

MARCOS DE CASTRO FALLEIROS

"EMISSÃO DE PARTÍCULAS ALFA DE LONGO ALCANCE NA
FISSÃO ESPONTÂNEA DO ^{252}Cf "

Tese de

MESTRADO

62
CENTRO BRASILEIRO DE PESQUISAS FÍSICAS
Rio de Janeiro, setembro de 1989

- . À minha esposa; sem seu apoio não poderia ter concluído este trabalho
- . Aos meus pais
- . Aos meus filhos

AGRADECIMENTOS

- Ao Professor JADER BENUZZI MARTINS, pela orientação e pelo estímulo constante a mim dispensado no decorrer deste trabalho.
- Ao Professor ODILON ANTONIO PAULA TAVARES, pela ajuda inestimável no trabalho experimental.
- Ao Professor EMIL DE LIMA MEDEIROS, amigo leal, pelas discussões iniciais e incentivo constante.
- Ao Professor DJAIR AQUINO DE LIMA, pelas discussões e apoio.
- À ANGELA MARIA FERREIRA FALLEIROS, pelo carinho com que leu e fez correções no texto e pelo incentivo nos momentos de desânimo.
- Ao desenhista ANTONIO CARLOS INAGAKI, do Departamento de Física da Fundação Universidade Estadual de Londrina, pelo excelente trabalho.
- À calculista CELESTE AÍDA BRITO LOPES, pela eficiente colaboração.
- Às microscopistas HILDA VIEIRA DA SILVA, LUZIA DOS REIS ROSA, LÉSIA HRYHORCZUK e HELENA FERREIRA PINTO, pela excelente qualidade de seus trabalhos.
- À MYRIAM SIMÕES COUTINHO, pelo excelente trabalho na composição gráfica deste trabalho e pelos favores a mim dispensado.
- Aos colegas do Grupo de Física Nuclear Experimental do Centro Brasileiro de Pesquisas Físicas.
- Aos colegas e amigos do Departamento de Física da Fundação Universidade Estadual de Londrina.
- Ao Centro Brasileiro de Pesquisas Físicas que me proporcionou a oportunidade de estudos e desenvolvimento científico.
- Ao CNPq, à CAPES e à FUEL, pela ajuda financeira durante os anos desta etapa de minha formação científica.

SUMÁRIO

	Pág.
AGRADECIMENTOS	iii
SUMÁRIO	iv
LISTA DE TABELAS	vi
LISTA DE FIGURAS	vii
RESUMO	ix
INTRODUÇÃO	x
CAPÍTULO I - A FISSÃO NUCLEAR	1
I.1 - A Descoberta da Fissão Nuclear	1
I.2 - O Processo da Fissão Nuclear	2
CAPÍTULO II - A FISSÃO TERNÁRIA - ASPECTO HISTÓRICO	9
CAPÍTULO III - UM MODELO TEÓRICO	11
CAPÍTULO IV - MATERIAL E MÉTODO	18
IV.1 - Determinação da razão entre o número de fissões espontâneas e o número de partículas alfa de longo alcance	19
IV.2 - Para obtenção de contagem e alcance de partículas alfa de longo alcance	20
CAPÍTULO V - RESULTADOS	22
V.1 - Obtenção da Razão(R) entre o número de fissões e o número de partículas alfa para o ^{252}Cf	23
V.2 - Determinação do espectro de energia das partículas alfa de longo alcance do ^{252}Cf	24
CAPÍTULO VI - DISCUSSÕES E CONCLUSÕES	35
VI.1 - Discussões	35
VI.2 - Conclusões	38
APÊNDICE A - A EMULSÃO NUCLEAR COMO DETETOR DE FRAGMENTOS DE FISSÃO E PARTÍCULAS	41
A.1 - Emulsões Nucleares	42
A.1.1 - A Gelatina e suas propriedades	43
A.1.2 - Cristais de Halogenetos de Prata	44
A.2 - Mecanismo de Registro da Trajetória de Partículas Carregadas em Emulsão	47
A.2.1 - Formação da Imagem Latente	48
A.2.2 - Desaparecimento da Imagem Latente	50

