é fei-
ta frequentemente com a ajuda de um carregador, o qual é uma subs-
tância estável com propriedades químicas semelhantes àquelas do
elemento radioativo. Este pertence ao mesmo subgrupo da tabela
periódica que o carregador, e portanto ambos se comportam de ma-
neira semelhante nas reações químicas. Quando uma quantidade
apreciável (10 a 100 mg) do carregador é adicionada a uma solu-
ção contendo o radioelemento, e se o primeiro é então precipita-

do na solução pela formação de um sal insolúvel, o radioelemento é precipitado junto. Na separação do rádio de outros membros da série do urânio, o bário serve como carregador. Os cloretos de bário e rádio são precipitados juntos em soluções concentradas de ácido clorídrico. O precipitado é dissolvido em água, e o bário e o rádio podem ser separados por cristalização fracionada, o rádio sendo concentrado na primeira fração de cristais que aparece.

Nas primeiras experiências sobre a formação dos elementos transurânicos, houve uma dificuldade na análise dos produtos resultantes do bombardeamento do urânio com neutrons. Além dos elementos que pareciam ser elementos transurânicos, haviam quatro que aparentemente eram isótopos β -radioativos do rádio porque eram precipitados com o bário quando este era usado como carregador. Os produtos do decaimento destes núclídeos pareciam ser isótopos do actínio porque eram precipitados com o lantânio, o carregador para o actínio. Estes resultados davam origem a duas questões importantes. Em primeiro lugar, para que um isótopo do rádio fosse produzido pelo bombardeamento do urânio por neutrons, era necessário a ocorrência de uma reação $(n, 2\alpha)$, mas esta é altamente improvável para neutrons de baixa energia. Em segundo lugar, experiências químicas exaustivas mostraram que o rádio não podia ser separado do carregador bário, nem os produtos do decaimento do rádio podiam ser separados do carregador lantânio.

Em 1939, Hahn e Strassmann⁽⁴¹⁾ realizaram uma série de experiências cuidadosas que confirmaram suas suspeitas: o "rádio" artificial não podia ser separado do bário porque na realidade ele era o próprio bário; da mesma forma, os isótopos do "actínio" eram realmente isótopos do lantânio. Além disso, um dos

isótopos do bário foi identificado como o nuclídeo previamente conhecido, Ba^{139} , por ter a mesma meia-vida de 86 minutos; semelhantemente, um dos isótopos do lantânio foi identificado como sendo o La^{140} , que tem uma meia-vida de 40 horas. Hahn e Strassmann encontraram também, como produtos do bombardeamento do urânio por neutrons, isótopos do criptônio ($Z = 36$), estrôncio ($Z = 38$) e xenônio ($Z = 54$). Estava claro da evidência química que os núcleos de urânio, quando bombardeados com neutrons, podiam se dividir em dois núcleos de peso atômico intermediário.

Meitner e Frisch⁽⁵⁴⁾, realizando experiências semelhantes, confirmaram esses resultados e chamaram o novo fenômeno de *fissão nuclear*. Eles mostraram também que a fissão do urânio por neutrons lentos libera uma quantidade de energia dezenas de vezes maior do que a liberada em qualquer outra reação nuclear. Além disso, os produtos da fissão seriam núcleos excitados que poderiam emitir neutrons com alta probabilidade, hipótese confirmada logo depois por von Halban e colaboradores⁽⁵⁵⁾. A emissão, em média, de 2,5 neutrons na fissão de um núcleo de urânio por neutrons lentos, abriu a possibilidade de uma reação nuclear em cadeia na qual esses neutrons produzem mais fissões e mais neutrons, e assim por diante. Foi exatamente este aspecto do novo fenômeno que incentivou os físicos de todo o mundo a estudá-lo intensamente.

Imediatamente após o aparecimento do famoso artigo de Hahn e Strassmann⁽⁴¹⁾, Meitner e Frisch⁽⁵⁴⁾ sugeriram uma explicação teórica simples para o fenômeno recentemente descoberto. Eles argumentavam que, de maneira análoga à divisão de uma gota de líquido ao receber certa quantidade de energia, também um núcleo se dividiria em dois fragmentos quando recebesse determina-

da energia de ativação. Entretanto, as primeiras abordagens teóricas realmente quantitativas sobre o fenômeno da fissão nuclear foram dadas por Bohr e Wheeler⁽⁵⁶⁾, num artigo em que as idéias básicas de Meitner e Frisch são retomadas de modo bem mais detalhado. Neste trabalho os autores já tinham sugerido a possibilidade de que o urânio viesse a sofrer fissão espontaneamente, estimando teoricamente um valor aproximado de 10^{-22} ano⁻¹ para a constante de desintegração deste processo.

Em maio de 1939, na Universidade da Califórnia, Libby⁽¹⁾ fazia as primeiras tentativas para detetar a fissão espontânea de núcleos de urânio e tório, usando dois métodos diferentes. Um dos métodos consistia em tentar separar iodo radioativo de outros produtos da fissão espontânea de uma amostra inicial de 200 gramas de nitrato de uranila; entretanto, Libby não obteve sucesso por não conseguir detetar qualquer atividade residual. O outro método baseava-se na procura de neutrons emitidos na fissão do urânio; usando-se como detetor um contador BF₃ envolvido com parafina, não foi possível registrar a presença de neutrons. Partindo dos resultados negativos de suas experiências, encontrados também para o tório, Libby concluiu que a fissão espontânea desses elementos, se existisse, teria uma meia-vida maior que 10¹⁴ anos.

Enquanto isto, na União Soviética pesquisava-se a possibilidade de uma reação em cadeia no urânio natural metálico. Com este objetivo foi proposta uma experiência que consistia em observar a mudança no fluxo de neutrons produzida pela fissão, quando fontes de neutrons eram colocadas no interior de uma esfera maciça de urânio metálico. Para a realização da experiência foi construído um detetor para neutrons que seriam produzidos na

fissão do urânio, cuja sensibilidade era aproximadamente 200 vezes maior que as das câmaras de fissão ordinárias.

Nos primeiros experimentos para contagem de fragmentos de fissão⁽²⁾, foram observados pulsos mesmo na ausência de uma fonte de neutrons. O número (em média 6 por hora) e a forma destes pulsos coincidiam com aqueles observados na fissão do urânio induzida por neutrons. Numa tentativa de elucidar o aparecimento destes pulsos "*espontâneos*", foi empreendida uma série completa de experimentos de controle. Em primeiro lugar, foi levantada a hipótese que o efeito observado não estaria relacionado com a presença de urânio na câmara de ionização, mas seria causado pelo resultado de vibrações externas ou pela ocorrência de pulsos ao acaso no circuito eletrônico. Esta hipótese foi descartada, já que nenhum pulso foi observado quando não havia urânio na câmara. Uma outra suposição se baseava no fato de que os pulsos "*espontâneos*" poderiam ocorrer como um resultado da acumulação de pulsos de partículas alfa. Colocou-se então tório na câmara, numa quantidade tal que a corrente de ionização produzida pelas partículas alfa da desintegração do tório, era duas vezes maior do que a produzida pelas partículas alfa do próprio urânio. Como nenhum aumento do efeito foi observado, também essa suposição foi afastada. Flerov e Petrzhak⁽²⁾ sugeriram então que o fenômeno "*espontâneo*" observado poderia na realidade ter uma causa externa. A possibilidade do efeito ter sido causado por neutrons foi afastada, já que a intensidade da radiação de neutrons na câmara (originados na desintegração de núcleos leves pelas partículas alfa do urânio) era insuficiente para produzir tal efeito. Para demonstrar que os fragmentos "*espontâneos*" não eram causados por raios cósmicos, algumas medidas foram feitas

no metrô de Moscou, a uma profundidade de 50 metros. Apesar da intensidade da radiação cômica nesta profundidade ter sido reduzida cerca de 40 vezes, o efeito da fissão espontânea ainda era o mesmo que o observado na superfície. Após a realização de todas essas experiências, foi demonstrado que os pulsos observados estavam de fato relacionados com a fissão do urânio. Notou-se que este efeito era mais intenso quando a camada de óxido de urânio colocada na câmara de ionização era mais espessa. Quando continuou-se medir a distribuição de amplitude dos novos pulsos, verificou-se que esta coincidia com a distribuição de pulsos do tipo fissão induzida por neutrons. Tendo sido realizados todos os experimentos e medidas de controle necessários, Flerov e Petrzhak⁽²⁾ chegaram finalmente à conclusão de que o urânio sofria fissão espontânea.

Como naquela época não haviam condições para se estabelecer qual o isótopo do urânio que sofria fissão espontânea (sô posteriormente foi mostrado que este efeito estava associado com o isótopo de número de massa 238), Flerov e Petrzhak calcularam as meias-vidas deste processo de desintegração sob várias hipóteses sobre o número de massa. Para o U^{238} foi encontrado o valor $(4 \pm 1) \times 10^{16}$ anos⁽²⁾, um resultado bastante superior àqueles obtidos nas medidas mais recentes (ver Tab. I); a principal causa deste resultado foi a determinação inexata da eficiência do detector empregado⁽⁴⁸⁾.

O fenômeno da fissão espontânea, inicialmente observado para o urânio, vem sendo investigado em mais de 50 isótopos de 15 elementos. Sua importância não se restringe ao domínio da Física Nuclear, havendo mesmo diversos problemas em Astrofísica, Geologia e Química cuja solução depende do conhecimento desse fe

nômeno.

Em Astrofísica, o fenômeno da fissão espontânea é importante no estudo das explosões de supernovas do tipo I. A luminosidade destas estrelas, após um período inicial, decresce exponencialmente com o tempo de acordo com $J \sim \exp(-t/\tau)$, onde $\tau \approx 55$ dias. Uma das hipóteses aceitas atualmente para explicar este fenômeno atribui a liberação de energia após o período inicial à fissão espontânea do Cf^{254} , para o qual $\tau \approx 55$ dias.

Em Geologia, a fissão espontânea do urânio tem uma grande influência na distribuição de vários elementos na crosta terrestre, originando um acúmulo de isótopos do criptônio, xenônio, rubídio e césio em minerais portadores de urânio. Ainda nesse ramo da Ciência, um novo processo de datação baseia-se na análise de traços deixados por fragmentos da fissão espontânea do urânio em minerais que contêm este elemento.

A probabilidade de fissão espontânea é praticamente desprezível para elementos mais leves que o urânio. Entretanto, à medida que o número atômico aumenta, cresce também a instabilidade dos elementos em relação à fissão espontânea, sendo este processo um dos principais modos de desintegração para valores suficientemente elevados de Z . Desde que a fissão espontânea é o processo fundamental que determina a estabilidade dos núcleos super-pesados, o problema da taxa de fissão espontânea de elementos além do fêrmio está associado com a questão do limite do Sistema Periódico dos Elementos.

Em virtude da grande importância da fissão espontânea de U^{238} nos campos da Geologia e da Geocronologia, diversos métodos têm sido empregados na medida da meia-vida desse processo: radioquímica, câmara de ionização, contador BF_3 para neutrons.

câmara de bolhas rotativa ("*spinner*"), emulsão nuclear e detetores sólidos de traços.

Como já mencionado anteriormente, os produtos da fissão espontânea apresentam geralmente excesso de neutrons, e portanto desintegram-se por emissão de elétrons. A constante de desintegração para este processo é normalmente muito maior que a constante de desintegração do urânio por fissão espontânea. Quando esta condição é preenchida, um estado de equilíbrio radioativo é atingido entre o U^{238} e os isótopos que resultam da fissão. No caso particular do Mo^{99} ($T_{1/2} = 66,0$ horas), esse equilíbrio é alcançado após cerca de três semanas; em qualquer instante posterior, o número de átomos de molibdênio que se formar na fissão é igual ao número de átomos deste elemento que se transformam no Tc^{99} . Sendo $A(Mo)$ a atividade do molibdênio nas condições de equilíbrio, e $A(U)$ a atividade alfa do U^{238} , pode-se mostrar facilmente que $A(Mo)/A(U) = y \lambda_f / \lambda_\alpha$, onde y é o rendimento de Mo^{99} na fissão espontânea (6,4%) e λ_α é a constante de desintegração do U^{238} por emissão alfa (15). Uma medida de $A(Mo)/A(U)$, juntamente com o conhecimento de y e λ_α permitem então a determinação de λ_f . Outras medidas radioquímicas desta grandeza baseiam-se no equilíbrio radioativo entre o Sr^{90} e o U^{238} (10), entre o Te^{132} e o U^{238} (20), entre o Ba^{140} e o U^{238} (14), etc.

Uma técnica bastante usada na determinação de λ_f consiste em registrar os fragmentos de fissão numa câmara de ionização. Neste tipo de detetor, a passagem de uma partícula carregada através de um gás provoca a ionização do mesmo; os elétrons arrancados das moléculas gasosas são coletados num eletrodo e o número deles constitui uma medida da intensidade de ionização produzida pela partícula incidente. O procedimento usual consist

te em colocar certa quantidade do material a ser investigado em câmaras de ionização, conectadas a amplificadores lineares, procedendo-se então à contagem dos pulsos. Com o intuito de reduzir ao mínimo os efeitos de auto-absorção, amostras muito finas (com aproximadamente 100μ de espessura) são preparadas sobre uma base de platina. Segrè⁽⁸⁾, usando esta técnica, encontrou $(6,90 \pm 0,24) \times 10^{-3}$ pulsos atribuíveis a eventos de fissão, por grama de urânio por segundo, o que corresponde a $(8,60 \pm 0,29) \times 10^{-17}$ ano⁻¹ para λ_f . Whitehouse e colaboradores⁽⁷⁾, usando procedimento semelhante, obtiveram $(24,2 \pm 1,5)$ pulsos/g-h, ou $(8,38 \pm 0,52) \times 10^{-17}$ ano⁻¹ para λ_f .

Um modo alternativo para se medir λ_f baseia-se na emissão de neutrons no instante em que ocorre a fissão de um núcleo de U^{238} . Sendo N o número de neutrons que, durante 1 hora, são emitidos na fissão espontânea de 1 grama de U^{238} e $\bar{\nu}$ o número médio de neutrons emitidos por evento de fissão, a razão $N/\bar{\nu}$ nos dará a taxa de fissão do referido isótopo (em unidades de fissões/g-h). Um detetor de neutrons frequentemente utilizado na determinação de N e $\bar{\nu}$ é o contador de boro para neutrons lentos, que consiste basicamente de uma câmara de ionização contendo BF_3 enriquecido em B^{10} . Quando os neutrons penetram na câmara dão origem a reações $B^{10}(n,\alpha)Li^7$; a partícula alfa e o núcleo de recuo Li^7 têm pequenos alcances e portanto chegam ao repouso no próprio gás, suas energias sendo convertidas em ionização e excitação das moléculas gasosas. O contador opera na região de proporcionalidade, o que permite discriminar facilmente os eventos induzidos por neutrons daqueles induzidos por radiações de fundo (raios cósmicos ou raios gama). Como este contador é mais eficiente para neutrons lentos, costuma-se envolvê-lo em parafina com

o objetivo de aumentar a eficiência de detecção dos neutrons rápidos da fissão. Nas experiências realizadas por Kuz'minov e colaboradores ⁽¹⁶⁾, por exemplo, obteve-se $\bar{\nu} = (2,1 \pm 0,1)$ neutrons / fissão e $N = (64,5 \pm 2)$ neutrons/g-h, o que corresponde a um valor de $(31 \pm 1,5)$ fissões/g-h ou $(10,7 \pm 0,5) \times 10^{-17}$ ano⁻¹ para λ_f .

O comportamento de líquidos submetidos a pressões negativas (tensões) na presença de partículas ionizantes é o princípio no qual se baseia um outro método para medida de λ_f , o chamado método spinner. A ruptura de um líquido sob tensão requer normalmente a aplicação de pressões elevadas (≈ -1320 atm para a água a 27 °C); dificilmente obtidas em laboratório. Entretanto, quando pressões negativas moderadas são produzidas num líquido por centrifugação, sua ruptura pode ocorrer pela entrada de partículas ionizantes ⁽⁵⁷⁾. As pressões negativas obtidas crescem em valor absoluto quando se aumenta a frequência de rotação; o tempo decorrido desde o início da operação até a quebra do líquido é chamado tempo de ruptura. Fixados o líquido, sua temperatura, o tipo de partícula ionizante e sua taxa de produção, o inverso do tempo de espera depende da frequência de rotação através de uma curva característica. Usando uma câmara de bolhas rotativa (ou "spinner") baseada nesses princípios, Spadavecchia e Hahn ⁽²¹⁾, e posteriormente Galliker e colaboradores ⁽²⁶⁾, encontraram, respectivamente, os valores $(8,42 \pm 0,10) \times 10^{-17}$ ano⁻¹ e $(8,46 \pm 0,06) \times 10^{-17}$ ano⁻¹ para λ_f . Deve-se ressaltar a excelente concordância entre esses resultados e, além disso, o fato de serem as medidas de menor incerteza dentre as já realizadas (ver Tab. I).

Outro detetor que pode ser utilizado na medida de λ_f

é a emulsão nuclear. Esta, analogamente às emulsões fotográficas ordinárias, consiste basicamente numa dispersão de grãos de halo geneto de prata (principalmente brometo) em gelatina. As principais diferenças entre as duas residem no conteúdo de brometo de prata e na espessura (maiores nas emulsões nucleares), bem como no tamanho dos grãos (maiores nas placas fotográficas). Quando uma partícula ionizante penetra no interior desse detector, forma-se um traço (imagem latente) contendo um número de grãos reveláveis de brometo de prata; a análise desses traços ao microscópio ótico (após a revelação) fornece informações sobre o número e natureza das partículas carregadas. Perfilov⁽⁶⁾ usou a emulsão nuclear como detector de fragmentos de fissão espontânea, usando como fonte uma película de U_3O_8 situada a uma distância de 1,5mm da emulsão. Após a irradiação e antes do processamento, o detector foi imerso numa solução de CrO_3 ; este tratamento permitiu que apenas traços de fragmentos de fissão fossem revelados, eliminando dessa forma o intenso fundo indesejável de traços de partículas alfa. O valor de λ_f para o U^{238} encontrado por Perfilov foi de $(5,3 \pm 0,8) \times 10^{-17} \text{ ano}^{-1}$. Este resultado difere apreciavelmente do valor $(11,6 \pm 0,8) \times 10^{-17} \text{ ano}^{-1}$ obtido posteriormente por de Carvalho e colaboradores⁽³⁸⁾, cuja técnica consistiu em incorporar urânio à composição da emulsão.

Sabemos atualmente que a passagem de partículas carregadas em sólidos dielétricos (orgânicos e inorgânicos), provoca o aparecimento de regiões intensamente danificadas ao longo da trajetória das partículas. Estas regiões são muito estreitas (diâmetro aproximado de 50 \AA) e são visíveis apenas com o auxílio do microscópio eletrônico. No entanto, a imersão desses sólidos num solvente químico apropriado amplia o diâmetro da região danif

ficada para cerca de 5000 Å, tornando possível a observação desses traços ao microscópio ótico. A pesquisa deste novo tipo de detectores tem sido bastante intensa desde a sua descoberta em 1958 por Young⁽⁵⁸⁾. Hoje, várias medidas de λ_f do U^{238} já foram realizadas com o auxílio desta técnica de detecção. Os primeiros a usá-la foram Fleischer e Price⁽¹⁹⁾ que, em 1964, encontraram $(6,6 \pm 0,8) \times 10^{-17}$ ano⁻¹ para λ_f usando mica no registro dos traços de fragmentos de fissão. Experiências semelhantes foram realizadas com vidro⁽²⁷⁾ e com lexan⁽²⁸⁾.

No presente trabalho, o método experimental utilizado na determinação da constante de desintegração do U^{238} por fissão espontânea baseia-se na análise de traços de fragmentos de fissão registrados em vidro comum.

As películas de urânio foram preparadas sobre placas de vidro segundo a técnica descrita no Apêndice A; o tempo de exposição foi suficiente para dar origem a uma densidade de traços razoavelmente elevada.

No Apêndice B, salientamos os principais aspectos dessa técnica de registro de traços.

No Capítulo I resumimos os aspectos fenomenológicos mais importantes da fissão (induzida e espontânea), além de descrevermos de forma sucinta alguns modelos da fissão nuclear.

No Capítulo II encontra-se a descrição do procedimento experimental seguido na determinação de λ_f .

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

CAPÍTULO I

ASPECTOS FENOMENOLÓGICOS E TEÓRICOS DA FISSÃO NUCLEAR

1.1 - *Introdução*

Algumas características importantes da fissão nuclear , tais como a emissão de neutrons e a grande quantidade de energia cinética dos fragmentos, já foram mencionados na Introdução deste trabalho. Antes de descrevermos de forma sucinta alguns modelos teóricos da fissão, citaremos rapidamente outros aspectos relevantes do fenômeno da fissão.

Na Fig. 1.1.1 apresentamos o rendimento dos produtos de fissão que é observado na fissão espontânea do U^{238} . A ocorrência de dois picos é o aspecto notável desta figura, o qual é comum a todos os núcleos que sofrem fissão espontânea, mostrando que a divisão do núcleo em dois fragmentos de massas iguais é extremamente improvável.

O fenômeno da fissão espontânea é observado apenas nos elementos que se encontram acima do tório na tabela periódica . Além disso, a grande maioria dos núcleos que sofrem fissão espontânea têm números pares de prótons e de neutrons.