A.3	- Uma Síntese do Processo Fotográfico	51
A.3.1	- A Revelação e os Parâmetros que a influenciam .	54
A.3.2	- O "Stop", a Fixação e a Lavagem da Película ...	56
A.4	- Processos de Revelação Utilizados	58
A.4.1	- Considerações gerais	58
A.4.2	- Técnica Experimental	60
A.4.3	- Discriminação entre Traços de Fragmentos de Fis são e Traços de Partícula Alfa	61
A.4.4	- Revelação de Emulsão Nuclear para contagem de Traços de Partículas Alfa de Longo Alcance do ²⁵² Cf	64
A.5	- Microscopia	64
A.5.1	- Observação dos Traços	64
A.5.2	- Eficiência de Contagem	67
REFERÊNCIAS BIBLIOGRÁFICAS	70

LISTA DE TABELAS

TABELA		PÁG.
II.1	- Resultados encontrados na Literatura Científica para a Razão entre o número de fissões e o número de partículas alfa de ^{252}Cf	10
II.2	- Resultados encontrados na Literatura Científica referente ao Espectro de Energia das partículas alfa de longo alcance do ^{252}Cf	10
V.1	- Resultados obtidos pelo presente trabalho para a fissão espontânea do ^{252}Cf (contagem)	22
V.2	- Resultados obtidos pelo presente trabalho para as partículas alfa de longo alcance (contagem)	23
VI.1	- Resultados encontrados na Literatura Científica para a Razão entre o número de fissões e o número de partículas alfa de ^{252}Cf , acrescido do resultado do presente trabalho .	35
VI.2	- Resultados encontrados na Literatura Científica referente ao Espectro de Energia das partículas alfa de longo alcance do ^{252}Cf , acrescido do resultado do presente trabalho .	36
A.1	- Composição da emulsão nuclear Ilford das séries G, K e L (58% de umidade relativa)	43

LISTA DE FIGURAS

FIGURAS	PÁG.
I.1 - Energia Cinética e Energia Liberada na Fissão	4
I.2 - Fissão Espontânea - A dependência da Meia-Vida de um núcleo devido unicamente ao processo de fissão, com parâmetro Z^2/A	7
I.3 - Representação Esquemática do processo de fissão do ^{235}U ..	8
III.1 - Os fragmentos e a partícula alfa de longo alcance no instante da "quebra do núcleo de ^{252}Cf	12
III.2 - Os dois fragmentos de fissão e a partícula alfa de longo alcance em um tempo genérico $T(k)$	12
III.3 - Curva teórica para a correlação angular para partícula alfa assumindo a energia cinética inicial igual a 2 MeV, comparada com resultados experimentais de Fraenkel e Thompson ^[27] , representados pelas barras horizontais	15
III.4 - Curvas teóricas para a correlação angular para partícula alfa, assumindo energias cinéticas iniciais iguais a 0,5, 2,0 e 8,0 MeV, respectivamente, comparadas com resultados experimentais de Fraenkel e Thompson ^[27] , representados pelas barras horizontais	16
III.5 - A posição dos dois fragmentos e da partícula alfa de longo alcance de sucessivos movimentos temporais de 22×10^{-22} segundos cada	17
IV.1 - Ilustração esquemática da disposição da fonte de ^{252}Cf e da emulsão nuclear nas experiências desenvolvidas	19
V.1 - Ionização de prótons e partículas alfa em emulsão nuclear .	27
V.2 - Histograma do alcance para partículas alfa obtido nas experiências desenvolvidas	28
V.3 - Histograma do alcance das partículas alfa de longo alcance (fonte com filtro de alumínio)	29
V.4 - Alcance de partículas alfa em emulsão nuclear	30
V.5 - Histograma de energia para partículas alfa de longo alcance (fonte com filtro de alumínio)	31
V.6 - Histograma de energia para partículas alfa de longo alcance do ^{252}Cf emitidas pela fonte	32
V.7 - Correção da energia das partículas alfa após a passagem pelo filtro de alumínio	33
V.8 - Espectro de energia para as partículas alfa de longo alcance	34
VI.1 - Reprodução do espectro de energia das partículas alfa de longo alcance do ^{252}Cf obtido por W. Loveland ^[7]	39
VI.2 - Reprodução do resultado obtido por Muga, Bowman e Thompson ^[2] para o espectro de energia para as partículas alfa de longo alcance do ^{252}Cf	39

VI.3	- Fotomicrografia mostrando a fissão do ^{252}Cf acompanhada de uma partícula alfa de longo alcance	40
A.1	- Faixas de Níveis Eletrônicos	46
A.2	- Defeitos de estrutura cristalina do AgBr	47
A.3	- Aspecto da emulsão nuclear antes e após a revelação	48
A.4	- Efeito da temperatura na revelação	54
A.5	- Efeito protetor do sulfito de sódio	55
A.6	- Ilustração do efeito do tempo de indução na revelação diferenciada de traços de partículas alfa e fragmentos de fissão	63
A.7	- Orientação espacial da trajetória de uma partícula alfa na emulsão nuclear	65

RESUMO

A emissão de partículas alfa de longo alcance associada à fissão espontânea do ^{252}Cf , fenômeno este conhecido na literatura como fissão ternária (tripartição), vem sendo estudado nos últimos vinte anos. No entanto, os dados existentes na literatura, são bastante discordantes.

No presente trabalho medimos o espectro de energia das partículas alfa de longo alcance e obtivemos um pico em torno de 15 MeV.

A razão entre o número de fissões e o número de partículas alfa de longo alcance foi de 326.

Por fim, apresentamos um levantamento fotomicrográfico no qual aparece a fissão ternária onde podemos observar o ângulo de emissão da partícula alfa de longo alcance com respeito aos fragmentos de fissão do ^{252}Cf .

INTRODUÇÃO

O fenômeno da fissão espontânea, inicialmente observado para o Urânio, vem sendo investigado em mais de cinquenta isótopos de quinze 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 deste fenômeno.

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 $J \cong \exp(-T/\tau)$, onde $\tau \cong 55$ dias. Uma das hipóteses aceita atualmente para explicar este fenômeno, atribui à liberação de energia após o período inicial à fissão espontânea do ^{254}Cf , para o qual $\tau \cong 55$ dias^[1].

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 e césio em minerais portadores de urânio^[1]. Ainda nesse ramo da Ciência, um processo importante de datação baseia-se na análise de traços deixados por fragmentos de fissão espontânea do urânio em minerais que contêm este elemento^[1].

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 havendo uma maior probabilidade de fissão espontânea, sendo este processo um dos principais modos de desintegração para valores suficientemente elevados de Z . Desde que a fissão espontânea é um dos processos 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 de estabilidade do Sistema Periódico dos Elementos^[1].

Quanto ao fenômeno da emissão de partículas alfa de longo alcance, assim denominadas por possuírem energias com até 34 MeV^[2], associadas à fissão espontânea do ^{252}Cf (fissão ternária), a literatura fornece dados referentes ao espectro de energia das partículas alfa de longo alcance onde observa-se discordâncias quanto ao valor do pico de energia obtido por autores que trabalharam com técnicas envolvendo eletrônica como Watson^[3], Nobles^[4], Fraenkel^[5], Fluss e colaboradores^[6], Loveland^[7], Grachev e colaboradores^[8] e autores que trabalharam com emulsões nucleares como Muga, Bowman e Thompson^[2].

Além deste fato, observa-se na literatura dados conflitantes quanto a razão entre o número de fissões espontâneas do ^{252}Cf e o número de partículas alfa de longo alcance.

Cabe aqui destacar que autores como Watson^[3], Henderson e colaboradores^[9] e Nobles^[4], que em seus trabalhos fizeram uso de técnicas eletrônicas de detecção, obtiveram resultados discordantes entre si, assim como, maiores discordâncias ainda são observadas nos resultados dos trabalhos de autores que fizeram uso da técnica de emulsões nucleares como Muga, Bowman e Thompson^[2], Titterton e colaboradores^[10].

Assim sendo, dado às discordâncias existentes na literatura, o presente trabalho tem por objetivos:

i) Obtenção da razão entre o número de fissões espontâneas do ^{252}Cf e o número de partículas alfa de longo alcance;

ii) Obtenção do espectro de energia das partículas alfa de longo alcance.

Para atingirmos os objetivos do presente trabalho, faremos uso do detetor Emulsão Nuclear. Esta, analogamente às emulsões ordinárias, consiste basicamente numa dispersão de grãos de halogenetos de prata (principalmente brometo) em gelatina. As principais diferenças entre as duas, a ordinária e a nuclear, residem no conteúdo de brometo de prata, na espessura e no tamanho dos grãos. Quando uma partícula ionizante penetra no interior desse detetor, forma-se um traço (imagem latente) contendo um número de grãos reveláveis de brometo de prata; após a revelação, a análise desses traços ao microscópio ótico, fornece informações sobre o número e a natureza das partículas carregadas.