No caso da fissão de núcleos pesados induzida por neutrons, há uma diferença importante entre os rendimentos de fissão dos isótopos de massa par e os dos isótopos de massa ímpar. Como

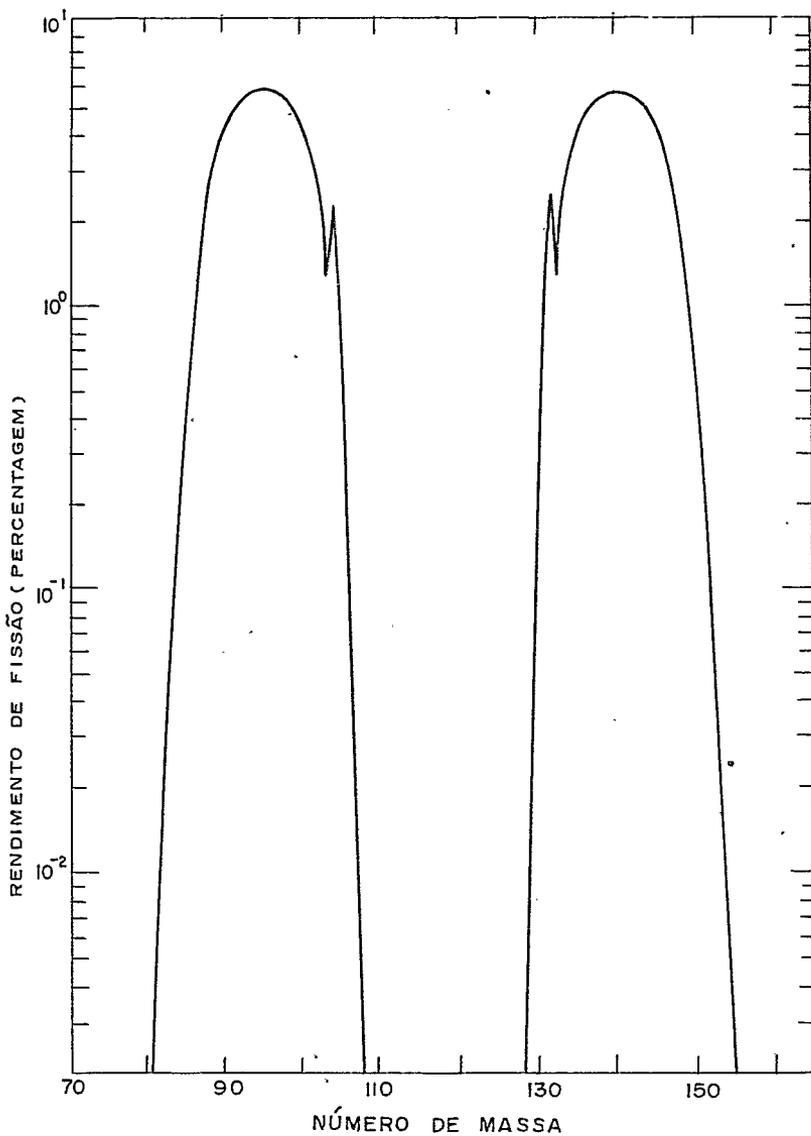


Figura 1.1.1 - Distribuição dos números de massa dos fragmentos da fissão espontânea do U^{238} *.

* Curva retirada de Rao e Kuroda (20).

exemplo, na Fig. 1.1.2 estão mostradas as probabilidades observadas na fissão induzida do U^{235} e do U^{238} por neutrons; qualquer que seja a energia do neutron, a probabilidade de fissão no isótopo de massa ímpar é maior do que no caso do isótopo de massa par, a diferença mais pronunciada ocorrendo para neutrons de baixa energia.

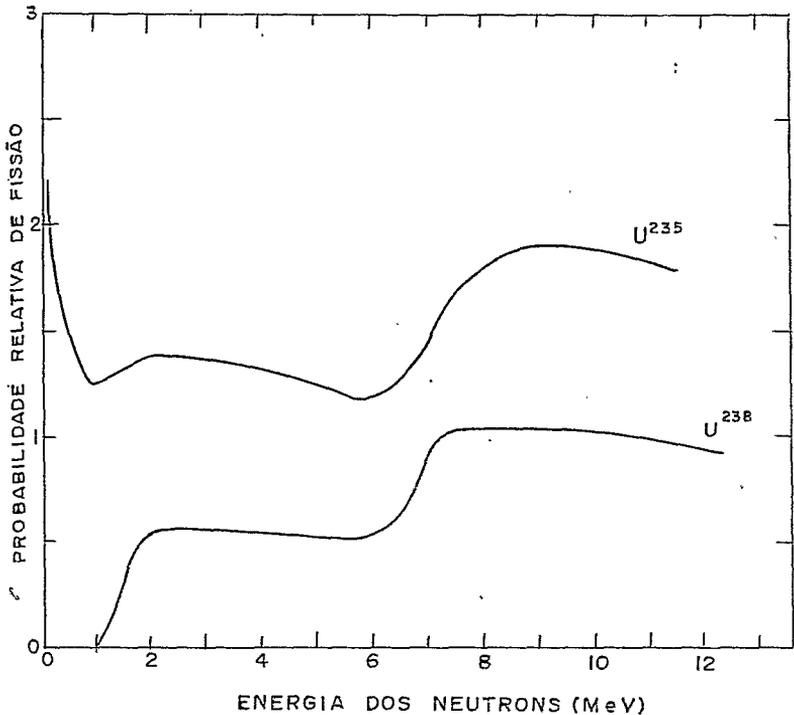


Figura 1.1.2 - Probabilidade de fissão induzida por neutrons em isótopos do urânio*.

* Retirada de Irvine (59).

Na Fig. 1.1.3 apresentamos as seções de choque observadas na fotofissão do U^{233} e do U^{238} . Estes resultados são típicos para núcleos pesados e uma vez mais enfatizam as diferenças nos rendimentos de fissão de núcleos de massa par e de massa ímpar.

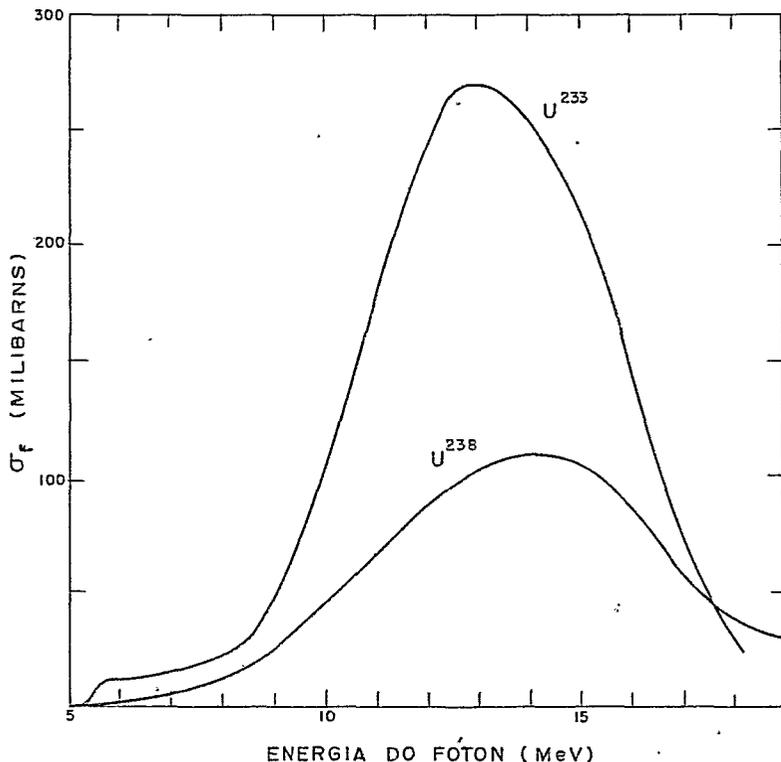


Figura 1.1.3 - Seções de choque de fotofissão para isótopos do urânio*.

Na construção de um modelo nuclear que explique as propriedades observadas da fissão, os principais aspectos a serem ie

* Retirado de H. Ze (60).

vados em conta são: o mecanismo básico da fissão nuclear e o fato de que apenas os núcleos pesados sofrem fissão espontânea; as distribuições de massa observadas para vários núcleos que experimentam a fissão e as diferenças frequentemente observadas entre os comportamentos de isótopos de massa par e de massa ímpar no que diz respeito ao fenômeno da fissão.

O modelo da gota líquida fornece uma explicação satisfatória para o mecanismo básico da fissão, tornando compreensível também o fato da fissão espontânea ocorrer apenas nos núcleos pesados.

1.2 - O Modelo da Gota Líquida

Uma gota de água no estado de mais baixa energia (estado fundamental) tem a forma esférica. Porém, quando se lhe é fornecida uma quantidade de energia, uma forma alongada poderá ser atingida. Até um certo ponto, a depender da energia fornecida, a força de tensão superficial manterá a gota coesa. Entretanto, caso a gota adquira uma determinada alongação (alongação limiar), poderá ser energeticamente mais provável a sua ruptura, ao invés de um retorno à forma esférica inicial. As duas gotas resultantes, inicialmente deformadas, adquirem rapidamente a forma esférica de mínima energia, convertendo a energia de deformação em calor. Portanto, a absorção de uma quantidade limiar de energia pode deformar a gota original até uma situação na qual ela se rompa, e cada uma das partes nas quais ela se divide assume então a forma esférica estável com a liberação da energia excedente.

Uma analogia entre essa situação e a fissão de um nú -

cleo atômico foi inicialmente proposta por Meitner e Frisch⁽⁵⁴⁾. Segundo esta interpretação, o núcleo é visto como uma esfera na qual os prótons estão distribuídos uniformemente. Contra a intensa força de repulsão eletrostática entre os prótons, há uma força nuclear mais forte (correspondente à tensão superficial de uma gota esférica de água) que mantém o núcleo coeso. Quando um núcleo absorve determinada quantidade de energia, o resultado pode ser uma deformação suficientemente pronunciada, conduzindo a uma situação na qual a força de repulsão entre as cargas na extremidade do núcleo alongado torna-se mais forte do que a força nuclear coesiva (menor nesta nova situação). Após uma elongação adicional, o núcleo se divide em dois fragmentos, a repulsão eletrostática entre eles sendo responsável pela grande liberação de energia na forma de energia cinética. Posteriormente, quantidades muito menores de energia são liberadas quando os fragmentos, que estão deformados no instante da fissão, procuram suas formas de mínima energia; neste processo eles despreendem energia principalmente pela emissão de neutrons e raios gama*.

Para a maioria dos núcleos a tensão superficial é muito mais forte que a força coulombiana, de modo que um pequeno desvio da forma mais estável não é suficiente para provocar fissão; a energia de excitação é então liberada pela emissão de raios gama ou de nucleons. Quanto maior o número de prótons em um núcleo, maior será a repulsão entre as extremidades à medida que o núcleo começar a se alongar, e portanto será necessário menos energia para fazer com que o processo continue. Estas considera-

* Uma abordagem qualitativa bastante simples sobre a aplicação do modelo da gota líquida ao fenômeno da fissão pode ser encontrada em Leachman⁽⁶¹⁾.

ões qualitativas explicam porque é mais fácil induzir fissão nos núcleos pesados do que nos núcleos mais leves. Por outro lado, em um núcleo com um número excessivo de prótons, a deformação necessária para que as forças repulsivas superem as forças coesivas é tão pequena que o núcleo poderá se dividir mesmo sem a absorção prévia de energia externa. Este fenômeno, a fissão espontânea, deverá estar portanto limitado aos núcleos mais pesados (a partir do tório), e deverá também estabelecer um limite superior no número atômico dos elementos que vierem a ser produzidos artificialmente.

A analogia entre o comportamento de uma gota líquida e de um núcleo no que diz respeito à fissão, recebeu um tratamento extensivo pela primeira vez em 1939, por Bohr e Wheeler⁽⁵⁶⁾. Aproximadamente na mesma época, Frenkel⁽⁶²⁾ descreveu um modelo da gota líquida para a fissão. Seguindo o procedimento desses autores, discutiremos brevemente a estabilidade de um núcleo com respeito a pequenas deformações.

Supondo que no estado de equilíbrio o núcleo seja uma gota esférica de líquido incompressível, um desvio axialmente simétrico da forma esférica que seja energeticamente mais favorável do ponto de vista do modelo da gota líquida pode ser descrito por uma equação para a superfície nuclear da forma:

$$R(\theta) = R_0 \left[1 + \sum_n \alpha_n P_n(\cos \theta) \right] \quad (1.2.1)$$

onde θ é o ângulo do raio vetor, R_0 é o raio da esfera, $P_n(\cos \theta)$ são polinômios de Legendre e os coeficientes α_n são parâmetros de deformação que determinam a forma da gota; o índice n tem um

limite superior pelo fato de ser finito o número de nucleons no núcleo. As exigências de volume constante e de posição inalterada do centro de massa implicam em valores extremamente pequenos para os coeficientes α_0 e α_1 . Além disso, as deformações energeticamente mais favoráveis correspondem a pequenos valores de α_n para $n > 2$. Portanto, para pequenas distorções axialmente simétricas o raio pode ser escrito como:

$$R(\theta) = R_0 \left[1 + \alpha_2 P_2(\cos\theta) \right] \quad (1.2.2)$$

onde α_2 descreve a quantidade de distorção do tipo quadrupolo. Pode-se mostrar que as energias de superfície (correspondente à existência de uma tensão superficial) e coulombiana do núcleo ligeiramente deformado são dadas por:

$$E_s = E_s^0 \left(1 + \frac{2}{5} \alpha_2^2 \right) \quad , \quad E_c = E_c^0 \left(1 - \frac{1}{5} \alpha_2^2 \right) \quad (1.2.3)$$

onde E_s^0 e E_c^0 são as energias de superfície e coulombiana correspondentes à forma esférica. A energia de deformação, $\Delta E = E - E_0$, será portanto:

$$\Delta E = \frac{1}{5} \alpha_2^2 (2E_s^0 - E_c^0) \quad (1.2.4)$$

Um exame desta equação nos mostra que a gota esférica carregada será estável contra pequenas deformações do tipo $\alpha_2 P_2(\cos\theta)$ se $2E_s^0 > E_c^0$ e instável se $2E_s^0 < E_c^0$. Bohr e Wheeler⁽⁵⁶⁾ expressaram isto por meio de um parâmetro de fissionabilidade, χ , dando por:

$$\chi = \frac{E_C^0}{2E_S^0} \quad (1.2.5)$$

Valores de χ menores que a unidade correspondem a uma estabilidade com respeito a pequenas deformações; quando $\chi > 1$ não haverá barreira de energia potencial para inibir a fissão espontânea do núcleo. Para obtermos χ , calculemos E_C^0 e E_S^0 para um núcleo idealizado. Da eletrostática, sabemos que:

$$E_C^0 = \frac{3}{5} \cdot \frac{(Ze)^2}{R_0}$$

onde Ze é a carga nuclear. A energia de superfície E_S^0 é o produto da área da esfera pela tensão superficial Ω , ou seja:

$$E_S^0 = 4\pi R_0^2 \Omega$$

As expressões para E_C^0 e E_S^0 podem ser também expressas em função do número de massa A e do número atômico Z , através de um ajuste das massas nucleares experimentais com a equação semiempírica de massa. Uma análise deste tipo realizada por Green⁽⁶³⁾ dá os seguintes resultados:

$$E_C^0 = 0,7103 \frac{Z^2}{A^{1/3}}, \quad E_S^0 = 17,80 A^{2/3}$$

onde E_C^0 e E_S^0 estão expressas em MeV. Substituindo estas expressões na eq. (1.2.5), encontramos:

$$\chi = \frac{Z^2/A}{50,13} \quad (1.2.6)$$

Quando $Z^2/A > 50,13$ (o que corresponderia a $Z > \sim 120$), os núcleos seriam caracterizados pela ausência de uma barreira clássica de fissão, e sofreriam fissão espontânea em um intervalo de tempo comparável a um período nuclear vibracional.

Esta forma simples do modelo da gota líquida deve ser modificada quando se pretende descrever precisamente distorções tão grandes quanto as encontradas no topo da barreira de fissão (ponto de sela*); seria conveniente então a introdução de polinômios de Legendre de ordem mais elevada na expansão da eq.(1.2.1), principalmente o termo $\alpha_4 P_4(\cos\theta)$. Bohr e Wheeler⁽⁵⁶⁾ incluíram este termo em seus cálculos, mas o coeficiente α_2 foi calculado apenas até a quarta ordem e o coeficiente α_4 foi calculado apenas até a segunda ordem; além disso, eles usaram valores de χ próximos da unidade. Frankel e Metropolis⁽⁶⁴⁾ usaram computadores em seus cálculos com o objetivo de encontrar a forma do núcleo no ponto de sela; nestes cálculos foram incluídos polinômios de Legendre de ordem tão elevada quanto $P_{10}(\cos\theta)$, e valores de χ no domínio $0,65 \leq \chi \leq 1$ (correspondentes a núcleos mais pesados que o chumbo) foram usados. Diversas fórmulas têm sido desenvolvidas para a energia de deformação e para a forma do núcleo na configuração do ponto de sela. Swiatecki⁽⁶⁵⁾ dá a seguinte expressão para a referida energia:

$$\left. \frac{\Delta E}{E_0} \right|_{PS} = 0,7259 (1-\chi)^3 - 0,3302 (1-\chi)^4 + \\ + 1,9208 (1-\chi)^5 - 0,2125 (1-\chi)^6 + \dots \quad (1.2.7)$$

* A energia potencial na posição do ponto de sela é a mínima quantidade de energia (ou energia limiar) requerida para provocar fissão numa gota líquida.

onde o índice PS refere-se ao ponto de sela. Utilizando a expressão $E_s^0(\text{MeV}) = 17,80 A^{2/3}$, a energia limiar $E_{PS} = \Delta E \Big|_{PS}$ poderá ser calculada pela expressão:

$$E_{PS}(\text{MeV}) = 17,80 A^{2/3} \left[0,7259(1-x)^3 - 0,3302(1-x)^4 + 1,9208(1-x)^5 - 0,2125(1-x)^6 + \dots \right] \quad (1.2.8)$$

Na Tab. 1.2.1 estão mostrados os valores de E_{PS} calculados para diversos núclídeos pela eq. (1.2.8); para comparação, na última coluna são dados os valores observados (E_{obs}) da energia limiar de fissão. Como vemos, a discordância entre os valores calculados e observados é grande;

TABELA 1.2.1 - Comparação de limiares de fissão observados com os calculados pelo modelo da gota líquida.

Nuclídeo	X	E_{PS} (MeV)	E_{obs} (MeV)
Th ²³²	0,6969	15,08	5,95
Pa ²³²	0,7125	12,68	6,18
U ²³³	0,7251	10,96	5,49
U ²³⁵	0,7189	11,79	5,75
U ²³⁸	0,7099	13,06	5,80
Np ²³⁷	0,7285	10,53	5,49
Pu ²³⁹	0,7380	9,39	5,48

os limiares observados para núcleos reais são sempre menores que os limiares calculados. Apesar dos valores calculados serem determinados classicamente, estando portanto sujeitos a correções que levem em conta a probabilidade quântica de penetração de barreira, é importante enfatizar que

estas correções não seriam suficientes para afetar consideravelmente os valores acima calculados. Strutinsky⁽⁶⁶⁾ investigou alguns dos efeitos da introdução de uma tensão superficial dependente da curvatura que leve em conta a deformação da camada difusa do núcleo. O resultado obtido foi uma diminuição das alturas das barreiras de fissão preditas, melhorando portanto a concordância com os valores observados.

Um dos aspectos mais importantes do fenômeno da fissão é a assimetria de massa dos fragmentos. Swiatecki e Cohen⁽⁶⁷⁾ incluíram polinômios de Legendre ímpares (até $P_{17}(\cos\theta)$) em seus cálculos, tentando verificar a existência de instabilidade do tipo ímpar. Seus resultados mostraram que núcleos com valores grandes de X têm formas alongadas no ponto de sela que são bastante estáveis no que diz respeito a deformações assimétricas. Em 1964, Strutinsky⁽⁶⁸⁾ relatou que a configuração do núcleo no ponto de sela era instável com respeito à deformação assimétrica, para valores de X no intervalo 0,75 - 0,85. Investigações posteriores realizadas por Nix⁽⁶⁹⁾, entretanto, não confirmaram estes resultados. Em resumo, estudos realizados sobre formas e energias das configurações de núcleos no ponto de sela não conduziram, até o presente momento, a nenhuma explicação fundamental sobre a assimetria de massa observada no fenômeno da fissão.

Apesar do fracasso do modelo da gota líquida em explicar a divisão assimétrica de massa observada na fissão, e de sua incapacidade em determinar satisfatoriamente as meias-vidas de fissão espontânea⁽⁷⁰⁾, não se pode negar alguns bons resultados obtidos com sua aplicação. O modelo ilustra qualitativamente as formas nucleares que conduzem à fissão, bem como explica a pequena energia requerida para induzir este processo em diversos nú -

cleos; além disso, cálculos baseados no modelo da gota líquida permitiram a Bohr e Wheeler⁽⁵⁶⁾ fazer previsões corretas sobre as probabilidades de vários núcleos pesados sofrerem fissão com neutrons lentos ou rápidos. A possibilidade de que os núcleos pesados pudessem sofrer fissão espontânea foi também uma previsão importante da analogia com o comportamento de uma gota líquida.

A aplicação do modelo de camadas ao fenômeno da fissão foi sugerida por diversos autores, entre os quais Mayer⁽⁷¹⁾ e Meitner⁽⁷²⁾, numa tentativa para explicar algumas características do referido fenômeno, tais como as distribuições assimétricas de massa e de carga, e a probabilidade de emissão de neutrons como uma função da massa do fragmento. Em sua teoria estatística da fissão, Fong⁽⁷³⁾ derivou uma equação semi-empírica para as massas dos fragmentos primários em vários modos de fissão, na qual introduziu correções para levar em conta a estrutura de camadas destes fragmentos. Seus resultados para a curva de distribuição de massa na fissão do U^{235} concordam muito bem com os valores observados. Acredita-se que em algum instante na sequência de deformações que conduzem à fissão, a energia envolvida na estrutura de camadas tenha influência sobre a forma (e portanto sobre a divisão) do núcleo. Como as configurações nucleares associadas com números mágicos de prótons ou de neutrons possuem maior energia de ligação que suas vizinhas, a largura da barreira de fissão para aquelas configurações torna-se menor, como pode ser visto na Fig. 1.2.1. O resultado deste estreitamento é um crescimento do rendimento de fissão para fragmentos que apresentem configurações iguais (ou próximas) àquelas correspondentes a números mágicos de prótons ou de neutrons.

Uma outra característica importante da fissão nuclear

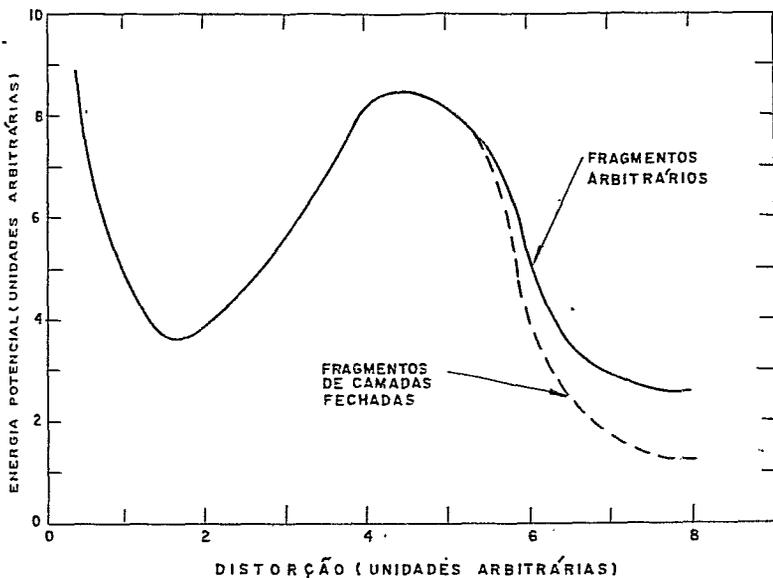


Figura 1.2.1 - Barreira de fissão para fragmentos arbitrários e fragmentos com camadas fechadas*.