O ^{252}Cf tem meia-vida de, aproximadamente 2,65 anos. Seu decaimento é por emissão de partículas alfa, também chamada de partículas alfa de decaimento cuja energia é predominantemente de 6,118 MeV e 6,076 MeV, e por fissão espontânea (binária, ternária e quaternária).

No capítulo I, apresentamos alguns aspectos importantes da fissão nuclear.

No capítulo II, historiamos o desenvolvimento do estudo deste fenômeno.

No capítulo III, apresentamos um breve estudo teó

rico a respeito da emissão de partículas alfa de longo alcance, associada ao ^{252}Cf , baseado na referência bibliográfica^[12].

No capítulo IV, apresentamos a descrição do procedimento experimental.

No capítulo V, apresentamos os dados obtidos por nós.

No capítulo VI, apresentamos as discussões e conclusões do presente trabalho.

No apêndice A, detalhamos os aspectos da técnica de emulsão nuclear baseado na referência bibliográfica^[13].

CAPÍTULO I

A Fissão Nuclear

I.1 A DESCOBERTA DA FISSÃO NUCLEAR

A descoberta da fissão nuclear foi um dos resultados das tentativas de se fazer elementos transuranianos ($Z > 92$) através de reações (n, γ) seguidas do decaimento do núcleo produzido.

A produção de nuclídeos ^{140}La e ^{135}Ba a partir do urânio, que tem número atômico 92, poderia ser explicado através de uma reação nuclear até então desconhecida, na qual o núcleo de urânio se divide em fragmentos de massas comparáveis.

Hahn e Strassmann^[14,15] foram capazes de encontrar um isótopo ativo de estrôncio ($Z=98$) e um do ítrio ($Z=96$) que cumpriam estes requisitos, assim como isótopos do criptônio ($Z=36$) e xenônio ($Z=54$).

Estava claro, a partir das evidências rádioquímicas, que os núcleos de urânio quando bombardeados com neutrons, podiam de fato se quebrar em núcleos de peso atômico intermediários. Previu-se então, a partir da sistemática dos nuclídeos estáveis e a partir da fórmula semi-empírica de massa^[I-1] (energia de ligação), que os núcleos produtos teriam energia muito grande e produziriam um grande número de pares de íons quando

passassem através de um gás. Quando se colocou uma fina camada de urânio numa câmara de ionização apropriada conectada a um amplificador e irradiada com neutrons, observaram-se grandes picos de ionização^[16,17] correspondendo a energia de até 100 MeV. Trabalhos radioquímicos posteriores, mostraram então que ao lado dos produtos das reações mencionadas acima, outros elementos de número de massas média se formavam, incluindo bromo, molibdênio, rubídio, antimônio, telúrio, iodo e césio. Havia, portanto, amplas evidências químicas e físicas para a quebra do núcleo de urânio. Esse processo foi chamado de fissão^[18].

Sabe-se hoje que a fissão pode ser produzida em vários nuclídeos em diferentes condições. Quando pequenas amostras de isótopos separados do urânio, preparados em um espectrógrafo de massa foram bombardeadas, descobriu-se que os neutrons lentos causam a fissão do ^{235}U , mas não do ^{238}U e, neutrons rápidos com energias maiores que 1 MeV causam tanto a fissão do ^{235}U como do ^{238}U ^[19]. O tório e o protoactíneo sofrem fissão, quando bombardeados com neutrons rápidos. A fissão também pode ser produzida no urânio e tório por partículas alfa de grande energia, prótons, dêuterons e raios γ . Os núcleos de ^{239}Pu e ^{233}U , formados pela reação (n,γ) do ^{238}U e ^{232}Th , respectivamente, seguidos pelo decaimento dos produtos, sofrem fissão quando bombardeados com neutrons lentos ou rápidos. Finalmente, encontram-se alguns núcleos pesados que sofrem fissão espontânea, neste processo, o núcleo se divide no estado fundamental sem o bombardeamento de partículas.

I.2 O PROCESSO DA FISSÃO NUCLEAR

Consideremos um núcleo composto (A,Z) formado pe

la absorção de um neutron por um núcleo alvo pesado que se comporta como uma gota esférica de um fluido incompressível. Supondo que a massa atômica correspondente $M(A, Z)$ seja dada pela fórmula semi-empírica de massa (em unidade de massa atômica).

$$M(A, Z) = ZM_H + (A - Z)M_n - a_v A + a_s A^{2/3} + \frac{a_a}{A} (A - 2Z)^2 + \frac{a_c Z^2}{A^{1/3}} + \delta(A, Z) \quad (I.1)$$

e que é maior que a soma das massas dos fragmentos constituintes em uma energia equivalente Q . A questão é: Sob que circunstância acontecerá a fissão de núcleo? A estabilidade do núcleo inicial com respeito à fissão depende criticamente da importância relativa das forças nucleares de curto alcance e das forças de Coulomb de longo alcance, cujos efeitos estão representados na fórmula semi-empírica de massas pelos termos cujos coeficientes são a_v , a_s e a_c . No caso de núcleo muito pesado ($A \approx 300$), a força coulombiana é a mais importante e o núcleo, uma vez formado, se rompe em dois fragmentos quase instantaneamente.

Este caso está representado na curva (a) da figura I.1 em que se representa a energia potencial dos fragmentos em função de sua separação [20].