É o fato de que a probabilidade de fissão espontânea é maior para os núcleos pesados que apresentam números pares de prótons e de neutrons do que para os demais. Como sabemos, a natureza da interação nucleon-nucleon dá origem a uma energia de emparelhamento de neutrons com neutrons e de prótons com prótons. Há evidência de que essa energia cresce com a deformação do núcleo (59). Na Fig. 1.2.2, vemos como este fato conduz a uma redução na largura da barreira de fissão no caso de núcleos par-par, o que não ocorre no caso de núcleos de número de massa ímpar. É esta a razão pela qual os primeiros apresentam maiores probabilidades de

* Retirado de Irvine (59).

fissão espontânea que os demais.

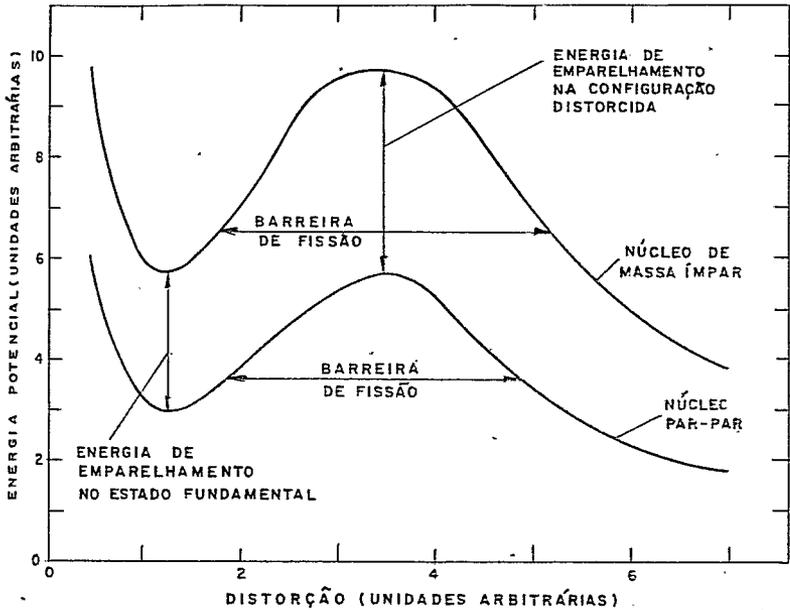


Figura 1.2.2 - Barreira de fissão para núcleos par-par e para núcleos de número de massa ímpar*.

1.3 - Meia-Vida de Fissão Espontânea do U^{238}

A fissão espontânea tem sido interpretada como um processo quântico de penetração de uma barreira de potencial, de modo semelhante ao tratamento dado por Gamow em 1929 para a desintegração alfa. Entretanto, a função de onda no caso da fissão es

* Retirado de Irvine⁽⁵⁹⁾.

pontânea refere-se ao movimento de uma superfície passando por um máximo de energia potencial em um espaço de deformação, diferentemente do que ocorre na desintegração alfa, onde a função de onda $\bar{\psi}$ é a de uma partícula que penetra numa barreira.

Teoricamentê, é possível obter a probabilidade de desintegração de um dado nuclídeo por fissão espontânea, desde que se conheça a frequência com a qual o núcleo se encontra na configuração ótima para a fissão e a penetrabilidade (ou transparência) através da barreira. Na aproximação WKB, a penetrabilidade, p , é dada por:

$$p = \exp \left\{ - \frac{2}{\hbar} \int_{r_1}^{r_2} \left[2 \left(V(r) - T \right) \sum_i m_i \left(\frac{dx_i}{dr} \right)^2 \right]^{1/2} dr \right\} \quad (1.3.1)$$

onde r é a distância entre os centros de gravidade dos fragmentos-nascentes, $V(r)$ é a energia potencial de deformação, T é qualquer energia cinética no grau de liberdade de fissão e x_i é a coordenada do i -ésimo nucleon de massa m_i . A integral é calculada desde o ponto de penetração na barreira, r_1 , até o ponto de emergência, r_2 . Supondo que cada nucleon se move da mesma distância que o centro de massa, então $\sum_i m_i (dx_i/dr)^2 = M$; a expressão anterior, para núcleos no estado fundamental ($T = 0$), transforma-se portanto em:

$$p = \exp \left\{ - \frac{2}{\hbar} \int_{r_1}^{r_2} \left[2V(r)M \right]^{1/2} dr \right\} \quad (1.3.2)$$

Bohr e Wheeler⁽⁵⁶⁾, escolhendo uma forma particularmen

te simples para $V(r)$, obtiveram uma penetrabilidade dada por:

$$p = \exp \left\{ - \frac{2\pi}{\hbar} (2ME_f)^{1/2} \alpha \right\} \quad (1.3.3)$$

onde M é a massa nuclear, E_f é o limiar de fotofissão e α é um parâmetro de deformação ($\alpha \sim R$). Sendo \underline{n} a frequência com a qual o núcleo se encontra na configuração ótima para a fissão, o produto \underline{np} nos dará a constante de desintegração, e a meia-vida \underline{se} rá então:

$$T_{1/2} = \frac{\ln 2}{\underline{np}} \quad (1.3.4)$$

Calculando p através da eq. (1.3.3) e supondo que o núcleo encontra-se na configuração ótima para a fissão cerca de 10^{21} vezes por segundo, Bohr e Wheeler previram $T_{1/2} \approx 10^{22}$ anos para o U^{238} .

Frankel e Metropolis⁽⁶⁴⁾, através de cálculos baseados no modelo da gota líquida encontraram a relação:

$$T_{1/2}(\text{seg}) = 10^{-21+7,85E_f} \quad (1.3.5)$$

onde a barreira de fissão E_f deve ser expressa em MeV. O valor por eles encontrado para a meia-vida de fissão espontânea do U^{238} foi de 10^{26} anos.

Randrup e colaboradores⁽⁷⁴⁾ introduziram modificações no modelo da gota líquida e usaram o modelo de partícula simples modificado com o objetivo de estabelecer barreiras de fissão adequadas. Em suas análises incluíram também os efeitos de assimetria axial e assimetria de reflexão. Entretanto, o valor de $T_{1/2}$

obtido para o U^{238} por este processo foi de apenas 10^{12} anos.

Embora os cálculos teóricos das meias-vidas de fissão espontânea estejam atualmente bastante sofisticados, ainda é grande o desacordo com os resultados experimentais.

A fissão espontânea já foi observada em cerca de 54 isótopos de 15 elementos⁽⁷⁰⁾; para a maioria desses, a meia-vida deste processo já foi determinada com boa precisão, enquanto para outros conseguiu-se apenas estimar um limite inferior para a meia-vida. À medida que as constantes de desintegração por fissão espontânea iam sendo determinadas, algumas tentativas para obter uma sistematização dos resultados foram feitas. Em 1952, Seaborg⁽⁷⁵⁾ observou que no caso de núclídeos par-par a meia-vida de fissão espontânea parecia decrescer exponencialmente com o aumento de Z^2/A , enquanto núclídeos com um número ímpar de nucleons desintegravam-se numa taxa muito menor. Posteriormente, Hui-zenga⁽⁷⁶⁾ notou que as meias-vidas de certos núclídeos par-par (Th^{230} , U^{232} , etc) contradiziam a hipótese de relação linear entre o logaritmo da meia-vida e Z^2/A ; para um dado valor de Z , a meia-vida passa por um máximo à medida que A varia. Na Fig.1.3.1, apresentamos o gráfico de $T_{1/2}$ versus Z^2/A , para isótopos par-par. É interessante ressaltar que se a linha reta for extrapolada até a região de meia-vida da ordem de 10^{-20} segundos, obteremos $Z^2/A \sim 47$, o que corresponde aproximadamente ao valor crítico de Z^2/A predito pela teoria de Bohr e Wheeler.

Uma sistematização dos resultados experimentais obtidos para as meias-vidas de fissão espontânea, totalmente diferente das anteriores, foi realizada por Swiatecki⁽⁷⁷⁾ em 1955. Ele atribuiu os desvios existentes entre os valores observados de $T_{1/2}$ e a linha reta da Fig. 1.3.1, à diferença de massa entre um

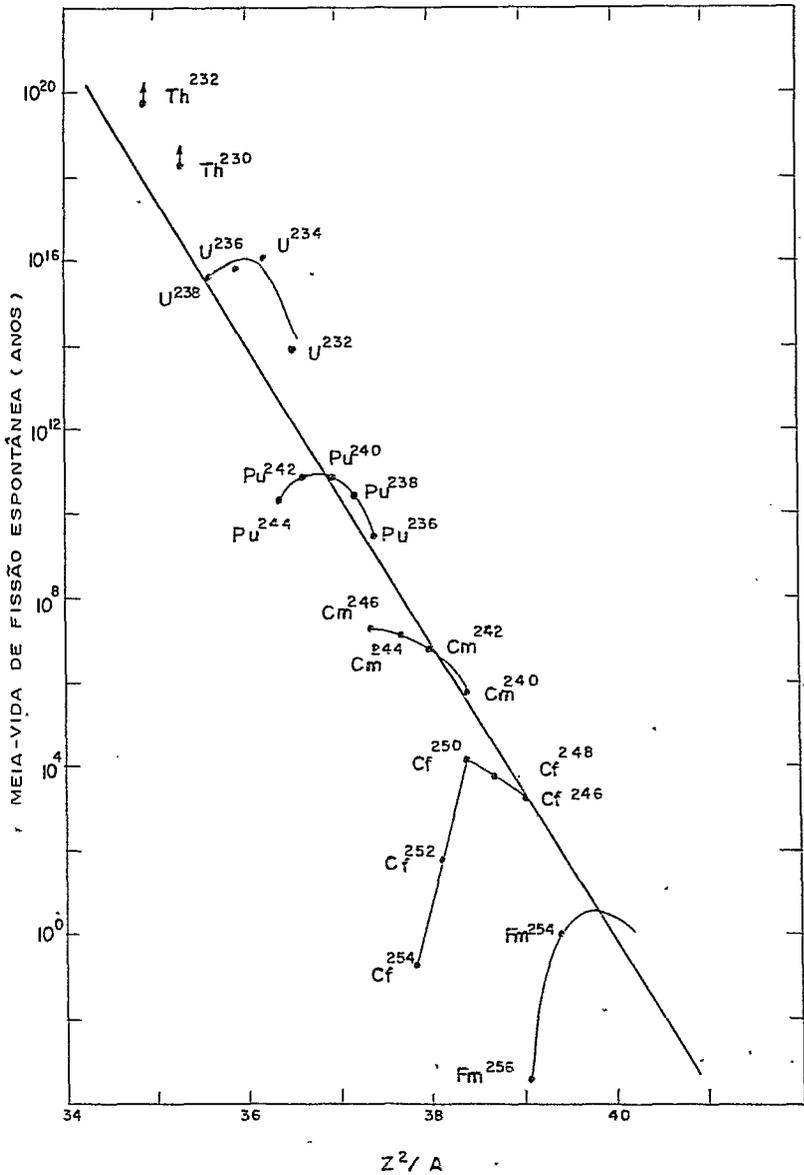


Figura 1.3.1 - Meia-vida de fissão espontânea de nuclídeos par-par versus Z^2/A .

núcleo de massa M no estado fundamental e o valor M_1 calculado pela fórmula semi-empírica baseada no modelo da gota líquida. Os resultados por ele obtidos para τ ($\tau = \log_{10} T_{1/2}$) quando $T_{1/2}$ está expressa em anos, foram:

$$\left. \begin{array}{l} \tau (\text{par-par}) = 18,2 \\ \tau (A \text{ ímpar}) = 24,8 \\ \tau (\text{ímpar-ímpar}) = 29,7 \end{array} \right\} -7,8\theta + 0,35\theta^2 + 0,073\theta^3 - (5-\theta)\delta M \quad (1.3.6)$$

onde $\theta = (Z^2/A) - 37,5$, δM é a diferença $(M-M_1)$ expressa em unidades de milimassa atômica, e a expressão usada para M_1 (em unidades de milimassa atômica), foi:

$$M_1 = 1000A - 6,3557A + 19,120A^{2/3} + 0,76278Z^2/A^{1/3} + 25,444 (N-Z)^2/A + 0,420 (N-Z) \quad (1.3.7)$$

A concordância entre os valores de τ dados por (1.3.6) e os resultados experimentais é muito boa. Para o U^{238} , por exemplo, a eq. (1.3.6) fornece o valor $3,3 \times 10^{15}$ anos para a meia-vida de fissão espontânea, o qual pode ser comparado com o resultado experimental $8,0 \times 10^{15}$ anos obtido por Segrè (8). Portanto, as irregularidades observadas na Fig. 1.3.1 originam-se principalmente de irregularidades existentes nas massas dos núcleos no estado fundamental, as quais estão associadas com a estrutura de camadas na configuração do referido estado.

Finalmente, uma estimativa semi-empírica da meia-vida de fissão espontânea do U^{238} foi obtida por I.O. de Souza (78) em 1975, na qual supõe que a meia-vida depende apenas da barreira de fissão. Um gráfico construído com valores experimentais de meia-vida e barreira de fissão para alguns elementos, após a apli

cação do método dos mínimos quadrados, forneceu o seguinte resultado:

$$T_{1/2}(\text{anos}) = 10^{(5,14536E_f - 12,6578)} \quad (1.3.8)$$

onde E_f deve ser expressa em MeV. Usando o resultado de 5,80 MeV para a barreira de fissão obtido por Halpern⁽⁷⁹⁾, de Souza obtve 10^{17} anos para a meia-vida de fissão espontânea do U^{238} , em concordância razoável com o valor observado.

CAPÍTULO II

PROCEDIMENTO EXPERIMENTAL

2.1 - *Introdução*

Neste Capítulo será descrito o método experimental utilizado em nosso trabalho para a determinação da constante de desintegração do U^{238} por fissão espontânea, método este que consistiu na análise de traços de fragmentos de fissão registrados em vidro comum.

Como já mencionado na Introdução deste trabalho, a constante de desintegração do U^{238} por fissão espontânea é da ordem de 10^{-16} /ano, correspondendo a valores experimentais obtidos no intervalo $5,3 - 11,9 \times 10^{-17}$ ano $^{-1}$ (veja Tab. I). Uma taxa tão pequena requer um longo tempo de exposição e uma grande quantidade de urânio para que se acumule o número suficiente de eventos para permitir uma boa estatística nas medidas. Em nosso laboratório dispomos de várias placas de vidro cobertas numa das superfícies com filmes finos de urânio e que foram preparadas em 1962*. As primeiras estimativas da quantidade de urânio nesses filmes forneceram valores em torno a $0,18 \text{ mg de U/cm}^2$ (ver Capítulo

*Estas películas haviam sido preparadas com o objetivo de estudar a fotofissão do urânio usando emulsão nuclear como detetor. Por motivos que não cabe aqui explicitar, tais estudos não foram realizados e as placas permaneceram armazenadas até o presente ano (1978).

III). O produto dessa grandeza pelo tempo de armazenamento nos fornece a *exposição total*, que no nosso caso foi da ordem de 10^3 mg-d de U/cm². Em experiências conduzidas por Emma e Lo Ni gro⁽³⁶⁾ e também por Thiel e Herr⁽³⁹⁾ com o objetivo de determinar a meia-vida de fissão espontânea do U²³⁸, usando o vidro como detetor, foram utilizadas exposições totais máximas de 130 e 890 mg-d de U/cm², respectivamente. O fato de dispormos de vidros com filmes de urânio com exposição total superior às desses autores nos coloca em condições favoráveis à obtenção de uma melhor estatística na redeterminação da taxa de fissão espontânea do U²³⁸.

2.2 - Preparação e Armazenamento dos Filmes

O procedimento seguido na preparação desses filmes encontra-se descrito no Apêndice A. O método usado permite a obtenção de espessuras de urânio de até 1 mg/cm². Este limite na quantidade máxima de urânio está relacionado com a uniformidade das películas, que costumam reticular quando suas espessuras superam o valor acima citado⁽⁹³⁾. Uma outra restrição na quantidade máxima de urânio nos filmes diz respeito à auto-absorção dos fragmentos de fissão no óxido de urânio (UO₃). No Capítulo III é mostrado que a influência da espessura do filme na atenuação da energia dos fragmentos, bem como na redução da ionização primária, é desprezível em nossas condições experimentais (filme de UO₃ com espessura aproximada de 0,18 mg de U/cm²). As duas restrições acima estabeleceram obviamente um limite na quantidade de eventos que puderam ser coletados.

Após a preparação, as placas de vidro foram guardadas

numa caixa e permaneceram armazenadas até o presente ano (1978). Durante este tempo as placas estiveram sujeitas às condições ambientais de temperatura (≤ 40 °C), pressão (≈ 1 atm) e umidade relativa do ar.

Os traços latentes deixados por fragmentos de fissão no vidro são estáveis em condições normais do meio ambiente. Entretanto, essa estabilidade pode ser fortemente alterada quando a temperatura do meio torna-se suficientemente elevada; as condições de "annealing" (relatadas no Apêndice B) para traços de fragmentos de fissão em vidro comum referem-se ao aquecimento durante 1 hora a 190 °C como a situação em que ocorre o desaparecimento de 50% dos traços. Como os vidros estiveram armazenados à temperatura ambiente, podemos assegurar que os traços permaneceram estáveis. Cabe salientar ainda que o óxido de urânio (UO_3) não é higroscópico; sendo assim, o seu armazenamento em condições do meio ambiente não acarreta quaisquer influências sobre a uniformidade e consistência dos filmes.

2.3 - Fundamentos do Método de Determinação da Taxa de Fissão Espontânea do U^{238} por Detecção de Fragmentos de Fissão em Vidro

O urânio contido nos filmes usados em nossas experiências consiste de uma mistura natural dos isótopos U^{234} , U^{235} e U^{238} , cujas abundâncias isotópicas correspondem a 0,0055 %, 0,720 % e 99,28 %, respectivamente (80). Os valores experimentais das constantes de desintegração por fissão espontânea, λ_f , desses isótopos, compilados por Vandenbosh e Huizenga (70), são 4,33, 0,198 e 10,7 (em unidades de 10^{-17} ano⁻¹), e suas constantes de desintegração totais são 2840, 0,985 e 0,155 (em unida-

des de 10^{-9} ano $^{-1}$) para o U^{234} , U^{235} e U^{238} , respectivamente (80). Estes valores permitem considerar como sendo constante a atividade de fissão de cada um desses isótopos durante um intervalo de tempo, t_f , da ordem de 16 anos. Consequentemente, o número de desintegrações por fissão espontânea, n_f , ocorridas no referido intervalo de tempo em uma amostra contendo n átomos de urânio natural, será:

$$n_f = (\lambda_f^{234} C^{234} + \lambda_f^{235} C^{235} + \lambda_f^{238} C^{238}) n t_f \quad (2.3.1)$$

onde C^{234} , C^{235} e C^{238} são as abundâncias isotópicas dadas acima. Como vemos, cada isótopo do urânio contribui com a parcela $\lambda_f C n t_f$ para o número total de desintegrações. Cálculos diretos com os valores de λ_f e C dados acima nos mostram serem desprezíveis as contribuições do U^{234} ($\approx 0,002\%$) e do U^{235} ($\approx 0,013\%$) para o número total de eventos.

Nas condições experimentais de nosso trabalho um filme fino de óxido UO_3 foi obtido em uma das faces de uma placa de vidro soda-lime. Sendo N o número de átomos de urânio por centímetro quadrado, o produto $2\lambda_f^{238} N C^{238} t_f$ nos fornece portanto o número de *fragmentos de fissão* que foram emitidos em todas as direções.

Analisemos agora a possibilidade de fragmentos de fissão que não sejam provenientes da fissão espontânea do U^{238} contido no filme interceptarem a superfície do vidro. Em primeiro lugar, núcleos de urânio e tório porventura existentes no vidro como impurezas vêm se desintegrando por fissão espontânea desde a época da fusão do vidro; além disso devemos considerar a possibi

lidade da ocorrência de fissão induzida nestes núcleos por neutrons de laboratório e raios cósmicos. Em qualquer desses casos, um dos fragmentos emitidos em cada evento de fissão poderá interceptar a superfície do vidro. Chamemos de n_i o número desses fragmentos que interceptaram 1 centímetro quadrado da superfície do vidro. Em segundo lugar, o próprio urânio do filme pode ser induzido à fissão por raios cósmicos; designemos por n_r o número de eventos de fissão originados neste processo e que ocorreram em cada centímetro quadrado do filme durante o intervalo de tempo t_f . Finalmente, os isótopos do urânio presentes no filme podem sofrer fissão induzida por neutrons de laboratório; seja n_n o número de eventos de fissão originados mediante este mecanismo e que ocorreram, durante o tempo t_f , em cada centímetro quadrado do filme.

Decorrido o tempo t_f , o ataque químico do vidro com um solvente apropriado permite a observação, ao microscópio ótico, dos *traços revelados* de fragmentos de fissão que interceptaram a superfície do vidro. Uma consequência do ataque químico é que apenas são revelados os traços de fragmentos de fissão que interceptaram a superfície do vidro em ângulos de profundidade superiores ao ângulo crítico de revelação (ver Apêndice B). Deste modo, a densidade de traços de fragmentos de fissão presentes no vidro após o ataque químico, n_A , pode ser expressa como:

$$n_A = 2(\lambda_f^{238}\text{NC}^{238}t_f + n_r + n_n)\epsilon_V + n_i\epsilon'_V \quad (2.3.2)$$

onde ϵ_V e ϵ'_V são as eficiências de detecção do vidro para fragmentos de fissão provenientes do filme e do interior do vidro,

respectivamente ⁽¹⁰¹⁾.

O exame dos traços ao microscópio ótico está sujeito a perdas de eventos por parte do observador. O procedimento seguido na determinação da eficiência de observação de traços de fragmentos de fissão em vidro, ϵ_0 , é descrito no ítem 2.7.2. Se multiplicarmos o segundo membro da eq. (2.3.2) por ϵ_0 , obteremos finalmente a densidade de traços de fragmentos de fissão, ρ_f , que são realmente observados ao microscópio ótico:

$$\rho_f = \left[2(\lambda_f^{238} N C^{238} t_f + n_r + n_n) \epsilon_v + n_i \epsilon'_v \right] \epsilon_0 \quad (2.3.3)$$

Um exame da equação acima nos mostra quais as grandezas envolvidas na determinação da constante de desintegração do U^{238} por fissão espontânea (λ_f^{238}) através do método experimental utilizado em nosso trabalho. A grandeza C^{238} , abundância isotópica do U^{238} , já é bem conhecida e seu valor é 99,28%. O tempo t_f de armazenamento foi de 15,75 anos*, ao qual foi atribuída a incerteza máxima de 1 mês. Descreveremos nas próximas seções o procedimento seguido na determinação das demais grandezas da eq. (2.3.3).