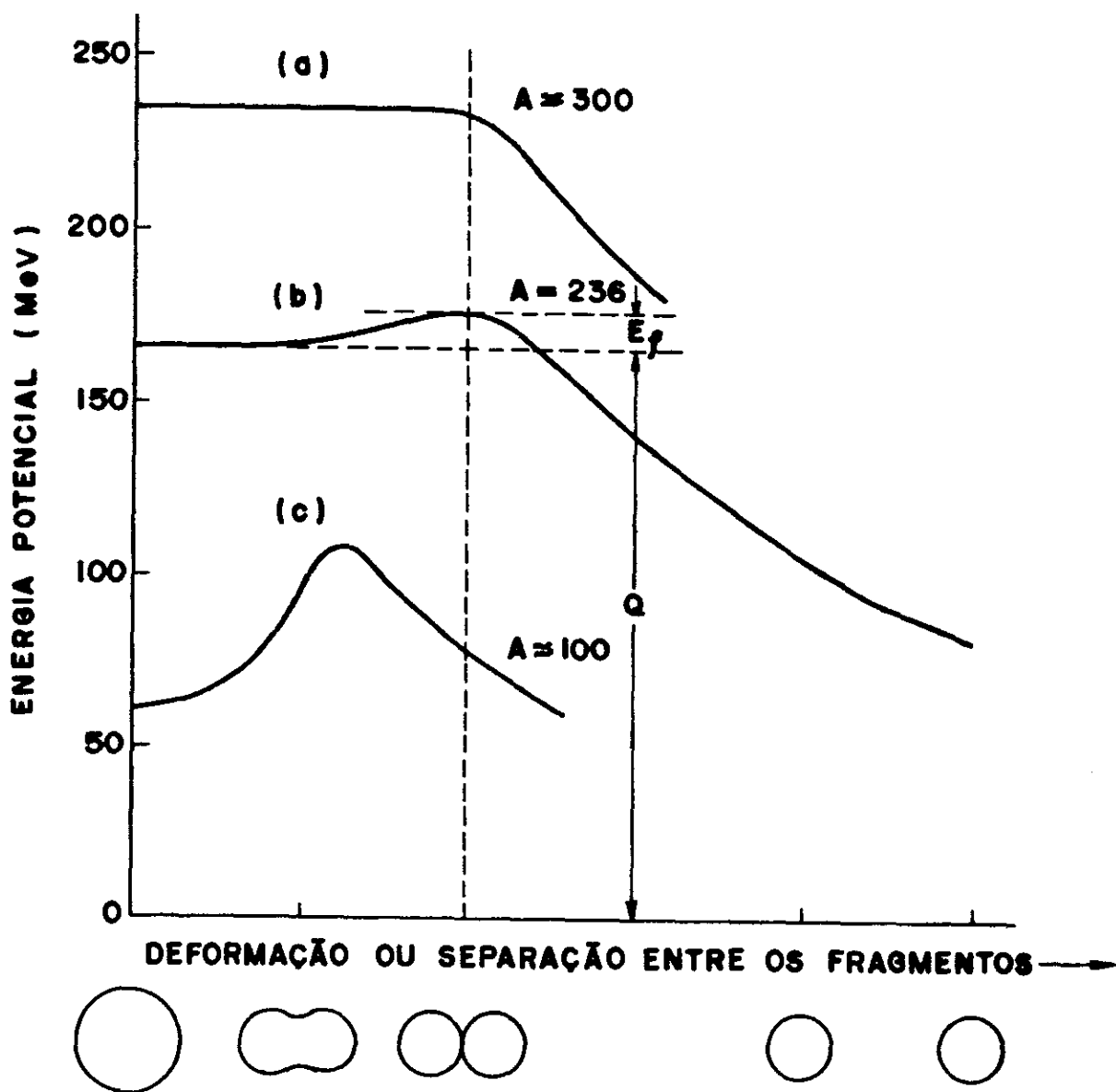


Fig. I.1: Energia cinética e energia liberada na fissão. Na parte esquerda está representada a energia potencial do núcleo em função de sua deformação; na parte direita da figura está representada a energia potencial do fragmento a medida que se separam em virtude da repulsão Coulombiana.

Para núcleos menos pesados ($A \approx 236$), a repulsão entre os prótons pode estar mais que compensada pelas atrações de curto alcance sempre que o núcleo (A, Z) tenha uma forma tal que apresente uma superfície mínima, como representada na figura I.1 pela curva (b). Neste caso o núcleo inicial é estável frente a pequenas deformações da forma esférica, mas se a deformação é relativamente grande, a superfície livre aumenta de tal maneira que o efeito das atrações de curto alcance se reduz até um valor tal que não compensa o efeito da repulsão Coulombiana.

Chegamos assim ao conceito de "barreira de fissão" ou energia crítica para a fissão, E_f , para a qual tem lugar uma rápida separação dos fragmentos. Isto pode acontecer antes que se alcance a deformação correspondente a Energia E_f , mas tal separação se processará lentamente, devido a penetração necessária da barreira de fissão. Este último caso é análogo à emissão de partículas α (efeito túnel) por parte de núcleos radioativos e se descreve como fissão espontânea. Para um núcleo mais leve ($A \approx 100$), a barreira de fissão é mais elevada (ver figura I.1, curva (c)).

A energia crítica para a fissão E_f , que deve ser ocasionada pela partícula incidente no caso de fissão induzida, depende do valor de Z^2/A para o núcleo composto.

A fissão do ^{238}U exige um neutron com energia da ordem de 1 MeV, assim o valor de E_f para o ^{238}U é aproximadamente de 6 MeV^[20]. Este fato permitiu a Bohr e Wheeler^[21] estimarem que um núcleo seria instantaneamente fissionável se

$$\frac{Z^2}{A} \geq 47,8 \quad (\text{I.2})$$

e calcularam a energia E_f , para a qual a energia potencial alcança seu valor máximo para os núcleos cujo Z^2/A é menor que o limiar.

Já para o ^{235}U a fissão ocorre com a incidência de neutros térmicos. A energia de separação de um neutron no caso do ^{236}U é maior, em comparação com o ^{239}U , porque o primeiro é um nuclídeo par-par e está mais fortemente ligado no seu estado fundamental que o ^{239}U que é do tipo par-ímpar^[20]. Como regra geral, os núcleos fissionáveis formam núcleos compostos par-par por absorção de neutrons lento^[20].

Considerando os argumentos já apresentados e a figura I.1, fica claro que a fissão induzida por neutrons lentos fica limitada a poucos núcleos. Se A é muito pequeno, a energia do neutron capturado será insuficiente para permitir que o núcleo ultrapasse a barreira de fissão; por outro lado, se A é muito grande, vai acontecer a fissão espontânea. A frequência deste modo de desintegração limita o número de elementos transuranianos que se podem produzir e a figura I.2, mostra como diminui a meia vida para a fissão espontânea a medida que nos aproximamos do valor limite de Z^2/A ^[20].

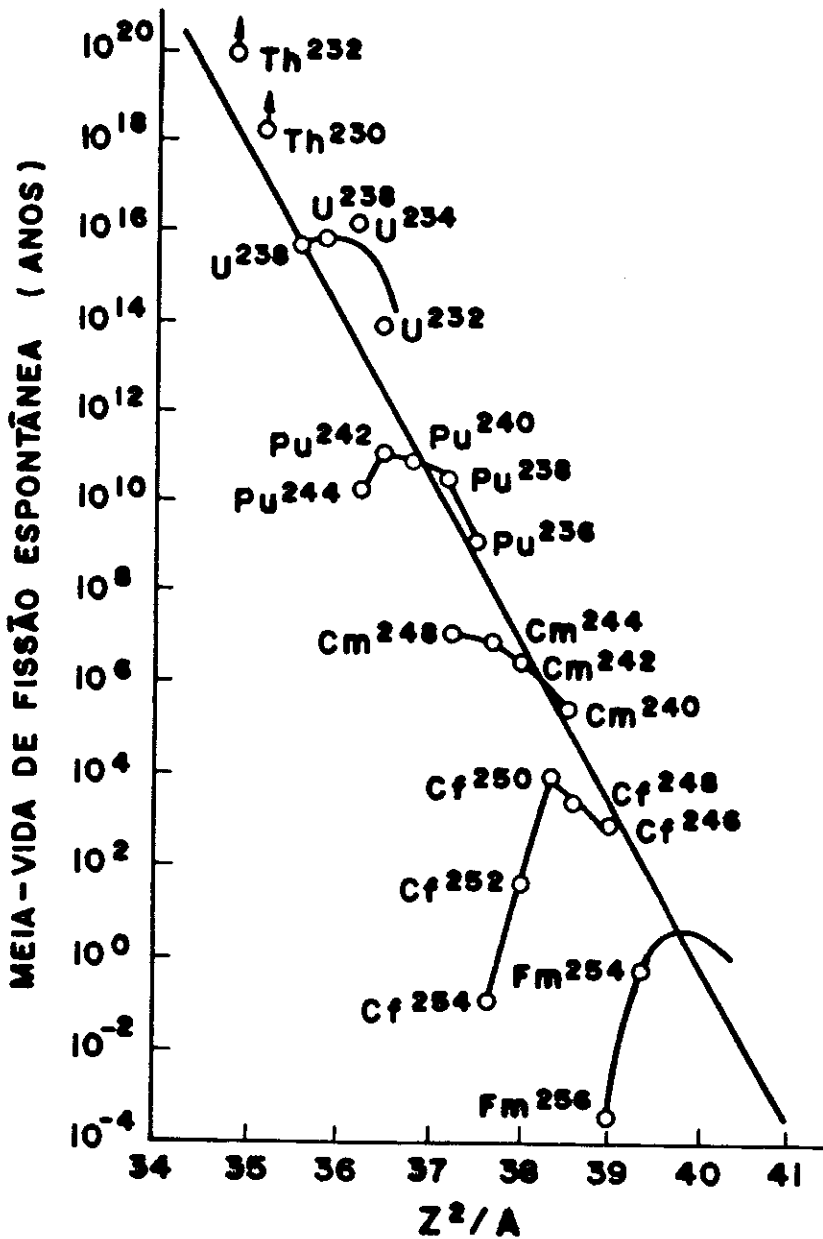


Fig. I.2: Fissão espontânea. A figura mostra a dependência da meia vida de um núcleo, devido unicamente ao processo de fissão, com o parâmetro Z^2/A .

Assim sendo, o processo de fissão tal qual foi interpretado por Bohr e Wheeler^[21], pode ser representado pelo esquema na figura I.3. Os dois fragmentos excitados do núcleo composto, que possuem um grande excesso de neutrons em comparação com os núcleos estáveis de cargas iguais, se separam em um tempo muito pequeno em relação à meia vida do núcleo composto, isto é,

um tempo menor que 10^{-14} s. No momento da separação é emitido um certo número de neutrons conhecidos como neutrons prontos, procedentes principalmente dos fragmentos em movimento.

O descobrimento destes neutrons sugeriu, imediatamente, a possibilidade de uma reação em cadeia.