2.4 - *Determinação de N (número de átomos de urânio por centímetro quadrado de filme).*

2.4.1 - *Contagem de Traços de Partículas Alfa do Urânio em Emulsão Nuclear.*

O método que dispomos em nosso laboratório para a ob -

* F. Salvetti, comunicação particular a H.G. de Carvalho (1978).

tenção do valor de N consiste em determinar a atividade alfa da película de urânio com emulsão nuclear. Com este objetivo uma placa de emulsão nuclear Ilford L4 de 100 µm de espessura e fabricação recente (15/11/1977) foi posta em contato, durante o tempo t_{α} , com um filme de urânio; a placa de vidro que servia de base ao filme foi cortada de modo que o filme cobrisse exatamente a superfície da emulsão. Após a irradiação a emulsão foi revelada, juntamente com uma segunda, não irradiada. O exame desta placa de emulsão permitiu determinar a densidade de traços de partículas alfa existentes na emulsão antes da exposição ao filme de urânio (radiação de fundo).

O processo de revelação teve início com a imersão das películas no revelador Ilford ID - 19 diluído a 1:4, durante 2,0 horas a 10 °C. A composição do revelador usado foi a seguinte ⁽⁸¹⁾:

Metol	2,2 g
Sulfito de sódio anidro	72 g
Hidroquinona	8,8 g
Carbonato de sódio anidro	48 g
Brometo de potássio	4 g
Água até completar 1 litro.	

A interrupção da revelação foi obtida com a lavagem das películas, durante 1,0 hora a 10 °C, em uma solução contendo 5 gramas de sulfito de sódio por litro, à qual foi adicionado ácido acético com o objetivo de se obter pH 3.5. Finalmente, procedeu-se à fixação das emulsões, durante 4,0 horas, em um banho fixador contendo 350 gramas de hipossulfito de sódio e 5 gramas de sulfito de sódio por litro. A temperatura inicial do fixador foi de 10°C,

sendo lentamente diminuída até atingir 5 °C. Em seguida as películas foram lavadas em água (constantemente renovada) durante 8,0 horas a 5 °C. Após o térmico da lavagem seguiu-se um banho de álcool a 60% durante 1,5 horas a 5 °C, findo o qual as películas foram postas para secar, lentamente, até atingir o equilíbrio com a umidade relativa ambiente. Essa sequência de operações visa reduzir ao mínimo as distorções produzidas pela revelação nos traços de partículas alfa. No exame das chapas ao microscópio foram utilizadas oculares de aumento 10 x e objetiva de aumento 53 x; nas medidas de comprimento dos traços foram usadas oculares de aumento 25 x e objetiva de aumento 100 x. Para impedir que um mesmo traço de partícula alfa fosse contado ou medido mais do que uma vez, e também para evitar perdas na contagem dos eventos, colou-se uma rede de referência à superfície da emulsão.

Vejamos agora como o número de átomos de urânio por centímetro quadrado de filme, N , está relacionado com a densidade de traços de partículas alfa observados na emulsão. Sendo λ_{α}^{234} , λ_{α}^{235} e λ_{α}^{238} , respectivamente, as constantes de desintegração do U^{234} , U^{235} e U^{238} por emissão de partícula alfa, e t_{α} o tempo de irradiação, então o número de partículas alfa emitidas durante o referido intervalo de tempo em cada centímetro quadrado de filme, N_{α} , será obviamente dado por:

$$N_{\alpha} = (\lambda_{\alpha}^{234} C^{234} + \lambda_{\alpha}^{235} C^{235} + \lambda_{\alpha}^{238} C^{238}) N t_{\alpha} \quad (2.4.1.1)$$

onde C^{234} , C^{235} e C^{238} são as abundâncias isotópicas mencionadas na Seção 2.3. Na observação dos traços ao microscópio, a perda de eventos por parte do observador é mais provável tanto pa

ra partículas que penetraram na emulsão em ângulos muito rasos -
tes como para aquelas que incidiram quase verticalmente. Além dis-
so, o fato de ser maior o número de partículas que penetraram na
emulsão em ângulos pequenos nos levou a considerar apenas os tra-
ços que apresentavam ângulos de profundidade, β , situados entre
dois valores β_1 e β_2 (a escolha destes valores será ilustrada
no Capítulo III). A relação entre a densidade de traços para os
quais $\beta_1 \leq \beta \leq \beta_2$ e o número de partículas alfa emitidas por
centímetro quadrado é a razão entre os ângulos sólidos correspon-
dentes, ou seja, entre $2\pi (\text{sen}\beta_2 - \text{sen}\beta_1)$ e 4π . Consequentemen-
te, a densidade de traços de partículas alfa do urânio observa-
dos na emulsão para os quais $\beta_1 \leq \beta \leq \beta_2$ é:

$$\rho_\alpha = \frac{1}{2} (\lambda_\alpha^{234} C^{234} + \lambda_\alpha^{235} C^{235} + \lambda_\alpha^{238} C^{238}) N t_\alpha (\text{sen}\beta_2 - \text{sen}\beta_1) \epsilon_\alpha \quad (2.4.1.2)$$

onde ϵ_α é a eficiência de observação (cuja determinação encon-
tra-se descrita no item 2.7.2) e ρ_α já inclui a correção da ra-
dição de fundo. A ocular do microscópio contém em seu interior
um quadrado de 60 x 60 divisões que delimita uma região que cha-
mamos campo; o valor de cada divisão chama-se calibração e é ob-
tido por comparação com uma escala microscópica padrão*. Deste
modo, o conhecimento da área de cada campo permite a determina-
ção da área examinada a partir do número de campos observados.

Com o objetivo de distinguir, entre os traços observa-
dos, quais os que correspondem às partículas alfa emitidas pelo

*Cada sistema ocular-objetiva-microscópio-observador tem a sua própria cali-
bração.

urânio do filme, foi feita uma distribuição de frequência dos com-
primentos dos traços. Na Fig. 2.4.1.1 estão mostradas as diversas
grandezas que caracterizam um traço. O valor real da projeção do
traço é obtido quando se multiplica a projeção medida, p , pela ca-
libração c . Por outro lado, o valor real da profundidade do traço

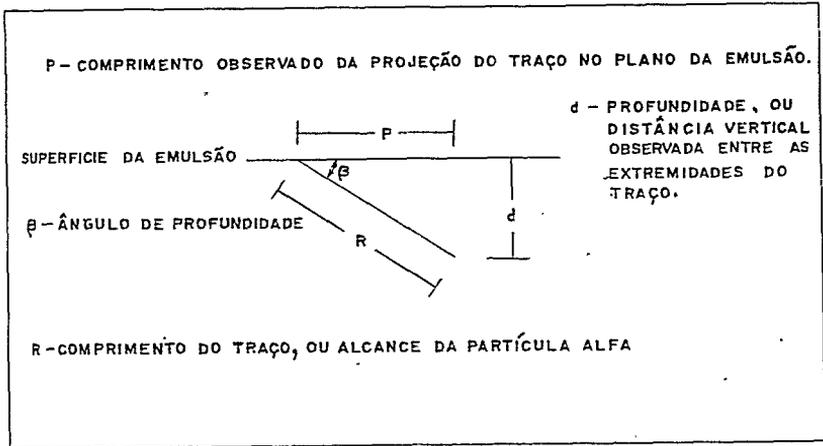


Figura 2.4.1.1 - Geometria do traço de partícula alfa em emulsão nuclear.

é o produto da profundidade observada d (medida com o auxílio de um micrômetro acoplado ao movimento vertical de ajuste fino do ca-
nhão do microscópio) pelo fator de contração f ; este fator leva em consideração a contração da película que ocorre durante o pro-
cesso de fixação e é obtido pela razão entre as espessuras inicial e final da emulsão. Em nosso trabalho a espessura foi medida
diariamente e os traços examinados num determinado dia foram tra-
tados com o respectivo fator de contração. Da Figura, verifica-se
que o alcance R e o ângulo de profundidade β podem ser calcula-

dos pelas expressões:

$$R = \sqrt{(pc)^2 + (df)^2} \quad (2.4.1.3)$$

$$\beta = \arctg \left(\frac{df}{pc} \right) \quad (2.4.1.4)$$

2.4.2 - Método da Simples Pesagem

O método acima descrito pode ser aplicado somente a filmes finos. No caso de filmes espessos (espessura $\geq 3\mu\text{m}$), as partículas alfa provenientes das regiões mais afastadas da emulsão poderiam ser absorvidas no próprio óxido de urânio, uma situação na qual não haveria o aparecimento de um traço no detetor. Deste modo a relação entre a densidade de traços para os quais $\beta_1 \leq \beta \leq \beta_2$ e o número de partículas alfa emitidas não mais seria $(\text{sen}\beta_2 - \text{sen}\beta_1)/2$ e a eq. (2.4.1.2) nos daria um resultado incorreto para N. Com o objetivo de superar esta dificuldade utilizamos um método alternativo na determinação de N, o qual, apesar de mais simples e menos preciso, nos garantiu a validade da aplicação do método de contagem de traços de partículas alfa em emulsão, conforme será discutido no Capítulo III.

O método da simples pesagem consiste em encontrar a diferença de massa entre uma lâmina de vidro com o filme de urânio e a mesma lâmina após a remoção do filme. A película de urânio foi retirada da placa de vidro mediante uma solução de ácido nítrico diluído a 1:10, à temperatura de $(60,0 \pm 0,5)^\circ\text{C}$; testes realizados com uma amostra possibilitaram a determinação do tempo de imersão necessário para que todo o óxido de urânio fosse dissolvi

do. A Fig. 2.4.2.1 representa o resultado desses testes, os quais indicam que 30 minutos é um intervalo de tempo suficiente para retirar completamente a película de urânio.

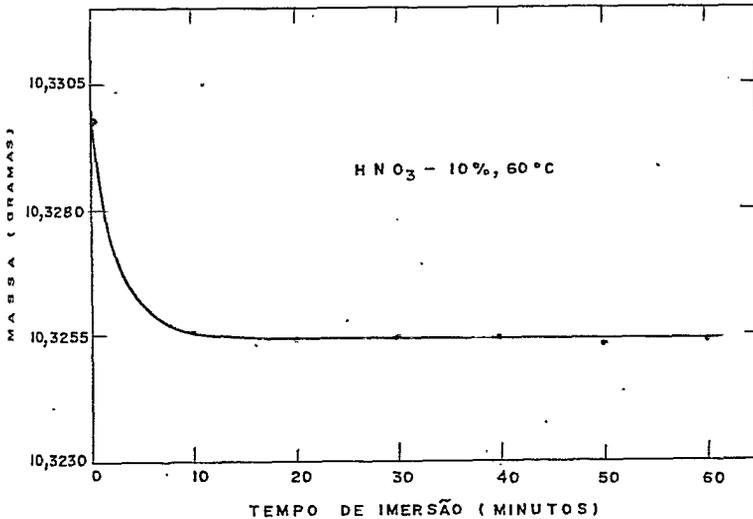


Figura 2.4.2.1 - Massa do sistema vidro-filme de urânio em função do tempo de imersão no ácido nítrico.

Seja ΔM a massa de filme removida, a qual foi determinada com uma microbalança. Conforme discutido no Apêndice A, o óxido de urânio constituinte do filme é o UO_3 , cujo peso molecular é 286,03. Como em cada molécula de UO_3 há apenas 1 átomo de urânio, verifica-se facilmente que o número de átomos deste elemento por centímetro quadrado de filme é dado por:

$$N = \frac{N_0}{286,03} \cdot \frac{\Delta M}{A} = 2,1056 \times 10^{21} \frac{\Delta M}{A} \quad (2.4.2.1)$$

onde N_0 é o número de Avogadro, ΔM deve ser expressa em gramas

e A é a área do filme expressa em centímetros quadrados.

Para a determinação da área foi utilizado o processo de Archimedes, que consiste em pesar o vidro no ar e, em seguida, determinar seu peso quando imerso em um líquido (no nosso caso, a água) de densidade conhecida. A diferença de peso corresponde ao peso do volume de água deslocado (empuxo da água sobre o vidro). Sejam m_i a massa do vidro no ar e m_f sua massa quando imerso na água, as quais foram medidas com uma balança analítica. Sendo e a espessura do vidro (medida com um micrômetro) e ρ_a a densidade da água (obtida com um densímetro), a aplicação do princípio de Archimedes permite-nos expressar a área do vidro, A, como:

$$A = \frac{m_i - m_f}{e \rho_a} \quad (2.4.2.2)$$

onde as massas estão expressas em gramas, e em centímetros, ρ_a em gramas por centímetro cúbico e A em centímetros quadrados.

1.5 - Determinação da Densidade de Traços de Fragmentos de Fissão Observados no Vidro

Após a remoção do filme de urânio do vidro, procedeu-se à revelação do mesmo a fim de tornar visíveis ao microscópio óptico os traços de fragmentos de fissão. A solução reveladora usada foi o ácido fluorídrico na concentração de 4,9% e à temperatura de 26 °C. Com o objetivo de encontrar o tempo ideal de ataque químico, dividiu-se uma amostra em 7 partes, as quais foram reveladas durante 5, 7, 9, 11, 13, 15 e 17 minutos. A observação cuidadosa de cada uma destas partes sugeriu que as melhores condições

de nitidez e contraste dos traços foram atingidas com o tempo de revelação de 15 minutos.

Na procura dos traços de fragmentos de fissão ao microscópio foram utilizadas oculares de aumento 6 x e objetiva de aumento 45 x. Nas medidas de diâmetro e eixos maior e menor dos traços de fragmentos de fissão, as oculares e objetiva usadas foram de aumentos 12,5 x e 45 x, respectivamente.

Na obtenção da densidade ρ_f de traços de fragmentos de fissão, é necessário o conhecimento da área na qual se observa um determinado número de eventos atribuíveis à fissão. O valor desta área foi obtido a partir do número de campos examinados e da calibração do sistema ocular-objetiva-microscópio utilizado pelo observador.

Analisemos agora o problema da obtenção do número de traços de fragmentos de fissão observados na área em questão. Conforme discutido no Apêndice B, esses traços podem apresentar-se como circulares ou elípticos, dependendo do ângulo de incidência com a superfície do vidro. Para fragmentos de fissão que incidem em ângulos de profundidade próximos ao ângulo crítico de revelação, a componente normal de V_T (taxa de revelação ao longo do traço) é apenas ligeiramente maior que V_G (taxa de revelação do material não danificado). Uma consequência disto é uma diminuição do contraste apresentado pelo traço em virtude da menor profundidade do mesmo. Esses traços rasantes têm, portanto, uma maior probabilidade de não serem vistos pelo observador. Resolve-se então analisar apenas os eventos circulares, multiplicando a seguida o número destes eventos por um fator adequado (*eficiência de detecção de traços circulares*) a fim de obtermos o núme-

ro total de fragmentos de fissão emitidos no filme (ver ítem 2.7.1). Finalmente, é necessário discriminar, entre os eventos circulares examinados, quais os que correspondem a fragmentos de fissão. Com este objetivo foi feita uma distribuição de frequência dos diâmetros dos traços, o diâmetro real sendo o produto da calibração pelo diâmetro medido. Esta foi uma outra razão pela qual limitamos nossas análises aos eventos circulares; uma tentativa de discriminação de eventos através de outras grandezas (tais como eixo maior, eixo menor, área, etc) tornaria o problema, sem dúvida, mais complexo.

Além de ρ_f , uma outra grandeza que necessita ser determinada experimentalmente para que se possa obter o valor da taxa de fissão espontânea do U^{238} é aquela correspondente ao termo $n_i \epsilon_V \epsilon_0$ da eq. (2.3.3), designado por ρ_i , e que representa a parcela de ρ_f que é devida à fissão espontânea (e também à fissão induzida por raios cósmicos e neutrons de laboratório) do urânio e tório existentes como impurezas no vidro. O procedimento seguido na determinação de ρ_i consistiu simplesmente em examinar a superfície do vidro que não continha o filme de urânio; de maneira análoga àquela usada na obtenção de ρ_f , foram então determinados o número de eventos e de campos observados, e foram medidos o diâmetro ou eixos maior e menor de cada traço. A distribuição de frequência dos diâmetros foi então construída, tendo-se apenas o cuidado de normalizar a área varrida para o mesmo valor da área examinada na face oposta. As distribuições de diâmetros de traços (correspondentes a ρ_f e ρ_i) assim obtidas puderam então ser comparadas diretamente.

2.6 - Fissão Induzida por Neutrons de Laboratório e Raios Cômicos

Na Seção 2.3 foi mencionada a possibilidade de que os isótopos do urânio existentes no filme pudessem sofrer fissão induzida por neutrons de laboratório e raios cômicos. Nesta Seção faremos uma estimativa do número de eventos de fissão originados nestes processos, e que ocorreram durante o período de armazenamento.

Em nosso laboratório dispomos de um filme de Cf^{252} o qual, devido à sua atividade de fissão, foi considerado como a única fonte de neutrons com intensidade suficiente para induzir um número mensurável de fissões na película de urânio. Sejam N_0^{252} o número de átomos de Cf^{252} no instante inicial e t o tempo de exposição (no nosso caso, $t = 10,4$ anos). O número total de neutrons emitidos durante este tempo é dado por:

$$n = \int_0^t \bar{\nu} \lambda_f^{252} N_0^{252} e^{-\lambda_T^{252} t'} dt' = 2,49 \times 10^{13} \quad (2.6.1)$$

onde λ_T^{252} e λ_f^{252} são, respectivamente, as constantes de desintegração total e de fissão espontânea do Cf^{252} , e $\bar{\nu}$ é o número médio de neutrons emitidos por fissão, ao qual foi atribuído o valor 3,869, obtido por Diven e colaboradores (82). O número de neutrons com energia entre E e $E+dE$, que foram emitidos durante o referido intervalo de tempo, é então dado por:

$$dN_n = 2,49 \times 10^{13} \times 0,585 \sqrt{E} e^{-0,6456E} dE \quad (2.6.2)$$

onde a energia está expressa em MeV e o termo $0,585 \sqrt{E} e^{-0,6456E}$ é o espectro de neutrons da fissão espontânea do Cf²⁵², normalizado à unidade (60). Seja f a fração desses neutrons que incidiram em 1 cm^2 do filme de urânio, situado a uma distância mínima de $1,5 \text{ m}$ da fonte de Cf²⁵². Designando por $\sigma_f^{238}(E)$ a seção de choque de fissão do U²³⁸ para neutrons de energia E , e lembrando que $N \text{ C}^{238}$ é o número de átomos deste isótopo por centímetro quadrado*, podemos obter o número de fissões induzidas no U²³⁸ através de:

$$n_n^{238} = N C^{238} f \times 10^{-24} \int \sigma_f^{238}(E) dN_n = 1,643 \times 10^{-12} \int \sigma_f^{238}(E) dN_n \quad (2.6.3)$$

onde a seção de choque está expressa em barns (10^{-24} cm^2). Finalmente, substituindo-se dN_n pelo seu valor dado na eq. (2.6.2), obtemos:

$$n_n^{238} = 23,8 \int_0^{E_{\text{máx}}} \sigma_f^{238}(E) \cdot \sqrt{E} \cdot e^{-0,6456E} dE \quad (2.6.4)$$

onde $E_{\text{máx}}$ é a energia máxima do espectro de neutrons. O número de fissões induzidas por neutrons no U²³⁵ pode ser obtido substituindo-se, na eq. (2.6.4), $\sigma_f^{238}(E)$ por $\sigma_f^{235}(E)$ e multiplicando-se o resultado pela razão C^{235}/C^{238} . Por outro lado, como a razão C^{238}/C^{234} é da ordem de 10^4 , o número de fissões induzidas no U²³⁴ é desprezível quando comparado com o número correspondente ao U²³⁸, uma vez que as seções de choque de fissão (por neutrons) destes isótopos são aproximadamente iguais. O resultado

* O valor de N é $4,67 \times 10^{17}$ átomos de U/cm² (ver Capítulo III).

final obtido para a grandeza n_n da eq. (2.3.3) foi 18,2, correspondendo a 17,7 e 0,5 fissões por centímetro quadrado atribuídas, respectivamente, ao U^{238} e U^{235} .

Passemos agora ao cálculo do número de fissões induzidas no urânio do filme por raios cósmicos. A radiação cósmica ao nível do mar consiste, basicamente, de múons, neutrons, elétrons, prótons e pions carregados (83). O conhecimento do fluxo de cada um destes componentes, bem como das respectivas seções de choque de fissão dos isótopos do urânio, permitem-nos atribuir aos neutrons o total de fissões originadas mediante esse mecanismo (60, 83). Sendo t o tempo de exposição (15,75 anos) e $\phi(E)dE$ o fluxo de neutrons com energia entre E e $E+dE$, o número de fissões induzidas no U^{238} pode ser obtido de:

$$n_r^{238} = NC^{238}t \times 10^{-24} \int_0^{E_M} \sigma_f^{238}(E) \phi(E) dE \quad (2.6.5)$$

onde E_M é a energia máxima do espectro de neutrons da radiação cósmica. Na equação acima, t deve ser expresso em segundos, $\sigma_f^{238}(E)$ em barns, E em eV e $\phi(E)$ em neutrons/cm² seg eV. Substituindo-se C^{238} e $\sigma_f^{238}(E)$, respectivamente, por C^{235} e $\sigma_f^{235}(E)$, obtém-se o número de fissões induzidas no U^{235} . Por razões análogas às aquelas discutidas no parágrafo anterior, o número de eventos de fissão induzidos no U^{234} pode ser considerado desprezível. O resultado final assim obtido para a grandeza n_r da eq. (2.3.3) foi 0,4, correspondendo, respectivamente, a 0,21 e 0,19 fissões induzidas no U^{235} e U^{238} , por centímetro quadrado.

2.7 - Determinação das Eficiências

2.7.1 - Eficiências de Detecção de Traços de Fragmentos de Fissão em Vidro*

O método utilizado na determinação destas eficiências consistiu em irradiar uma amostra de vidro, no vácuo, com fragmentos de fissão espontânea de uma fonte puntiforme de Cf^{252} . Como essas eficiências variam sensivelmente com a composição do vidro usado como detetor⁽⁸⁴⁾, utilizou-se nesta experiência o mesmo vidro empregado na determinação da densidade de traços de fragmentos de fissão. Na Fig. 2.7.1 (a) é mostrado esquematicamente o dispositivo experimental usado durante a irradiação. A extremidade da agulha (que se encontrava presa ao parafuso) foi inicialmente atritada contra um filme de Cf^{252} , após o que o parafuso foi introduzido no suporte de luçite. A fim de determinar a distância h entre a agulha e o vidro (ver Fig. 2.7.1(b)), uma lâmina auxiliar de espessura previamente conhecida foi colocada sobre o vidro e o parafuso foi torcido lentamente até que a extremidade da agulha tocasse a superfície dessa lâmina a qual foi, em seguida, retirada. Após uma irradiação de aproximadamente 7 horas, o detetor foi mergulhado durante 30 minutos em ácido nítrico a 10%, na temperatura de $(60,0 \pm 0,5) ^\circ C$. Seguiu-se uma lavagem em água e em seguida procedeu-se à revelação do vidro em HF a 4,9%, durante 15 minutos a $26 ^\circ C$. Este procedimento visou submeter o detetor às mesmas condições de temperatura e de revelação usadas nas amostras

* Eficiência de detecção para o caso em que são analisados apenas traços circulares, e eficiência de detecção correspondente a todos os eventos (elípticos e circulares).

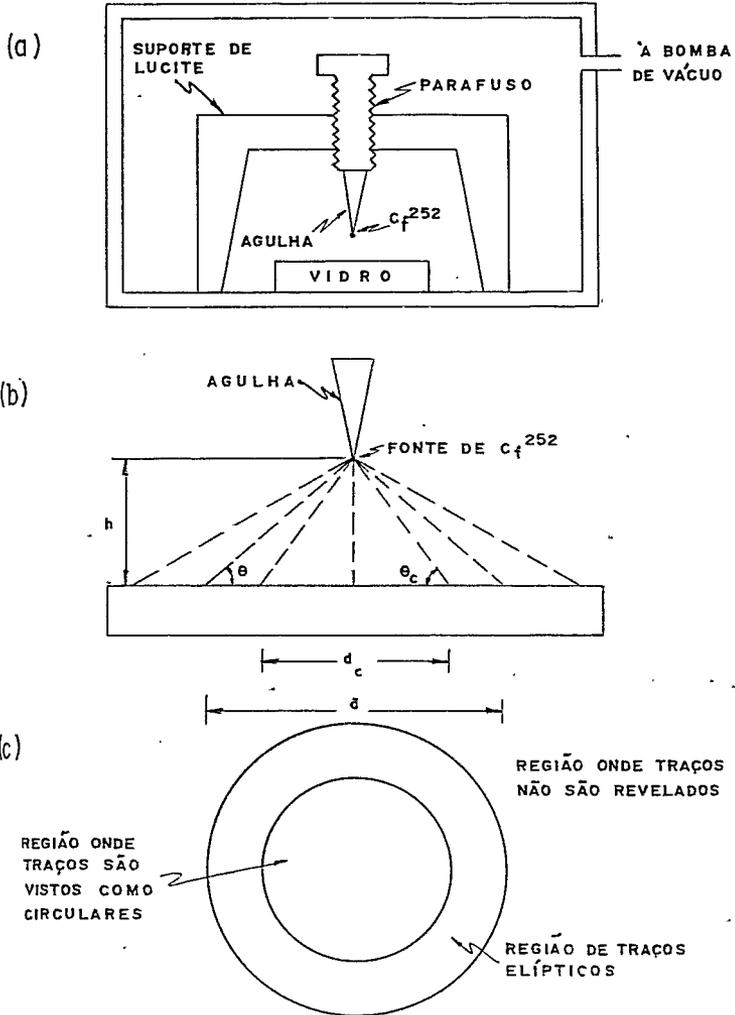


Figura 2.7.1 - Determinação experimental das eficiências de detecção de traços de fragmentos de fissão em vidro; (a) arranjo experimental ; (b) ângulos críticos de detecção; (c) regiões da superfície do vidro onde traços são observados como elípticos e circulares.

de vidro que continham urânio (ver a Seção 2.5).

Na observação dos traços de fragmentos de fissão do ^{252}Cf ao microscópio foi utilizado o mesmo sistema ótico empregado na determinação de ρ_f e ρ_i (Seção 2.5). A região na qual foram observados traços era delimitada por um círculo de diâmetro d cujo centro coincidia com a projeção vertical da extremidade da agulha na superfície do detetor (Figs. 2.7.1(b) e 2.7.1(c)). O ângulo crítico de detecção é dado por $\text{arc tg } (2h/d)$ e a eficiência de detecção pode ser obtida (ver Apêndice B) pela expressão:

$$\epsilon_v = \left\{ 1 - \text{sen} \left[\text{arc tg } (2h/d) \right] \right\} / 2 \quad (2.7.1.1)$$

Conforme foi discutido na Seção 2.5, em nossas análises foram considerados apenas os eventos circulares. A rigor, estes ocorreriam apenas quando a incidência de fragmentos de fissão fosse normal à superfície. Entretanto, devido a imperfeições inerentes à própria técnica de detecção e aos processos envolvidos (vidro, revelação, sistema ótico, observador), serão observados como circulares todos os traços de fragmentos que incidirem no detetor em ângulos de profundidade maiores que um certo valor θ_c , que será definido como o ângulo crítico de detecção de traços circulares. Sendo d_c o diâmetro da região da superfície do vidro na qual os eventos são observados como circulares (ver Figs. 2.7.1(b) e 2.7.1(c)), a eficiência de detecção de traços circulares, ϵ_c , será dada, analogamente à eq. (2.7.1.1), por:

$$\epsilon_c = \left\{ 1 - \text{sen} \left[\text{arc tg } (2h/d_c) \right] \right\} / 2 \quad (2.7.1.2)$$

Portanto, é este valor de ϵ_C que deverá ser usado, em lugar de ϵ_V , quando a eq. (2.3.3) for aplicada para a obtenção de λ_f .

2.7.2 - Eficiências de Observação de Traços

Como já mencionado nas Seções 2.3 e 2.4, o exame de traços ao microscópio acarreta em perdas de eventos por parte do observador. Na determinação da eficiência de contagem de cada microscopista empregou-se o método estatístico da dupla coincidência⁽⁸⁵⁾, o qual consiste na comparação dos mapeamentos dos traços encontrados por dois observadores que examinam, segundo o mesmo critério, uma determinada área. No caso dos traços de partículas alfa em emulsão nuclear, esse mapeamento foi relativamente simples de ser feito devido à rede de referência colada à superfície da emulsão. (ver Item 2.4.1). No caso de traços de fragmentos de fissão em vidro, entretanto, a natureza dos traços (ou buracos) não permitiu colar uma rede de referência à superfície do vidro. Com o objetivo de garantir que a mesma área fosse analisada pelos dois observadores, cada um examinava apenas uma pequena região do vidro (cerca de 16 campos consecutivos), a qual era logo em seguida varrida pelo outro observador.

O método da dupla coincidência permite determinar o número mais provável de eventos numa área examinada, bem como as eficiências dos observadores. Sejam T o número de traços existentes numa certa área do detetor e ϵ_A e ϵ_B , respectivamente, as eficiências individuais dos observadores A e B, definidas por:

$$\epsilon_A = \frac{N_A}{T} \quad \text{e} \quad \epsilon_B = \frac{N_B}{T} \quad (2.7.2.1)$$

onde N_A e N_B são os números de eventos encontrados, respectivamente, pelos observadores A e B. O número total de traços vistos após uma dupla observação, N_{A+B} , será então:

$$N_{A+B} = \epsilon_A T + (1 - \epsilon_A) T \epsilon_B = \epsilon_A T + \epsilon_B T - \epsilon_A \epsilon_B T \quad (2.7.2.2)$$

onde o termo $\epsilon_A \epsilon_B T$ representa o número de traços em comum, N_{AB} , que foram vistos pelos dois observadores. Utilizando as expressões para ϵ_A e ϵ_B dadas na eq. (2.7.2.1), e também o número de coincidências duplas ($N_{AB} = \epsilon_A \epsilon_B T$), obtemos finalmente:

$$\epsilon_A = \frac{N_{AB}}{N_B}, \quad \epsilon_B = \frac{N_{AB}}{N_A}, \quad T = \frac{N_A N_B}{N_{AB}} \quad (2.7.2.3)$$

O erro estatístico associado ao número mais provável de eventos, T , dado pela equação acima, é $\delta T = \sqrt{T [(1-\epsilon)/\epsilon]^2}$, onde $\underline{\epsilon}$ é a média aritmética das eficiências individuais ϵ_A e ϵ_B .

CAPÍTULO III

RESULTADOS EXPERIMENTAIS. DISCUSSÕES

3.1 - *Introdução*

Duas informações básicas são necessárias quando se pretende determinar experimentalmente a constante de desintegração do U^{238} por fissão espontânea: o número de átomos deste isótopo na amostra e o número de eventos de fissão acumulados num determinado intervalo de tempo*. Outras grandezas que também são importantes, e que dizem respeito ao método particular usado para a determinação de λ_f^{238} , são a radiação de fundo e as eficiências de detecção envolvidas. Na próxima seção apresentaremos os resultados experimentais obtidos para as grandezas envolvidas na determinação de λ_f^{238} pelo método de contagem de traços de fragmentos de fissão em vidro comum. O valor encontrado para λ_f^{238} é apresentado na seção 3.3, na qual é feita uma comparação com outros resultados experimentais, e também com cálculos teóricos e estimativas semi-empíricas, obtidos por outros autores. Os erros associados são analisados na seção 3.4 e, finalmente, na seção 3.5 são apresentadas as conclusões a que chegamos a partir dos

* Quando o tempo durante o qual o isótopo se desintegra é bem menor que a meia-vida total, o número de desintegrações (no caso, por fissão espontânea) é proporcional ao tempo e ao número de átomos.

resultados obtidos.

3.2 - Resultados Experimentais

3.2.1 - Número de Átomos de Urânio por Centímetro Quadrado

Conforme discutido na seção 2.4, dois métodos foram utilizados na determinação desta grandeza: simples pesagem e medida da atividade alfa do urânio com a técnica de emulsão nuclear. A aplicação do primeiro método requer o conhecimento da massa de UO_3 e da área da face do vidro na qual este óxido estava distribuído. O processo de Archimedes, quando aplicado na determinação desta área, forneceu o valor $A = (15,55 \pm 0,08) \text{cm}^2$. No item 2.4.2 foi mostrado que o valor de N pode ser obtido pela expressão:

$$N = 2,1056 \times 10^{21} \frac{\Delta M}{A} \quad (3.2.1.1)$$

A massa de óxido de urânio removida da superfície do vidro foi $\Delta M = (3,439 \pm 0,050) \times 10^{-3} \text{ g}$, correspondendo aos valores 7,554474 e 7,551035 gramas para as massas da lâmina de vidro com e sem o filme de urânio, respectivamente. O valor de N é, portanto, $(4,66 \pm 0,10) \times 10^{17}$ átomos de U/cm^2 , o que é equivalente a uma espessura de $(0,304 \pm 0,008) \mu\text{m}$ ou $(0,184 \pm 0,004) \text{mg}$ de U/cm^2 .

Uma vez que a espessura do filme é conhecida, podemos agora estimar sua influência na atenuação da energia das partí-

culas alfa emitidas pelos isótopos do urânio. Uma partícula alfa proveniente de um ponto vizinho ao vidro percorrerá, no óxido, uma distância igual à razão entre a espessura do filme e o seno do ângulo de profundidade (ângulo formado pela trajetória da partícula com a superfície do filme). Para ângulos da ordem de 10^0 a distância percorrida no óxido será de aproximadamente $1,75 \mu\text{m}$.

As partículas alfa do urânio ($\approx 4,5 \text{ MeV}$) perdem energia, ao penetrar na matéria, principalmente por ionização. A perda de energia por ionização de uma partícula carregada em um meio composto é discutida detalhadamente por Barkas⁽⁸⁶⁾. No intervalo de energia situado entre 3,6 e 4,8 MeV, a ionização de uma partícula alfa pode ser aproximada por:

$$I = - 0,0083E + 0,2496 \quad (3.2.1.2)$$

onde I está expressa em $\text{MeV}/\mu\text{m}$ e E em MeV. Tendo percorrido x milímetros, uma partícula alfa de energia cinética inicial E_0 terá uma energia dada por:

$$E = 30,1 + (E_0 - 30,1) e^{0,0083x} \quad (3.2.1.3)$$

Os isótopos U^{234} , U^{235} e U^{238} emitem partículas alfa com energias de 4,77, 4,40 e 4,20 MeV, respectivamente⁽⁸⁰⁾. Pela eq. (3.2.1.3) podemos ver que suas energias, após percorrerem $1,75 \mu\text{m}$ em UO_3 , diminuem para 4,4, 4,0 e 3,8 MeV. Essas considerações garantem a validade do método de contagem de traços de partículas alfa em emulsão nuclear, uma vez que todas as partículas que incidiram no detector em ângulos de profundidade maiores que 10^0 deram origem a traços.

O método da contagem de traços de partículas alfa do urânio em emulsão nuclear permite determinar N a partir da eq. (2.4.1.2). Resolvendo esta equação para N, obtemos:

$$N = \frac{2}{(\lambda_{\alpha}^{234} C^{234} + \lambda_{\alpha}^{235} C^{235} + \lambda_{\alpha}^{238} C^{238}) t_{\alpha} (\sin \beta_2 - \sin \beta_1)} \cdot \frac{\rho_{\alpha}}{\epsilon_{\alpha}} \quad (3.2.1.4)$$

onde o valor do termo $(\lambda_{\alpha}^{234} C^{234} + \lambda_{\alpha}^{235} C^{235} + \lambda_{\alpha}^{238} C^{238})$ é $6,0 \times 10^{-16} \text{ min}^{-1}$. O tempo de exposição foi $(430,33 \pm 0,08) \text{ min}$. No exame da película de emulsão foram observados 2572 eventos numa área de $(7,88 \pm 0,07) \times 10^{-2} \text{ cm}^2$ distribuída uniformemente na superfície da emulsão. Na Fig. 3.2.1.1 é apresentada a distribuição de ângulo de profundidade desses traços. Conforme indica a figura, 10° e 15° constituem a melhor escolha para os ângulos β_1 e β_2 , por razões estatísticas. Para os 553 eventos cujos ângulos de profundidade estavam situados neste intervalo foi feita a distribuição de comprimento dos traços mostrada na Fig. 3.2.1.2. O confronto desta figura com distribuições de alcance de partículas alfa do urânio em emulsão nuclear obtidos por outros autores (87, 88) permitiu selecionar, entre estes eventos, 361 traços de partículas alfa emitidas pelo urânio*. Usando o resultado de 88,9% para ϵ_{α} (ver item 3.2.2), obtemos para $\rho_{\alpha}/\epsilon_{\alpha}$ o valor $(5,15 \pm 0,07) \times 10^3 \text{ traços/cm}^2$. Os valores dessas grandezas, quando substituídos na eq. (3.2.1.4), conduzem ao resultado $(4,68 \pm 0,07) \times 10^{17}$ átomos de U/cm², o qual está em excelente acordo

* A correção devida à radiação de fundo foi considerada desprezível, uma vez que a densidade de traços (atribuíveis a partículas alfa do urânio) observados na chapa de emulsão não irradiada foi de apenas 5 traços/cm².

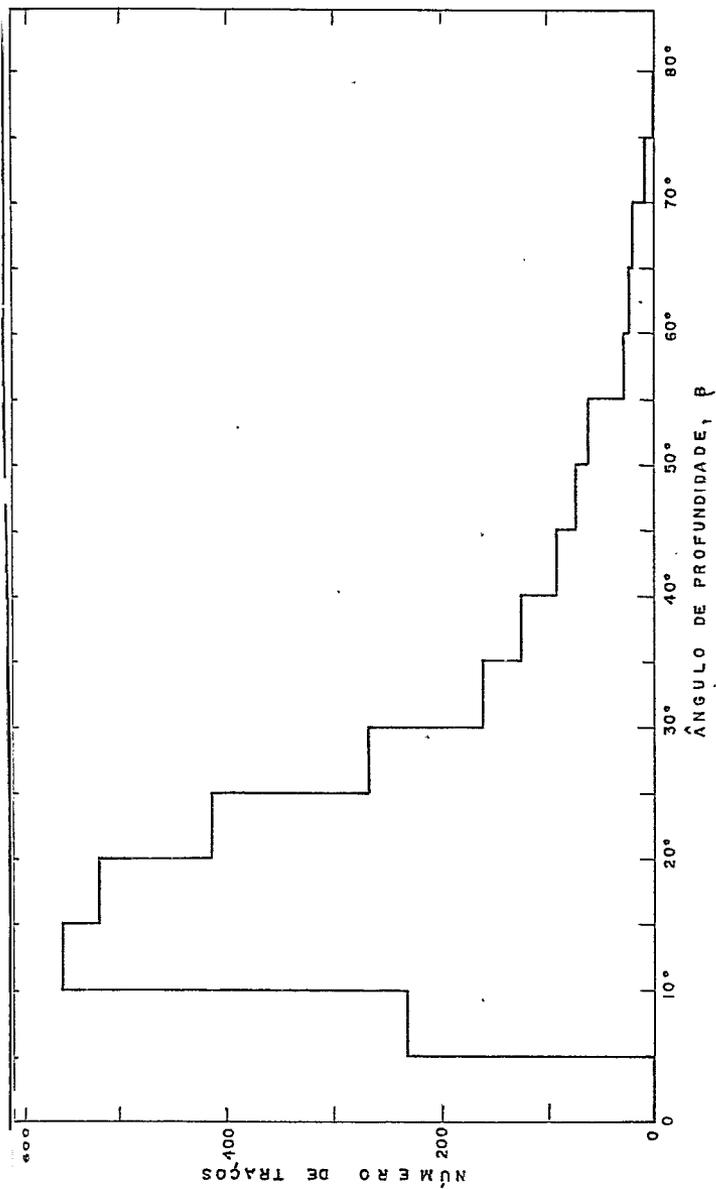


Figura 3.2.1.1.1 - Distribuição de ângulo de profundidade de traços de partículas alfa do urânio em emulsão nuclear.

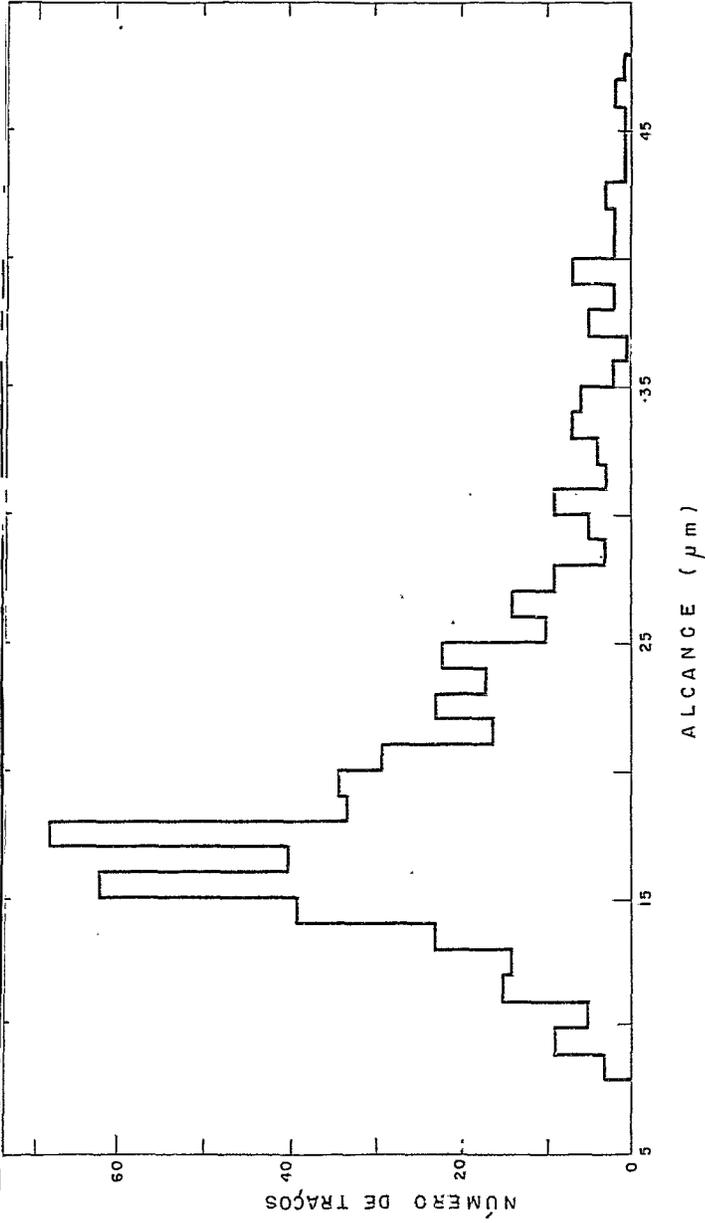


Figura 3.2.1.2 - Distribuição de alcance de partículas alfa do urânio em emulsão nuclear.

com aquele obtido pelo método da simples pesagem. Finalmente, apresentamos na Tab. 3.2.1.1 os resultados obtidos através desses métodos, indicando também qual o valor de N usado no presente trabalho.

TABELA 3.2.1.1 - Resultados das experiências de simples pesagem e medida da atividade alfa do urânio com emulsão nuclear.

MÉTODO	N (10^{17} átomos de U/cm^2)	Espessura do filme (μm)	Espessura do filme (mg de U/cm^2)
Simples pesagem	$4,66 \pm 0,10$	$0,304 \pm 0,008$	$0,184 \pm 0,004$
Emulsão Nuclear	$4,68 \pm 0,07$	$0,305 \pm 0,008$	$0,185 \pm 0,004$
Valor usado no presente trabalho	$4,67 \pm 0,09$	$0,304 \pm 0,008$	$0,185 \pm 0,004$

3.2.2 - Eficiências de Detecção e de Observação

Segundo o que foi discutido no item 2.7.1, o *ângulo crítico de detecção* do vidro soda-lime para fragmentos de fissão pode ser determinado a partir de:

$$\theta = \arcsin \left(\frac{2h}{d} \right) \quad (3.2.2.1)$$

onde a distância h entre a fonte puntiforme de Cf^{252} e a superfície do vidro foi de $(2016 \pm 1)\mu m$, e o diâmetro d da região onde foram observados traços foi de $(6100 \pm 200)\mu m$. O valor de θ é, portanto, $(33,5^\circ \pm 0,9^\circ)$, do que resulta um valor de $(22,4 \pm 0,7)\%$ para a *eficiência de detecção*, obtido a partir de $\epsilon_v = (1 - \sin\theta)/2$

(eq. (2.7.1.1))^{*}. Por outro lado, $(2520 \pm 140)\mu\text{m}$ foi o valor encontrado para o diâmetro da região na qual os eventos foram ob-servados como circulares. O ângulo crítico de detecção de traços circulares $\bar{\epsilon}$, portanto, $(58,0^\circ \pm 1,5^\circ)$, conduzindo ao resultado $(7,6 \pm 0,7)\%$ para a eficiência de detecção de traços circulares, obtido de $\epsilon_c = (1 - \text{sen } \theta_c)/2$.

O método da dupla coincidência descrito no ítem 2.7.2 foi utilizado na determinação da eficiência de observação de traços de partículas alfa do urânio em emulsão nuclear. O exame da mesma área da superfície da emulsão por dois observadores, A e B, forneceu os seguintes resultados: $N_A = 1373$, $N_B = 1441$ e $N_{AB} = 1281$, o que conduz aos valores de 88,9% e 93,3% para ϵ_A e ϵ_B , respectivamente. Na determinação de N por contagem de traços de partículas alfa do urânio, esta emulsão foi analisada pelo ob-servador A, razão pela qual foi atribuído o valor de 88,9% para ϵ_a .

A eficiência de observação de traços circulares de fragmentos de fissão em vidro também foi obtida com base no método estatístico da dupla coincidência. Numa experiência análoga à descrita no parágrafo anterior, as eficiências individuais de dois observadores, A e B, que analisaram a mesma área da superfície do vidro foram, respectivamente, 74% e 83%. Uma vez que as densidades ρ_f e ρ_i foram determinadas a partir da contagem de traços de fragmentos de fissão feita por A, o valor usado para a eficiência de observação destes traços, ϵ_0 , foi 74%. Os resultados obtidos para as eficiências de detecção e de observação

^{*} Definida deste modo, a eficiência de detecção representa a fração dos fragmentos de fissão emitidos que deram origem a traços revelados.

de traços de fragmentos de fissão em vidro encontram-se resumidos na Tab. 3.2.2.1.

TABELA 3.2.2.1 - Ângulos críticos e eficiências de detecção e de observação de traços de fragmentos de fissão em vidro comum.

ASPECTO DO TRAÇO	ÂNGULOS CRÍTICOS DE DETEÇÃO	EFICIÊNCIAS DE DETEÇÃO	EFICIÊNCIA DE OBSERVAÇÃO
Elíptico	$33,5^{\circ} \pm 0,9^{\circ}$	$(22,4 \pm 0,7)\%$	—
Circular	$58,0^{\circ} \pm 1,5^{\circ}$	$(7,6 \pm 0,7)\%$	74 %

3.2.3 - Densidades de Traços de Fragmentos de Fissão Observados no Vidro

Do exame da superfície do vidro que esteve em contato com o filme de urânio resultou uma densidade de 268 traços/cm², correspondendo a 853 eventos de fissão observados numa área de 3,18 cm² distribuída uniformemente na superfície do vidro. O número destes eventos que foram observados como circulares foi 354, o que conduz ao resultado de 111 traços circulares/cm². A distribuição de diâmetro obtida para estes eventos é mostrada na Fig. 3.2.3.1 e será discutida na próxima seção.

Quando a outra face da lâmina de vidro foi examinada, resultou uma densidade de 38 traços/cm², relativa a 61 eventos observados numa área de 1,59 cm². Como 45 eventos foram observados como circulares, o resultado obtido para a densidade destes foi de 28 traços circulares/cm². Esses resultados encontram-se resumidos na Tab. 3.2.3.1, na qual a face que continha o filme

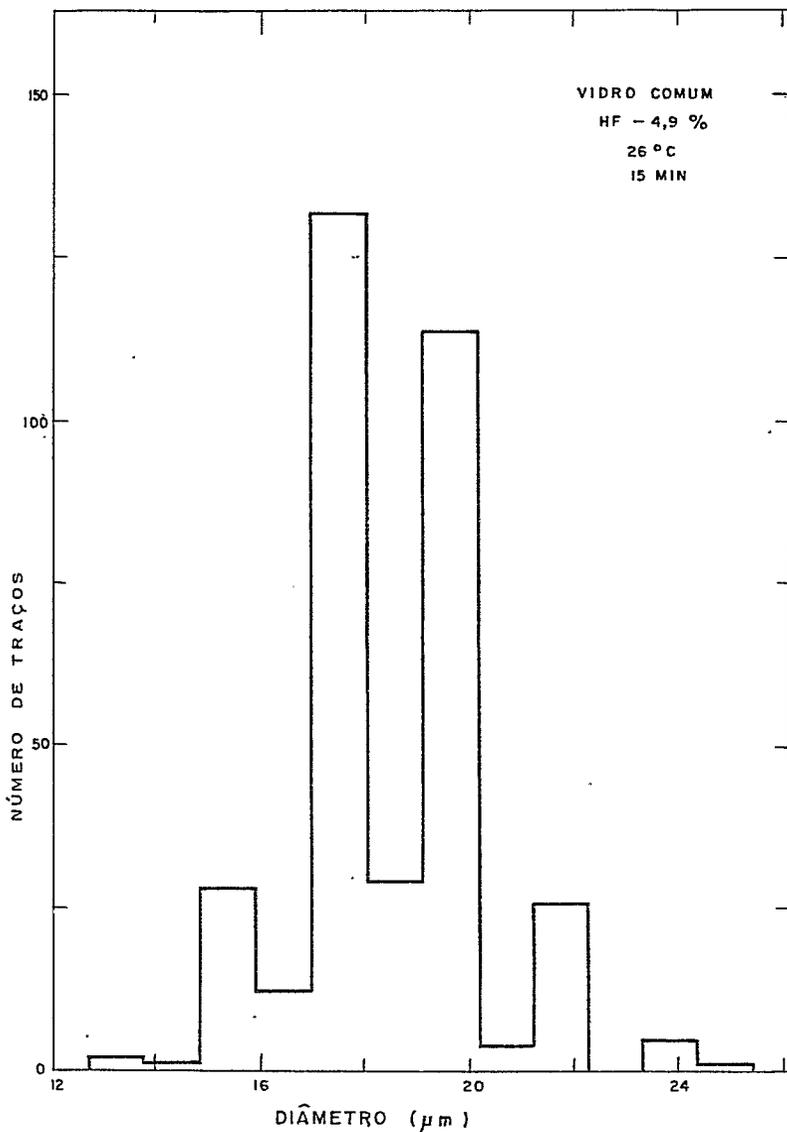


Figura 3.2.3.1 - Distribuição de diâmetro de traços de fragmentos de fissão em vidro comum.

de urânio foi designada por A, e a face oposta por B.

TABELA 3.2.3.1 - Número e densidade de traços de fragmentos de fissão observados na lâmina de vidro (a face A continha o filme de urânio).

Aspecto do traço	Nº de traços observados na face A	Nº de traços observados na face B	Densidade de traços observados na face A, $\rho_f(\text{cm}^{-2})$	Densidade de traços observados na face B, $\rho_i(\text{cm}^{-2})$
Elíptico	853	61	268	38
Circular	354	45	111	28

Antes de passarmos ao cálculo de λ_f^{238} a partir dos resultados mencionados neste e nos itens precedentes, é necessário estimar a influência da espessura do filme de urânio na atenuação da energia dos fragmentos de fissão. De modo análogo ao discutido no item 3.2.1, fizemos essa estimativa com base nas expressões fornecidas por Barkas⁽⁸⁶⁾ para a perda de energia por ionização de uma partícula carregada em um meio composto. Usando estas expressões, traçamos a curva de ionização do Sr^{96} no trióxido de urânio*, a qual, no intervalo de energia 70 - 100MeV, pode ser aproximada por:

$$I (\text{MeV}/\mu\text{m}) = 0,086 E (\text{MeV}) + 5,076 \quad (3.2.3.1)$$

Após percorrer x microns, sua energia cinética diminui para:

* Sr^{96} é um dos núclídeos de maior rendimento observado na fissão espontânea do U^{238} .

$$E(\text{MeV}) = (E_0 + 59) e^{-0,086x} - 59 \quad (3.2.3.2)$$

onde E_0 é a energia cinética inicial do fragmento*. Supondo que este seja emitido de um ponto situado na face do filme oposta ao vidro, o valor de x é de 0,55 μm para um ângulo de profundidade igual ao *ângulo crítico de detecção* ($\theta = 33,5^\circ$). Nesta condição, a eq. (3.2.3.2) fornece o valor de 93 MeV para a energia cinética com a qual o fragmento incide na superfície do vidro. Por outro lado, o uso da eq. (3.2.3.1) conduz ao resultado de 13MeV/ μm para a ionização, um valor ainda bem acima da ionização limiar do vidro soda-lime (ver Apêndice B). Portanto, todos os fragmentos emitidos segundo ângulos de profundidade maiores que o *ângulo crítico de detecção* foram revelados**.

3.3 - Constante de Desintegração do U^{238} por Fissão Espontânea.

O método experimental utilizado no presente trabalho permite obter a constante de desintegração do U^{238} por fissão espontânea a partir da eq. (2.3.3). Resolvendo esta equação para λ_f^{238} , obtemos:

$$\lambda_f^{238} = \frac{1}{NC^{238}t_f} \left[\frac{1}{2\epsilon_V} \left(\frac{\rho_f - \rho_i}{\epsilon_0} \right) - (n_r + n_n) \right] \quad (3.3.1)$$

onde o termo $n_i \epsilon_V \epsilon_0$ daquela equação foi substituído por ρ_i (ver seção 2.5). O tempo t_f foi de $(15,75 \pm 0,08)$ anos (seção 2.3),

* Para o Sr^{96} o valor de E_0 é 100 MeV.

** Por mais forte razão esta afirmação também é correta para fragmentos de fissão que foram emitidos segundo ângulos de profundidade superiores ao ângulo crítico de detecção de traços circulares.

e o resultado de 18,6 eventos de fissão/cm² foi estimado para o termo $(n_r + n_n)^*$. As densidades de traços de fragmentos de fissão são observados nas faces A e B (ρ_f e ρ_i , respectivamente), bem como as eficiências de detecção (ϵ_v) e de observação (ϵ_0) foram obtidas na seção anterior, na qual foi apresentado também o resultado encontrado para o número de átomos de urânio por centímetro quadrado, N. O valor de λ_f^{238} tanto pode ser calculado a partir das grandezas ρ_f , ρ_i e ϵ_v correspondentes aos traços circulares, como a partir daquelas referentes a traços de qualquer forma (elípticos e circulares). Os resultados finais obtidos para λ_f^{238} por um ou outro destes métodos encontram-se resumidos na Tab. 3.3.1 (as incertezas atribuídas aos valores de λ_f^{238} serão discutidas na próxima seção).

TABELA 3.3.1 - Resultados para λ_f^{238} obtidos por contagem de traços de fragmentos de fissão em vidro comum (a lâmina de vidro esteve em contato durante 15,75 anos com um filme de urânio natural contendo $4,67 \times 10^{17}$ átomos de U/cm²).

Aspecto do traço	Eficiência de Detecção	Densidade de traços na face A, ρ_f/ϵ_0 (cm ⁻²)	Densidade de traços na face B, ρ_i/ϵ_0 (cm ⁻²)	λ_f^{238} (10^{-17} ano ⁻¹)
Circular	(7,6 ± 0,7)%	150 ± 2	38 ± 1	9,8 ± 1,4
Elíptico	(22,4 ± 0,7)%	363 ± 3	52 ± 1	9,3 ± 0,6

* Referente aos eventos de fissão induzidos no urânio do filme por raios cósmicos e neutrons de laboratório (seção 2.6).

Analisemos agora a distribuição de diâmetro de traços apresentada na Fig. 3.2.3.1. Alguns trabalhos recentes sugerem a possibilidade de que o U^{238} , além de sofrer fissão espontânea, seja também um emissor de íons pesados (38,89). A partir de cálculos baseados no modelo de camadas, Săndulescu e colaboradores (89) obtiveram uma curva para a distribuição de massa na fissão espontânea do U^{238} que apresenta um aspecto notável: fragmentos com números de massa em torno a 68 (e seus simétricos com $A \approx 170$), seriam emitidos com um rendimento percentual de aproximadamente 1,5 % e, portanto, várias ordens de grandeza maior que o resultado que seria obtido pela extrapolação da Fig. 1.1.1. Por outro lado, usando o método WKB de penetração de barreira de potencial, de Carvalho e colaboradores (38) calcularam as constantes de desintegração para alguns modos de emissão espontânea de íons pesados pelo U^{238} . Para os produtos Ca^{48} e Ni^{66} , por exemplo, os resultados assim obtidos foram, respectivamente, da ordem de 10^{-16} e 10^{-22} ano⁻¹. Principalmente no caso do Ca^{48} esse modo de emissão competiria com a desintegração por fissão espontânea. Segundo estimativas dos mesmos autores, as energias cinéticas destes íons seriam de ≈ 70 MeV para o Ni^{66} e ≈ 40 MeV para o Ca^{48} . Os diâmetros dos traços que esses íons deixariam em vidro podem ser inferidos a partir do trabalho de Lecerf e Pēter (90), que irradiaram lâminas de vidro sodalime com íons de C^{12} , O^{16} , Ne^{20} , Ar^{40} , níquel natural e Kr^{84} de diferentes energias, revelando em seguida em condições de ataque (HF - 4,5%, 21°C, 21 min) semelhantes às nossas. Os diâmetros observados para traços de íons de níquel a 70 MeV foram de aproximadamente 16,5 μm ; uma interpolação das curvas obtidas por esses autores para o diâmetro dos diversos íons em função da energia permite-nos situar em torno a 14 μm o diâmetro do traço do íon Ca^{48} .

a 40 MeV. Höpner e colaboradores ⁽⁹¹⁾, irradiando o mesmo tipo de vidro com fragmentos de fissão, obtiveram diâmetros de aproximadamente 18 μ m usando condições de revelação semelhantes, o que está em bom acordo com o pico mais destacado da Fig. 3.2.3.1. Essas considerações parecem sugerir, após um exame desta figura, que os traços em torno a 15,5 μ m poderiam ser atribuídos a íons menos ionizantes que os fragmentos da fissão espontânea do U²³⁸. Entretanto, distribuições de diâmetro de traços de fragmentos de fissão em vidro comum, obtidos recentemente por Bellini e outros ⁽⁹²⁾, apresentam uma grande largura, estendendo-se no intervalo 8-17 μ m, com valor médio em torno de 13 μ m. O fato do diâmetro médio na Fig. 3.2.3.1, ser de aproximadamente 18 μ m é indicativo de uma revelação mais forte. Sabendo-se que as diferenças de diâmetro entre os traços dos fragmentos leve e pesado da fissão aumenta com o tempo de ataque ⁽⁹¹⁾, torna-se explicável a grande largura na distribuição de diâmetro mostrada na figura. Além disso, Bellini e colaboradores ⁽⁹²⁾ não notaram qualquer anomalia em suas distribuições, o que pode ser atribuído, no nosso caso, à menor quantidade de eventos. Com base na discussão acima, resolvemos então considerar todos os eventos observados como sendo referentes a traços de fragmentos de fissão.

Conforme mencionado anteriormente, os resultados para λ_f^{238} apresentados na Tab. 3.3.1 referem-se ao caso em que apenas são considerados eventos circulares e a situação onde traços de qualquer forma são analisados. A conclusão de que todos os traços correspondem a eventos de fissão permite considerar igualmente confiáveis os resultados obtidos por um ou outro desses métodos. Apesar de os traços elípticos terem possivelmente uma menor eficiência de contagem (ver seção 2.5), por outro lado algumas vantagens

são obtidas quando todos os eventos são considerados: eficiência de detecção obtida com maior precisão e a maior quantidade de eventos disponíveis para a determinação de ρ_f e ρ_j .

Finalmente, o resultado obtido no presente trabalho para a constante de desintegração do U^{238} por fissão espontânea (a média entre os valores da Tab. 3.3.1) é comparado, na Tab.3.3.2, com resultados experimentais, cálculos teóricos e estimativas semi-empíricas de outros autores. Como vemos, as discordâncias dos resultados de cálculos teóricos e estimativas semi-empíricas com os valores experimentais é muito grande. O nosso resultado está em bom acordo, levando-se em consideração as incertezas envolvidas, com os de outros autores que também usaram o vidro como detetor (37,39) e com o trabalho recente de D.M.C.Rizzo (40) usando

TABELA 3.3.2 - Comparação do resultado experimental encontrado para λ_f^{238} no presente trabalho com os obtidos por outros autores. São mostrados também os valores correspondentes das meias-vidas de fissão espontânea, encontrados a partir de $T_{1/2} = \ln 2 / \lambda_f^{238}$.

Autores	Método	$\lambda_f (10^{-17} \text{ano}^{-1})$	$T_{1/2} (10^{15} \text{anos})$	Ref.
Thiel e Herr	Vidro	$8,57 \pm 0,42$	$8,09 \pm 0,40$	39
Wagner et al.	Vidro	$8,7 \pm 0,6$	$8,0 \pm 0,6$	37
Khan e Durrani	Mica	$6,82 \pm 0,55$	$10,2 \pm 0,8$	33
de Carvalho et al.	Emuls.Nucl.	$11,6 \pm 0,8$	$6,0 \pm 0,4$	38
Ishimori et al.	Radioquímica	$9,64 \pm 0,05$	$7,19 \pm 0,16$	22
D.M.C. Rizzo	Câm. de Ioni zação (U_3O_8 em suspensão)	$10,24 \pm 0,22$	$6,77 \pm 0,15$	40
Frankel e Metropolis	} cálculos teóricos baseados no modelo da gota líquida	10^{-9}	10^{11}	64
Randrup et al.		10^5	10^{-3}	74
Swiatecki	estimativa semi-empírica	21	3,3	77
Presente Trabalho	Vidro	$9,6 \pm 1,0$	$7,2 \pm 0,8$	-

do uma câmara de ionização especial. Entretanto, há uma pequena discordância entre o nosso resultado e os encontrados por Khan e Durrani⁽³³⁾ e por de Carvalho e colaboradores⁽³⁸⁾, que usaram mica e emulsão nuclear, respectivamente, como detetores. Por outro lado, um excelente acordo pode ser observado entre o resultado do presente trabalho e aquele obtido por Ishimori e outros⁽²²⁾ com a técnica de radioquímica.

3.4 - Análise de Erros

3.4.1 - Erros Sistemáticos

Examinemos agora a possibilidade de ocorrência de erros sistemáticos nas diversas etapas do procedimento experimental. Consideremos, em primeiro lugar, as experiências realizadas com o objetivo de determinar N . No método da simples pesagem um erro sistemático poderia ocorrer se, entre a primeira e a segunda pesagem houvesse perda de pequenas partículas de vidro, o que conduziria a um resultado superestimado para N . O extremo cuidado no manuseio e transporte da lâmina de vidro torna essa hipótese bastante improvável. O valor de N determinado por este método e pela medida da atividade alfa do urânio com emulsão nuclear representa apenas um valor médio para o número de átomos existentes numa certa área. Entretanto, o exame do mapeamento de traços de partículas alfa não apresentou qualquer flutuação considerável no número de eventos observados por campo, o que sem dúvida é uma indicação de que o filme era suficientemente uniforme. Além disso, flutuações porventura existentes na espessura do filme afetariam igualmente os valores das densidades de traços de par-

tículas alfa em emulsão nuclear e de traços de fragmentos de fissão em vidro. A região analisada para a contagem de traços de fragmentos de fissão foi a que esteve em contato com aquela examinada na emulsão quando da contagem de traços de partículas alfa. Deste modo, podemos desprezar os efeitos da variação na espessura do filme. Finalmente, o excelente acordo entre os valores obtidos para N por dois processos totalmente independentes constitui uma forte indicação de que os erros sistemáticos foram desprezíveis nessas experiências.

Em segundo lugar, é possível que o valor calculado para o número de eventos de fissão induzidos no urânio por neutrons de laboratório esteja ligeiramente superestimado. Entretanto, um exame da eq. (3.3.1) mostra que uma flutuação de 50% no termo $(n_r + n_n)$ acarreta uma variação de apenas 1% no valor de λ_f^{238} , sendo muito menor, portanto, que o erro total associado a esta grandeza, que foi de 10,4%. Além disso, a possibilidade de neutrons emitidos pelo Cf^{252} incidirem no filme após sofrerem espalhamentos sucessivos torna extremamente improvável uma flutuação tão grande no valor do termo $(n_r + n_n)$. Deste modo, erros sistemáticos associados com a grandeza n_n também podem ser considerados desprezíveis.

Na determinação da densidade de traços de fragmentos de fissão na face do vidro que continha o filme de urânio, uma possibilidade de ocorrência de erro sistemático diz respeito ao valor da área examinada e é comumente designada por "efeito de borda". A maioria dos eventos observados numa determinada área correspondente a fragmentos de fissão emitidos pelos átomos situados na correspondente região do filme. Entretanto, há a possibilidade de que fragmentos emitidos na periferia desta região incidam na área

examinada, sendo também possível que fragmentos originados na região do filme acima da área analisada incidam no vidro em posições externas a esta. O primeiro efeito predomina sobre o segundo, significando que o número de eventos observados numa determinada área é ligeiramente maior que o número de fragmentos de fissão emitidos da correspondente região do filme. No nosso caso, sendo grande o número de campos examinados e muito pequena a espessura do filme, podemos considerar como desprezíveis os efeitos de borda, mesmo levando-se em conta ângulos de profundidade da ordem de 30° *.

Finalmente, foi descartada também a possibilidade de erros sistemáticos na determinação das eficiências de detecção, uma vez que a análise dos traços foi realizada em condições idênticas às aquelas utilizadas na obtenção de ρ_f e ρ_i (condições de revelação, observador e sistema ótico). A incerteza no valor de λ_f^{238} é, portanto, de origem puramente estatística e será discutida no próximo item.

3.4.2 - Erros Estatísticos

O erro total atribuído ao valor de λ_f^{238} foi obtido aplicando-se as fórmulas usuais de propagação de erros à eq. (3.3.1). As incertezas associadas com N e t_f levam, respectivamente, a erros de 1,9% e 0,5% no valor de λ_f^{238} . Para traços circulares, as flutuações nos valores de ϵ_f , ρ_f/ϵ_0 e ρ_i/ϵ_0 contribuem, respectivamente, com 9,5%, 1,8% e 0,9% do valor da constante

* Também no caso de partículas alfa em emulsão nuclear podemos desprezar a influência destes efeitos.

de desintegração. O erro total de λ_f^{238} quando se consideram apenas eventos circulares é, portanto, da ordem de 14%, sendo devido principalmente à grande imprecisão na medida do *ângulo crítico de detecção de traços circulares*. No caso em que todos os traços são considerados, as flutuações nos valores de ϵ_v , ρ_f/ϵ_0 e ρ_i/ϵ_0 conduzem, respectivamente, a erros de 3,2%, 1,0% e 0,3% no resultado encontrado para a constante de desintegração, sendo de aproximadamente 6,5% o erro total. É importante observar a grande redução no erro total, em consequência das menores incertezas envolvidas nos valores de ϵ_v , ρ_f/ϵ_0 e ρ_i/ϵ_0 quando se levam em conta eventos circulares e elípticos.

3.5 - Conclusões

Em virtude do pequeno valor da constante de desintegração do U^{238} por fissão espontânea, e da natureza estatística deste fenômeno, uma boa precisão na determinação experimental da referida constante requer um longo tempo de exposição e uma grande quantidade de átomos para que se acumule um número suficiente de eventos. No presente trabalho estas condições foram razoavelmente satisfeitas com uma lâmina de vidro exposta durante cerca de 16 anos a um filme de urânio com espessura aproximada de 0,19 mg de U/cm^2 . A utilização do vidro como detetor dos fragmentos de fissão espontânea apresenta a grande vantagem de eliminar completamente a presença do fundo indesejável de aproximadamente 10^6 partículas alfa por evento de fissão, uma vez que o vidro não registra traços destas partículas.

A análise dos resultados do presente trabalho nos per-

mitiu concluir que:

- 1) O valor encontrado para λ_f^{238} , $(9,6 \pm 1,0) \times 10^{-17} \text{ ano}^{-1}$, apresenta um bom acordo, levando-se em consideração as incertezas envolvidas, com os resultados experimentais obtidos por outros autores que utilizaram vidro^(37,39) e câmara de ionização⁽⁴⁰⁾, e um excelente acordo com o resultado de Ishimori e outros⁽²²⁾ utilizando o método radioquímico. No entanto, uma pequena discrepância é observada em relação aos valores obtidos com mica⁽³³⁾ e emulsão nuclear⁽³⁸⁾.
- 2) Os erros sistemáticos cometidos nas diversas etapas do procedimento experimental foram considerados desprezíveis face aos erros estatísticos das medidas. Estes são devidos, principalmente, às flutuações nos valores das eficiências de detecção, sendo muito maiores quando se levam em conta apenas eventos circulares do que no caso em que todos os eventos são considerados.
- 3) A distribuição de diâmetro de traços de fragmentos de fissão em vidro, obtida nas condições da presente experiência, não apresentou qualquer evidência clara sobre a detecção de fragmentos nucleares de massa e energia inferiores a de fragmentos de fissão. Caso ocorresse uma possível emissão espontânea de íons pesados pelo urânio^(38,89), podemos concluir que o vidro não é um detetor apropriado para este tipo de investigação.

APÊNDICE A

PREPARAÇÃO DE FILMES DE URÂNIO

As películas de urânio usadas em nossas experiências foram preparadas segundo a técnica descrita por de Carvalho e da Silva⁽⁹³⁾, e também por Yagoda⁽⁹⁴⁾. O procedimento usado na preparação desses filmes consiste nas seguintes etapas:

- 1) - Uma quantidade conhecida de óxido de urânio puro é convertida em nitrato de uranila, o qual é dissolvido em álcool absoluto.
- 2) - Prepara-se uma solução de Colódio ou Parlódio a 1% em volumes iguais de álcool e éter.
- 3) - As duas soluções são então misturadas, de tal forma que os pesos de nitrato de uranila e de Colódio (ou Parlódio) sejam aproximadamente iguais.
- 4) - Um volume conhecido desta mistura (cerca de 1,00 ml) é vertido, com o auxílio de uma pipeta, sobre uma placa de vidro (de aproximadamente 40 cm²) mantida horizontalmente. Após a evaporação dos solventes, obtêm-se um filme fino. A função do Colódio é impedir uma migração pronunciada do nitrato de uranila em direção às bordas da placa.
- 5) - Em seguida, a placa de vidro é colocada em um forno, e a

temperatura é elevada lentamente até cerca de 600 °C. A vantagem do uso do Colóidio reside no fato de que a sua queima não é violenta e também não deixa cinzas. A utilização de temperatura elevada requer obtivamente o uso de vidro com alto ponto de fusão.

- 6) - A placa de vidro é mantida no forno durante o tempo necessário para a formação de óxido de urânio.

O procedimento acima pode ser repetido sucessivamente quando se pretende obter filmes espessos. Contudo, películas com espessuras maiores que 1 mg/cm^2 costumam reticular.

Dependendo da temperatura e do tempo de permanência no forno, obter-se-á um ou outro dos óxidos UO_3 e U_3O_8 . No caso dos filmes usados no presente trabalho, a coloração final (amarela avermelhada) foi uma indicação da presença de UO_3 .

Quando se pretende realizar trabalho quantitativo com esses filmes, a quantidade de urânio pode ser determinada por medida volumétrica, pesagem ou contagem de partículas alfa.

APÊNDICE B

O VIDRO COMO DETETOR DE FRAGMENTOS DE FISSÃO

B.1 - *Histórico*

Em 1958 apareceu a primeira informação da descoberta, por Young⁽⁵⁸⁾, de traços deixados por fragmentos de fissão no cristal de fluoreto de lítio (LiF). Ele demonstrou que esses traços tornavam-se visíveis ao microscópio ótico quando o fluoreto de lítio, após a irradiação, era imerso num solvente químico apropriado. Young descreveu também um mecanismo para a formação dos traços cujo princípio era idêntico ao desenvolvido posteriormente por Fleischer e colaboradores⁽⁹⁵⁾.

Em 1959, Silk e Barnes⁽⁹⁶⁾ publicaram uma série de fotografias obtidas com o microscópio eletrônico, nas quais são mostrados os traços deixados em folhas de mica pela passagem de fragmentos de fissão. É interessante lembrar que durante algum tempo o trabalho de Young permaneceu desconhecido. Isso explica porque diversos autores têm atribuído erroneamente a Silk e Barnes a descoberta de traços de partículas carregadas em sólidos.

Em 1962, Price e Walker⁽⁹⁷⁾ irradiaram folhas de mica com partículas carregadas; observaram então que os traços deixados por tais partículas tornavam-se visíveis ao microscópio ótico quando a mica, após a irradiação, era imersa em ácido fluo-

hídrico (HF).

Um avanço importante na técnica de detetores sólidos de traços de partículas carregadas foi obtido em 1963 e 1964, quando Fleischer e Price observaram (após o ataque químico) traços de partículas carregadas em polímeros⁽⁹⁸⁾, vidro⁽⁹⁹⁾ e minerais⁽¹⁰⁰⁾.

Sabemos atualmente que cerca de 150 substâncias isolantes registram traços de partículas carregadas, os quais podem ser observados ao microscópio ótico após o ataque químico⁽¹⁰¹⁾. Esta técnica de detecção tem sido aplicada em diversas áreas do conhecimento científico, tais como: tecnologia nuclear, geocronologia⁽¹⁰²⁾, física dos raios cósmicos, evolução humana, tecnologia biomédica⁽¹⁰³⁾, etc.

O que se segue é uma descrição sucinta de aspectos gerais da detecção de partículas carregadas em sólidos dielétricos. Como o vidro foi o detector usado em nossas experiências, daremos a ele uma ênfase maior em nossa abordagem*.

B.2 - Traços de Partículas Carregadas em Vidro

B.2.1 - Formação do Traço e Ataque Químico

Uma partícula carregada, ao penetrar num sólido isolante, provoca o aparecimento de uma região intensamente danificada ao longo de sua trajetória. A questão do mecanismo de formação de traços foi estudada em 1965 por Fleischer e colaboradores⁽⁹⁵⁾,

* Um tratamento mais geral, abrangendo os demais detetores deste tipo, pode ser encontrado em Fleischer et al.⁽¹⁰¹⁾.

que apresentaram uma explicação baseada no que eles chamaram de "the ion-explosion-spike-model". De acordo com este modelo, uma partícula carregada positivamente e em alta velocidade ioniza os átomos ao longo de sua trajetória no sólido isolante. No caso de um sólido cristalino, a repulsão mútua entre esses átomos destrói a estrutura da rede. No caso de sólidos amorfos tais como vidros (naturais ou artificiais) e plásticos, o processo é ligeiramente diferente, ocorrendo uma quebra de ligações químicas. Quando o sólido em questão é um metal ou um bom semi-condutor não há a formação do traço. A possível explicação para este fato é a grande mobilidade dos elétrons nos condutores, o que lhes permite neutralizar os átomos de um traço incipiente antes que ele possa se formar.

O traço formado segundo o mecanismo descrito acima tem cerca de 100 \AA de diâmetro e é visível apenas ao microscópio eletrônico (em aumentos da ordem de $10^5 \times$). Quando o detetor é imerso num banho químico conveniente (ácido fluorídrico para vidro e mica, hidróxido de sódio para plásticos, etc), a região danificada que intercepta a superfície é rapidamente dissolvida em virtude da reatividade nessa região ser bem mais elevada que nas regiões não danificadas do detetor. Essa maior reatividade ao longo do traço ocorre tanto nos casos onde há quebra de ligações químicas (vidros, plásticos, etc) como naqueles onde a rede cristalina é destruída (mica, quartzo, zircão, etc). Quando os limites da região avariada são atingidos, a taxa de dissolução diminui e o solvente começa então a atacar as regiões não danificadas em torno do traço da partícula. Dessa forma pode-se atingir diâmetros da ordem de 10^4 ou 10^5 \AA ; como este valor é comparável ao comprimento de onda da luz visível, os traços ampliados poderão

ser vistos ao microscópio ótico (em aumentos da ordem de $10^3 \times$).

B.2.2 - Aspecto do Traço e Condições de Ataque Químico

A forma dos *traços revelados* de partículas carregadas em sólidos isolantes depende principalmente do sólido, das condições de revelação e da natureza da partícula. A revelação do traço consiste na ação simultânea de dois processos: dissolução química do material ao longo do traço da partícula numa velocidade V_T , e dissolução química do material não danificado numa velocidade menor V_G (taxa com a qual a superfície do sólido e as paredes interiores do traço são dissolvidas). Em alguns materiais as regiões avariadas são dissolvidas muito mais rapidamente do que o resto da amostra ($V_T \gg V_G$). Neste caso os traços adquirem uma forma aproximadamente cilíndrica (traços de fragmentos de fissão em mica e makrofol, por exemplo). Em outros sólidos, a velocidade de ataque ao longo do traço não é muito diferente da velocidade de dissolução do material não danificado ($V_T > V_G$); os traços resultantes adquirem então a forma muito aproximada de um cone, que será visto no microscópio como um círculo ou uma elipse, dependendo de a incidência ter sido normal ou oblíqua à superfície do detetor. É o caso, por exemplo, de traços de fragmentos de fissão em vidro e de partículas alfa em nitrato de celulose.

O problema da escolha das melhores condições de revelação dos traços de determinada partícula num dado detetor, isto é, qual o melhor solvente químico, sua concentração e temperatura, e durante quanto tempo deve agir, é basicamente um problema de tentativa e erro. Alguns minerais, tais como mica e apatita,

podem ser revelados com ácidos comuns (ácido fluorídrico, por exemplo) em temperatura ambiente; o mineral feldspato requer bases fortes e altas temperaturas e o zircão resiste ao ácido fosfórico aquecido a mais de 480 °C. Muitos plásticos, por outro lado, podem ser atacados facilmente com NaOH⁽¹⁰³⁾.

Traços de fragmentos de fissão já foram revelados numa infinidade de detetores e as melhores condições de ataque químico para cada um deles foram estabelecidas. Para o vidro soda-lime* (vidro de janela ou vidro comum) Fleischer e colaboradores⁽¹⁰¹⁾ recomendam o seguinte procedimento para a revelação de traços de fragmentos de fissão: ácido fluorídrico a 48%, durante 5 segundos a 23 °C; um outro procedimento também muito usado é HF a 5%, durante 2 minutos a 23 °C.

B.2.3 - Geometria do Traço

Examinemos agora alguns aspectos geométricos de traços de partículas carregadas num sólido isolante. Suponhamos que V_G seja constante e isotrópica, o que sem dúvida é correto para sólidos não cristalinos⁽¹⁰¹⁾. Caso t (tempo de revelação) seja suficientemente pequeno, o que significa considerarmos curtas distâncias de revelação ($V_T t$) ao longo do traço, V_T será também constante. Nestas condições, o traço de uma partícula que incidiu normalmente no detetor tem o aspecto mostrado na Fig. B.2.3.1(a). O ângulo de cone, θ (dado por $\text{arc sen } V_G/V_T$), será tanto menor quanto maior for V_T em relação a V_G . Um exame desta figura nos -

* Vidro usado em nossas experiências.

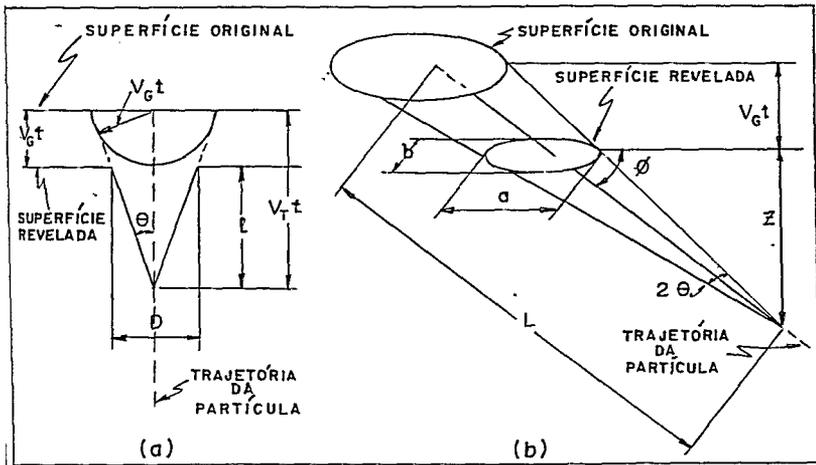


Figura B.2.3.1 - Geometria de traços de partículas carregadas em sólidos isolantes, para o caso em que V_G e V_T são constantes - (a) partícula incidente normalmente; (b) partícula incidente em um ângulo de profundidade ϕ .

tra que as quantidades mensuráveis diretamente, o diâmetro (D) e o comprimento visível do traço (l), são dados por:

$$l = (V_T - V_G)t \quad (B.2.3.1)$$

$$D = 2V_G t \sqrt{(V_T - V_G)/(V_T + V_G)} \quad (B.2.3.2)$$

Como era de se esperar, tanto l como D se anulam para $V_T = V_G$. A equação para l é válida quando $V_T t < R$, onde R é a distância ao longo da qual V_T é constante. A expressão para D é válida para um tempo maior ⁽¹⁰¹⁾, dado por:

$$t < \frac{R}{V_G} \cdot \left\{ 1 + \left[\frac{(1 - \text{sen}\theta)(\cos \frac{\theta}{2} + \text{sen} \frac{\theta}{2})}{(\cos \frac{\theta}{2} - \text{sen} \frac{\theta}{2}) \cos\theta} \right] \right\} \quad (\text{B.2.3.3})$$

Para o caso em que a partícula incide obliquamente no detector, o aspecto do traço é mostrado na Fig. B.2.3.1(b). Nesta situação, as grandezas mensuráveis diretamente são o eixo maior (a), o eixo menor (b) e a profundidade do vértice do traço (z). Henke e Benton⁽¹⁰⁴⁾ dão as seguintes expressões para estas quantidades:

$$a = 2V_G t \frac{\cos\theta}{\text{sen}\phi + \text{sen}\theta} \quad (\text{B.2.3.4})$$

$$b = 2V_G t \sqrt{\frac{\text{sen}\phi - \text{sen}\theta}{\text{sen}\phi + \text{sen}\theta}} \quad (\text{B.2.3.5})$$

$$z = L \text{sen}\phi - V_G t \quad (\text{B.2.3.6})$$

A geometria dos traços para casos mais complexos não será considerada aqui. As situações nas quais V_T é variável, ou em que V_G é anisotrópica, são discutidas por Fleischer e colaboradores⁽¹⁰¹⁾.

B.2.4 - Eficiência de Detecção

No ítem anterior, mostramos que θ (ângulo de cone) é constante para pequenos tempos de revelação e é dado por $\theta = \text{arc sen}(V_G/V_T)$. Nesta condição, pode-se mostrar que apenas uma fração dos traços existentes no detector serão revelados. Na Fig.

B.2.4.1(a) é mostrado claramente que quando $V_T t \sin\phi < V_G t$ (ou $V_T \sin\phi < V_G$), o traço não é revelado. Este fato ocorre porque o detetor é dissolvido tão rapidamente que a componente normal da revelação preferencial ao longo do traço deixa de ser a predominante. Na Fig. B.2.4.1(b) mostramos a situação limite, na qual a partícula incidiu em um ângulo de profundidade, ϕ_c , igual a $\text{arc sen}(V_G/V_T)$; como vemos, apenas as partículas que incidirem no detetor em ângulos de profundidade maiores que $\theta = \text{arc sen}(V_G/V_T)$ darão origem a traços reveláveis (θ é portanto o ângulo crítico de revelação).

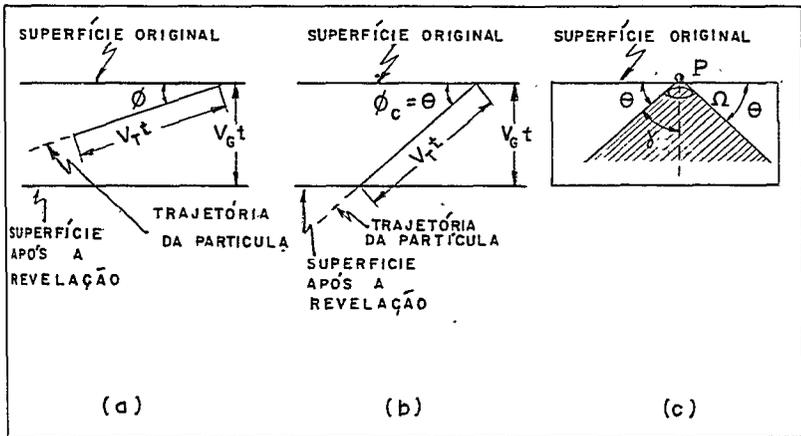


Figura B.2.4.1 - Geometria de revelação de traços de partículas carregadas em sólidos isolantes, quando V_G e V_T são constantes - (a) partícula incidente em um ângulo de profundidade ϕ menor que θ ; (b) o ângulo crítico, ϕ_c , acima do qual os traços são revelados é $\text{arc sen}(V_G/V_T)$; (c) ângulo sólido Ω no qual as partículas são reveladas.

Passemos agora ao cálculo da eficiência de detecção do

vidro. No caso particular do nosso trabalho, o vidro foi irradiado com fragmentos de fissão espontânea de um *filme fino** de urânio natural depositado em sua superfície, uma situação, portanto, de emissão isotrópica de partículas carregadas. Para saber mos que fração de partículas emitidas tem seus traços revelados, é suficiente encontrarmos a relação entre o ângulo sólido no qual as partículas são reveladas e o ângulo sólido 4π . Na Fig. B.2.4.1 (c) a região sombreada é aquela na qual serão observados traços provenientes de uma fonte puntiforme P. Da geometria, sabemos que o ângulo sólido subtendido por um cone com ângulo γ é dado por:

$$\Omega = 2\pi (1 - \cos \gamma) \quad (\text{B.2.4.1})$$

Como θ é o ângulo complementar de γ , a expressão anterior pode também ser expressa como:

$$\Omega = 2\pi (1 - \sin \theta) \quad (\text{B.2.4.2})$$

A *eficiência de detecção*, η , será portanto

$$\eta = \frac{\Omega}{4\pi} = \frac{1}{2} (1 - \sin \theta) \quad (\text{B.2.4.3})$$

Consequentemente, para tempos de revelação tais que V_T é constante, a *eficiência de detecção* depende apenas de θ e pode ser obtida facilmente por meio das grandezas mensuráveis D e ℓ da Fig. B.2.3.1 (a); verifica-se facilmente que:

* *Filme fino* de urânio significa, no nosso caso, que o alcance de fragmentos de fissão no óxido é muito maior que a espessura do filme.

$$\eta = \frac{1}{2} \left\{ 1 - \text{sen} \left[\text{arc tg} (D/2\ell) \right] \right\} \quad (\text{B.2.4.4})$$

Quando os tempos de ataque químico são tais que V_T (e portanto θ) não é mais constante, a eficiência de detecção aumenta com o tempo. Algumas razões para isso são, entre outras, a ampliação de traços muito pequenos que não eram percebidos numa relação fraca, aparecimento de traços que começavam e terminavam abaixo da superfície, etc. A eficiência de detecção para tempos de ataque químico para os quais V_T deixa de ser constante deve ser calculada numericamente ou medida diretamente. O procedimento que usamos na determinação da eficiência de detecção do vidro acha-se descrito no Capítulo II.

B.2.5 - Sensibilidade dos Detetores

A natureza do dano provocado por partículas carregadas em sólidos isolantes é discutida em detalhes por Fleischer e colaboradores (101). Para sólidos inorgânicos considera-se que a ionização primária seja o processo dominante através do qual essas partículas provocam danos ao longo de suas trajetórias no detector*. As curvas teóricas da ionização primária de diversos íons no vidro soda-lime são mostradas na Fig. B.2.5.1, na qual foi representado apenas o intervalo de energia correspondente aos primeiros microns da trajetória de um fragmento de fissão (Sr^{96}).

A ionização de uma partícula carregada num detetor par

*No caso de sólidos orgânicos, entretanto, os efeitos secundários de raios delta não podem ser desprezados.

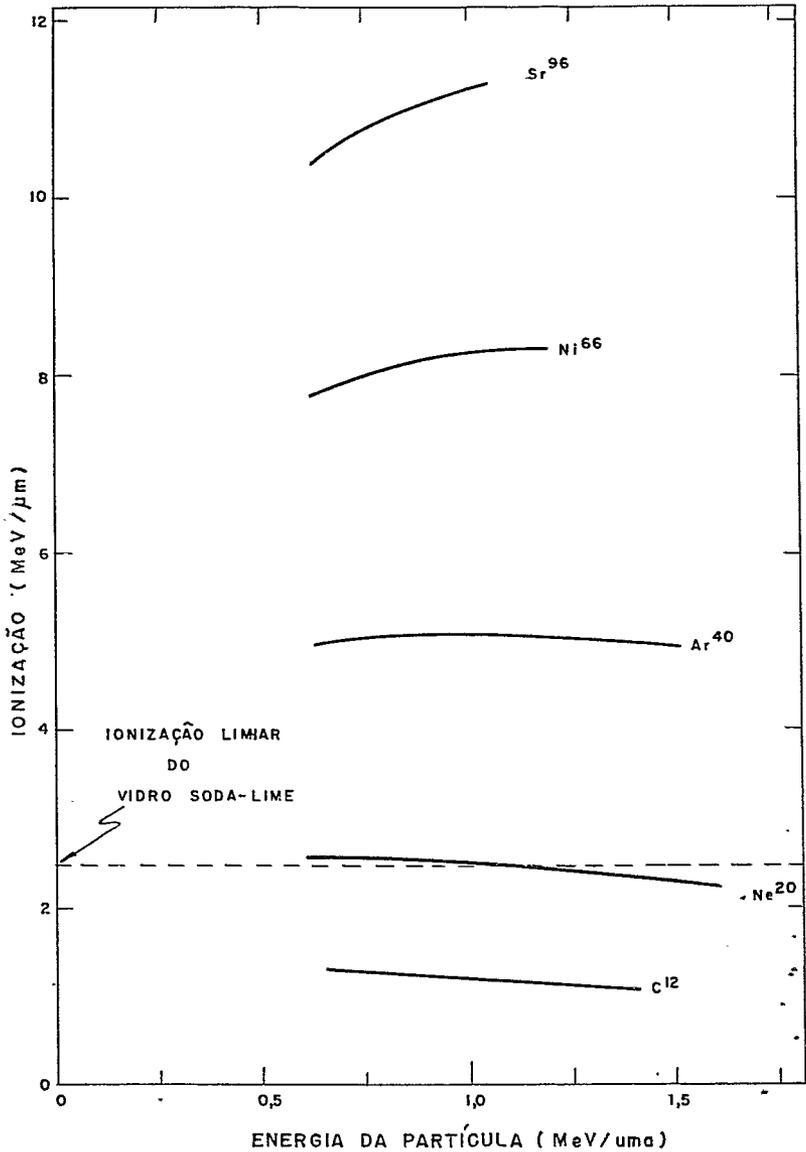


Figura B.2.5.1 - Ionização primária de diversos íons no vidro soda-lime em função da energia. A ionização limiar para este detetor é indicada pela linha tracejada.

ticular pode não ser suficiente para provocar a quantidade de danos necessária para dar origem a uma taxa de revelação preferencial ao longo do traço. Nesta situação, o detetor será insensível a esta partícula. O limiar de detecção para um sólido particular seria então o menor valor da ionização primária necessário para fazer com que V_T supere V_G . Fleischer, Price e Walker⁽¹⁰¹⁾, indicam limiares de detecção para vários sólidos, especificando qual o íon menos ionizante já observado em diversos detetores. Para o vidro comum, por exemplo, este limiar corresponde ao Ne^{20} com a energia cinética de 20 MeV. Com esta informação foi traçada, na Fig. B.2.5.1, a linha horizontal que indica o limiar de detecção deste vidro.

A existência de um limiar de detecção para cada sólido nos orienta na escolha do detetor apropriado para cada experiência que se deseja fazer. Um exame da Fig. B.2.5.1 nos mostra que íons menos ionizantes que o C^{12} não produzem traços reveláveis no vidro soda-lime. Este fato nos permite, por exemplo, o estudo dos traços de fragmentos da fissão espontânea do urânio no vidro sem a presença do fundo indesejável de aproximadamente 10^6 partículas alfa por evento de fissão.

B.2.6 - Annealing*

Sabemos atualmente que o aquecimento prolongado de um detetor pode apagar os traços nele existentes⁽¹⁰¹⁾; caso o aquecimento não seja muito intenso, ainda assim podem ocorrer modifica

* O termo "annealing", quando empregado para traços de partículas carregadas em sólidos isolantes, significa o desvanecimento do traço latente em consequência de aquecimento.

ções, tais como uma redução do número de traços revelados por ataque químico. Acredita-se que o efeito do aquecimento seja o de reduzir a relação V_T/V_G , com o consequente aumento de θ e uma diminuição de $\eta = \frac{1}{2} (1 - \sin\theta)$. Uma outra consequência da redução de V_T/V_G é uma diminuição dos diâmetros dos traços, como poder ser visto pelo exame da eq. (B.2.3.2).

Diversos experimentos sobre "annealing" de traços são relatados por Fleischer e colaboradores⁽¹⁰¹⁾. Para o vidro soda - lime, 1 hora de aquecimento a 190 °C é suficiente para apagar cerca de 50% dos traços de fragmentos de fissão, ao passo que o aquecimento a 370 °C durante 1 hora provoca o desaparecimento total dos traços. O efeito de "annealing" no vidro usado em nossos experimentos foi considerado desprezível (ver Capítulo II).

BIBLIOGRAFIA

- (1) W.E. Libby, Stability of Uranium and Thorium for Natural Fission, *Phys. Rev.*, 55 (1939), 1269.
- (2) K. A. Petrzhak e G.N. Flerov, Spontaneous Fission of Uranium, *J. Exptl. Theoret. Phys. USSR*, 10 (1940), 1013; cf. *Compt. rend. acad. sci. URSS*, 28 (1940), 500 e *Journ.Phys.*, 3 (1940), 275.
- (3) W. Maurer e H. Pose, Neutronenemission des Urankerns als Folge seiner spontanen spaltung, *Z.f. Phys.*, 121 (1943), 285.
- (4) H. Pose, Spontane Neutronenemission von Uran und Thorium, *Z.f. Phys.*, 121 (1943), 293.
- (5) G. Scharff-Goldhaber e G.S. Klaiber, Spontaneous emission of neutrons from Uranium, *Phys. Rev.*, 70 (1946), 229.
- (6) N.A. Perfilov, Half-life periods of the spontaneous fission of uranium and thorium, *Journ. Exp. Theor. Phys. USSR*, 17 (1947), 476.
- (7) W.J. Whitehouse e W. Galbraith, Energy spectrum of fragments from the spontaneous fission of natural Uranium, *Phil. Mag.*, 41 (1950), 429.
- (8) E. Segrè, Spontaneous Fission, *Phys. Rev.*, 86 (1952), 21.
- (9) Hoff Lu e Hsuan-Ling Tsao, Spontaneous Fission of Uranium, *Acta sci. sinica*, 1 (1952), 77.
- (10) P.K. Kuroda e R.R. Edwards, Radiochemical Measurements of the Natural Fission Rate of Uranium, *Journ. Chem. Phys.*, 22 (1954), 1940.
- (11) A.V. Podgurskaia, V. I. Kalashnikova, G. A. Stoliarov, E.

- D. Vorob'ev e G.N. Flerov, *Zh. Eksperim. i. Teor. Fiz.* (USSR), 28 (1955), 503 (em russo).
- (12) P. K. Kuroda, R.R. Edwards e F.T. Ashizawa, Radiochemical measurements of the natural fission rate of Uranium and the natural occurrence of the short-lived Iodine isotopes, *J. Chem. Phys.*, 25 (1956), 603.
- (13) P.L. Parker e P.K. Kuroda, Molybdenum-99 in Uranium salts and the spontaneous fission half-life of Uranium-238, *J. Chem. Phys.*, 25 (1956), 1084.
- (14) P.K. Kuroda e R.R. Edwards, Radiochemical measurement of the natural fission rate of Uranium and the natural occurrence of ^{140}Ba , *J. Inorg. Nucl. Chem.*, 3 (1957), 345.
- (15) P.L. Parker e P.K. Kuroda, The Occurrence of Molybdenum-99 in Natural and in Depleted Uranium Salts and the Spontaneous Fission Half-life of Uranium-238, *Journ. Inorg. Nucl. Chem.*, 5 (1958), 153.
- (16) B.D. Kuz'Minov, L.S. Kutsaeva, V.G. Nesterov, L.I. Prokhorova e G.P. Smirenkin, Some Features of Spontaneous Fission of U^{238} , *Soviet Phys. JEPT*, 10 (1960), 290.
- (17) E.K. Gerling, Yu. A. Shukwhyukov e B.A. Makarodikin, Determination of the Half-life of the Spontaneous Fission of U^{238} from the Xenon Content of Uranium Minerals, *Radiokhimiya*, 1 (1959), 223.
- (18) S.M.C. de Barros, H.G. de Carvalho e A.G. da Silva, Spontaneous Fission of Uranium, "Study Group Meeting on the Utilization of Research Reactors", Nov. 4-8 (1963), São Paulo, Brazil, Session VII, 1-13.
- (19) R.L. Fleischer e P.B. Price, Decay constant for spontaneous fission of ^{238}U , *Phys. Rev.*, 133 (1964), 2975-2976 (B63-B64).
- (20) M.N. Rao e P.K. Kuroda, Decay Constant and Mass-Yield Cur-

- ve for the Spontaneous Fission of Uranium-238, *Phys. Rev.*, 147 (1966), 884.
- (21) A. Spadavecchia e B. Hahn, Die Rotationskammer und einige Anwendungen, *Helv. Phys. Acta*, 40 (1967), 1063.
- (22) T. Ishimori, K. Ueno, K. Kimura, E. Akatsu, Y. Kobayashi, J. Akatsu, R. Ono e M. Hoshi, The Spontaneous Fission of ^{238}U , *Radioch. Acta*, 7 (1967), 95.
- (23) J.H. Roberts, R. Gold e R.J. Armani, Spontaneous-Fission Decay Constant of ^{238}U , *Phys. Rev.*, 174 (1968), 1482.
- (24) Yu. A. Shukol'jukov, G.S. Ashkinadze, O.A. Levchenkov e G.V. Ovchinnikova, *Geokhimiya*, 3 (1968), 265 (em russo).
- (25) H.R. von Gunten, Distribution of mass in spontaneous and neutron-induced fission, *Actinides Rev.*, 1 (1969), 275.
- (26) D. Galliker, E. Hugentobler e B. Hahn, Spontane Kernspaltung von ^{238}U und ^{241}Am , *Helv. Phys. Acta*, 43 (1970), 593.
- (27) D. Storzer, Spaltspuren des ^{238}U -Urans und ihre Bedeutung für die geologische Geschichte natürlicher Gwässer, Thesis, Universität Heidelberg (1970).
- (28) J.D. Kleeman e J.F. Lovering, A determination of the decay constant for spontaneous fission of natural Uranium using fission track accumulation, *Geochim. Cosmochim. Acta*, 35 (1971), 637.
- (29) M.P.T. Leme, C. Renner e M. Cattani, Determination of the Decay Constant for Spontaneous Fission of ^{238}U , *Nucl. Instr. Meth.*, 91 (1971), 577.
- (30) N. Condé e N. Holmberg, Prompt $\bar{\nu}$ in Spontaneous and Neutron Induced Fission of ^{236}U and its Half-life for Spontaneous Fission, *Journ. Nucl. Energy*, 25 (1971), 331.
- (31) S. Nishimura, On the value of the decay constant for spontaneous fission of ^{238}U , *Gansekí Kobutsu Kosho Gakkai-Shi.*, 67 (1972), 139 (em japonês).

- (32) W. Gentner, D. Storzer, R. Gijbels e R. Van der Linden, Calibration of the Decay Constant of ^{238}U Spontaneous Fission, *Amer. Nucl. Soc. Trans.*, 15 (1972), 125.
- (33) H.A. Khan e S.A. Durrani, Measurements of spontaneous fission decay constant of ^{238}U with a mica solid state track detector, *Radiation Effects*, 17 (1973), 133.
- (34) M. Suzuki, Chronology of Prehistoric Human Activity in Kanto, Japan, Part I - Framework for Reconstructing Prehistoric Human Activity in Obsidian, *J. Fac. Sci., Univ. of Tokyo, Sec. V*, 3 (1973), 241.
- (35) K.N. Ivanov e K.A. Petrzhak, Probability of fission by 1.33 MeV γ -rays and spontaneous fission half-life for ^{238}U , *Sov. Atom. Energy*, 36 (1975), 514, (Engl. translation from *Atomnaya Energiya*, 36 (1974), 403).
- (36) V. Emma e S. Lo Nigro, Decay constant for spontaneous fission of ^{238}U and ^{232}Th , *Nucl. Instr. Meth.*, 128 (1975), 355.
- (37) G.A. Wagner, G.M. Reiner, B.S. Carpenter, H. Faul, R. van der Linden e R. Gijbels, The spontaneous fission rate of U-238 and fission track dating, *Geochim. Cosmochim. Acta*, 39 (1975), 1279.
- (38) H.G. de Carvalho, J.B. Martins, I.O. de Souza e O.A.P. Tavares, Spontaneous Emission of Heavy-Ions from Uranium, *An. Acad. brasil. Ciênc.*, 48 (2) (1976), 205.
- (39) K. Thiel e W. Herr, The ^{238}U -Spontaneous Fission Decay Constant re-determined by Fission Tracks, *Earth. Planet. Sci. Lett.*, 30 (1976), 50.
- (40) D.M.C. Rizzo, Fissão Espontânea do ^{238}U e Medida da sua Constante de Desintegração, *An. Acad. brasil. Ciênc.*, 50 (3) (1978), 303.
- (41) O. Hahn e F. Strassmann, "Über den Nachweis und das Verhalten der bei der Bestrahlung des Urans mittels Neutronen entstehenden Erdalkalimetalle", *Naturwiss*, 27 (1939), 11.

- (42) O. Hahn, "The Discovery of Fission", *Sci.Amer.*, 198, fevereiro (1958), 76.
- (43) H.G. Graetzer, Discovery of Nuclear Fission, *Am.J. Phys.*, 32 (1964), 9.
- (44) E.B. Sparberg, A Study of the Discovery of Fission, *Am. J. Phys.*, 32 (1964), 2.
- (45) O. Oldenberg e W.G. Holladay, Introdução à Física Atômica e Nuclear, 1^a ed., Editora Edgard Blücher Ltda. e Editora da Universidade de São Paulo, (1971), cap. 20, pág. 310.
- (46) I. Kaplan, Nuclear Physics, 2nd ed., Addison-Wesley Publishing Company, (1969), cap. 19, pág. 606.
- (47) O. Hahn, *New Atoms*, New York: Elsevier (1950).
- (48) K.A. Petrzhak e G.N. Flerov, Spontaneous Fission of Nuclei, *Soviet Physica Uspekhi*, 4 (2), (1961), 305; cf. *Usp. Fiz. Nauk*, 73 (1961), 655.
- (49) J. Chadwick, The Existence of a Neutron, *Proc. Roy. Soc.* (London), A 136 (1932), 696 (In Beyer).
- (50) I. Curie e F. Joliot, A New Type of Radioactivity, *Compt. Rend.* 198 (1934), 254; *Nature*, 133 (1934), 201; *J. Phys. et radium*, 5 (1934), 153.
- (51) Laura Fermi, *Atoms in the Family*, The University of Chicago Press, Chicago, (1954), pág. 83.
- (52) Fermi, Amaldi, D'Agostino, Resetti e Segrè, Artificial Radioactivity Produced by Neutron Bombardment, *Proc. Roy. Soc.* (London), A 146 (1934), 483.
- (53) E. Fermi, Possible Production of Elements of Atomic Number Higher than 92, *Nature*, 133 (1934), 898.
- (54) L. Meitner e O.R. Frisch, "Disintegration of Uranium by Neutrons: a New Type of Nuclear Reaction", *Nature*, 143 (1939), 239.
- (55) von Halban, Joliot e Kovarski, "Liberation of Neutrons in

- the Nuclear Fission of Uranium", *Nature*, 143 (1939), 470, 680.
- (56) N. Bohr e J.A. Wheeler, "The Mechanism of Nuclear Fission", *Phys. Rev.*, 56 (1939), 426.
- (57) B. Hahn, The Fracture of Liquids under Stress Due to Ionizing Particles, *Nuovo Cim.*, 22 (1961), 650.
- (58) D.A. Young, Etching of Radiation Damage in Lithium Fluoride, *Nature*, 182 (1958), 375.
- (59) J.M. Irvine, Nuclear Fission, *Sci. Prog.*, *Oxf.*, 62 (1975), 501.
- (60) E.K. Hyde, The Nuclear Properties of the Heavy Elements, vol. III, "Fission Phenomena", Prentice-Hall, Englewood Cliffs, New Jersey, (1964).
- (61) R.B. Leachman, Nuclear Fission, *Sci. Amer.*, 213, agosto (1965), 49.
- (62) J. Frenkel, On the Splitting of Heavy Nuclei by Slow Neutrons, *Phys. Rev.*, 55 (1939), 987.
- (63) A.E.S. Green, Coulomb Radius Constant from Nuclear Masses, *Phys. Rev.*, 95 (1954), 1006.
- (64) S. Frankel e N. Metropolis, Calculations in the Liquid-Drop Model of Fission, *Phys. Rev.*, 72 (1947), 914.
- (65) W.J. Swiatecki, "Deformation Energy of a Charged Drop", Paper P/651 in Proceedings of the Second U.N. Conference on Peaceful Uses of Atomic Energy, 15, Geneva, 1958.
- (66) V.M. Strutinsky, "Equilibrium Shape of a Nucleus According to the Drop Model with Variable Surface Tension", *Sov. Phys. JETP*, 18 (1964), 1298.
- (67) W.J. Swiatecki e S. Cohen, "The Deformation Energy of a Charged Drop. Part V: Results of Electronic Computer Studies", *Ann. Phys. (N.Y.)*, 22 (1963), 406.

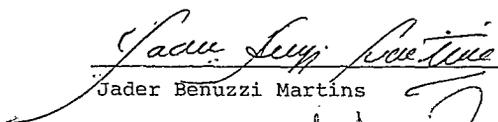
- (68) V.M. Strutinsky, "Stability of Equilibrium States of the Nucleus in the Drop Model", *Sov. Phys. JETP*, 18(1964)1305.
- (69) J.R. Nix, "The Normal Modes of Oscillation of a Uniformly Charged Drop About its Saddle - Point Shape", *Ann. Phys.* (N.Y.), 41 (1967), 52.
- (70) R. Vandenbosh e J.R. Huizenga, *Nuclear Fission*, Academic Press, Inc., (1973), cap. 11, pág. 23.
- (71) M.G. Mayer, "On Closed Shells in Nuclei", *Phys. Rev.*, 74 (1948), 235.
- (72) L. Meitner, "Fission and Nuclear Shell Model", *Nature*, 165 (1950), 561.
- (73) P. Fong, "Statistical Theory of Nuclear Fission: Asymmetric Fission", *Phys. Rev.*, 102 (1956), 434.
- (74) J. Randrup, C.F. Tsang, P. Möller, S.G. Nilsson e S.E. Larsson, Theoretical Predictions of Fission Half-Lives of Elements with Z between 92 and 106, *Nucl. Phys.*, A 217 (1973), 221.
- (75) G.T. Seaborg, Some Comments on the Mechanism of Fission, *Phys. Rev.*, 85 (1952), 157.
- (76) J.R. Huizenga, Spontaneous Fission Systematics, *Phys. Rev.*, 94 (1954), 158.
- (77) W.J. Swiatecki, Systematics of Spontaneous Fission Half - Lives, *Phys. Rev.*, 100 (1955), 937.
- (78) I.O. de Souza, Meia-Vida de Fissão Espontânea do U^{238} e uma Provável Nova Forma de Radioatividade, Tese de Mestrado, CBPF (1975).
- (79) I. Halpern, Nuclear Fission, *Ann. Rev. Nucl. Sci.*, 9 (1959), 245.
- (80) W. Seelmann-Eggebert, G. Pfennig, H. Münzel, *Karlsruher Nuklidkarte 4. Auflage* (1974), Gedruckt von Ernst Klett Druckerei 7 Stuttgart 1.

- (81) Ilford Photographic Emulsions for Nuclear Research, Technical Information Sheet Y 44.1, L68, England.
- (82) B.C. Diven, H.C. Martin, R.F. Taschek e J. Terrell, Multiplicities of Fission Neutrons, *Phys. Rev.*, 101 (1956), 1012.
- (83) Natural Background Radiation in the United States, NCRP REPORT No. 45, Nov. 15, Washington, D.C. .
- (84) H.A. Khan e S.A. Durrani, Efficiency Calibration of Solid State Nuclear Track Detectors, *Nucl. Instr. Meth.* , 98 (1972), 229.
- (85) S.N. Sokolov e K.D. Tolstov, Control of Scanning Efficiency and Estimation of the True Number of Events, *Korpuskularfotographie IV*, Institut für wissenschaftliche Photographie, München (1963), pág. 468.
- (86) Walter H. Barkas, Nuclear Research Emulsions, I. Techniques and Theory, Academic Press, (1963), Cap. 9, pág. 366.
- (87) M. Bogaardt e M. Bottema, Range Distribution of the α -Particles of Uranium in the Photographic Emulsion, *Physica* , XV, no. 3-4, Mei-(1949), 358.
- (88) Pierre Demers, Ionographie, Les Emulsions Nucléaires, Principes et Applications, Les Presses Universitaires de Montréal, (1958), Cap. XIII.
- (89) A. Săndulescu, H.J. Lustig, J. Hahn e W. Greiner, High Mass-Asymmetry Distribution of Fissioning Nuclei (a ser publica do, 1978).
- (90) M. Lecerf e J. Pêter, Détecteurs en Verre (Influence de la Masse et de L'Energie des Particules sur le Diamètre des Traces), *Nucl. Instr. Meth.*, 104 (1972), 189.
- (91) U. Hüppner, E. Konecny e G. Fiedler, The Diameter of Etched Fission Fragment Tracks in Solid State Nuclear Track Detectors as a Function of the Particle Energy, *Nucl. Instr. Meth.*, 74 (1969), 285.

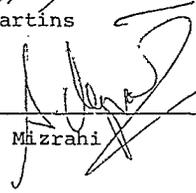
- (92) V. Bellini, V. Emma, S. Lo Nigro, C. Milone e G.S. Papal - lardo, Fission Fragment Spectra Measured by Means of Glass Detectors, *Lettere al Nuovo Cimento*, vol. 22, n.13(1978) , 539.
- (93) H.G. de Carvalho e A.G. da Silva, "Nuclear Emulsion Techniques for Fission Studies" - em *Korpuskularphotographie IV*, Institut für wissenschaftliche Photographie, München(1963), pãg. 661.
- (94) H. Yagoda, Radioactive Measurements with Nuclear Emulsions, John Wiley & Sons, Inc. (1949), cap. 3, pãg. 53.
- (95) R.L. Fleischer, P.B. Price e R.M. Walker, "The Ion Explosion Spike Mechanism for Formation of Charged Particle Tracks in Solids", *J. Appl. Phys.*, 36 (1965), 3645.
- (96) E.C. H. Silk e R.S. Barnes, "Examination of Fission Fragment Tracks with an Electron Microscope", *Phil. Mag.*, 4, (1959), 970.
- (97) P.B. Price e R.M. Walker, "Chemical Etching of Charged Particle Tracks", *J. Appl. Phys.*, 33 (1962), 3407.
- (98) R.L. Fleischer e P.B. Price, "Tracks of Charged Particles in High Polymers", *Science*, 140 (1963), 1221.
- (99) R.L. Fleischer e P.B. Price, "Charged Particle Tracks in Glass", *J. Appl. Phys.*, 34 (1963), 2903.
- (100) R.L. Fleischer, e P.B. Price, "Techniques for Geological Dating of Minerals by Chemical Etching of Fission Fragment Tracks", *Geochim. Cosmochim. Acta*, 28 (1964), 1705.
- (101) R.L. Fleischer, P.B. Price e R.M. Walker, "Nuclear Tracks in Solids: Principles and Applications", University of California Press (1975).
- (102) J.D. Macdougall, Fission-Track Dating, *Sci. Amer.* 235, Dezembro (1976), 114.

- (103) R.L. Fleischer, P.B. Price e R.M. Walker, "Nuclear Tracks in Solids", *Sci.Amer.*, 220 (1969), 30.
- (104) R.P. Henke e E.V. Benton, "On Geometry of Tracks in Dielectric Nuclear Track Detectors", *Nucl. Instr. Methods*, 97 (1971), 483.

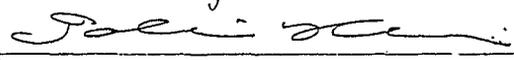
Tese apresentada ao Centro Brasileiro de Pesquisas Físicas
do Conselho Nacional de Desenvolvimento Científico e Tec-
nológico, fazendo parte da Banca Examinadora os seguintes
professores:



Jader Benuzzi Martins Presidente



Salomon Silvain Mizrani



Takeshi Kodama

Rio de Janeiro, 07 de dezembro de 1978