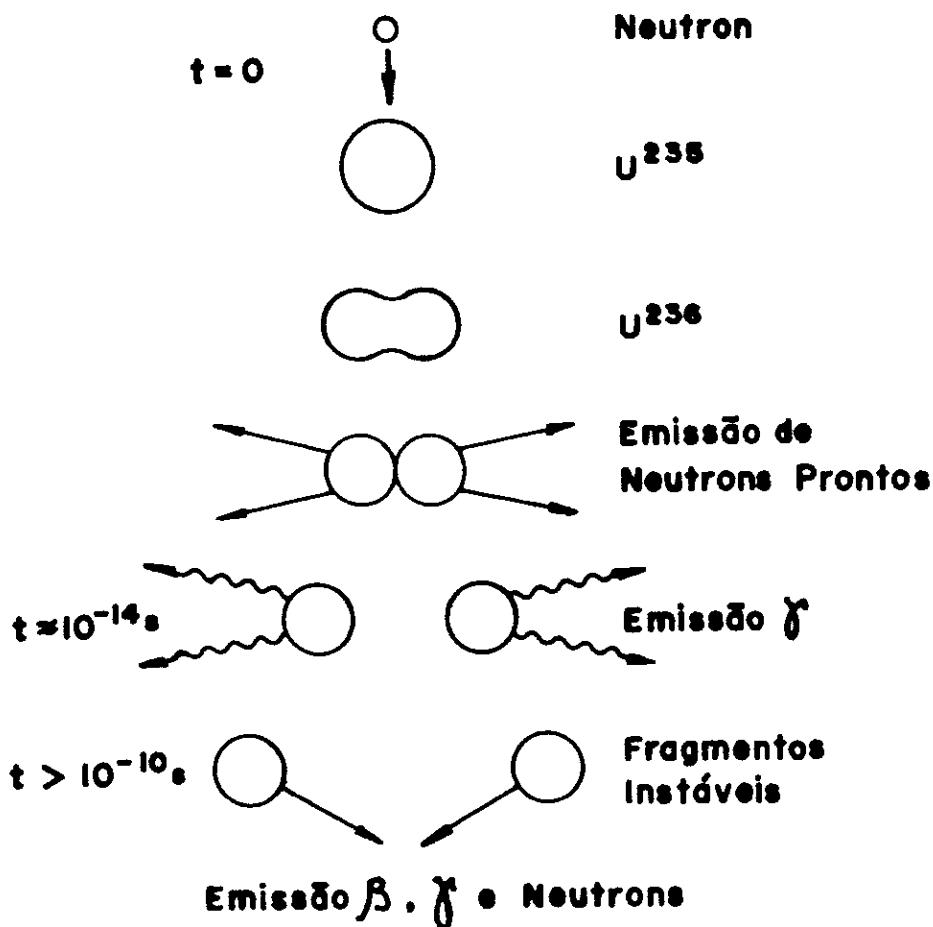


Fig. I.3: Representação esquemática do processo de fissão do ^{235}U , mostrando a emissão de neutrons e radiação γ , assim como a desintegração final dos produtos de fissão.

CAPÍTULO II

A Fissão Ternária - Aspecto Histórico

Todos os estudos sobre o processo da fissão nuclear indicam que este resulta, predominantemente, na divisão do núcleo fissionado em dois fragmentos e em média mais de dois neutrons emitidos. R.D. Present^[22] mostrou que o modelo da gota líquida para a fissão não exclui a possibilidade de fissão ternária, ou seja, a divisão do núcleo em três fragmentos. A fissão ternária tem sido investigada através de vários métodos, principalmente através de emulsões nucleares impregnadas com material fissionável^[23]. Dos resultados dos estudos destacamos, a seguir, dois tipos de fissão:

- i) O primeiro tipo é a quebra do núcleo em três fragmentos de massa comparáveis (fissão ternária) ou em quatro fragmentos de massa comparáveis (fissão quaternária). No ^{235}U , segundo estudos realizados, a ocorrência de fissão do tipo ternária é de $16,7 \pm 3$ fissões ternárias para 1×10^6 fissões binárias^[24]. Outro estudo, agora para o ^{252}Cf , obteve a frequência de 1 fissão ternária a cada 20.000 fissões binárias^[2]. Quanto a fissão quaternária para o ^{235}U foi encontrado 1 fissão quaternária para 3×10^4 fissões binárias^[25], enquanto para o ^{252}Cf , encontraram o resultado de 1 fissão quaternária para 5×10^3 fissões binárias^[10].

ii) O tipo de fissão ternária mais frequentemente encontrado é aquele que apresenta como terceiro fragmento uma partícula alfa altamente energética que é emitida em coincidência com os fragmentos de massa comparáveis da fissão, objeto de estudo do presente trabalho.

A emissão de partícula alfa na fissão ternária foi primeiramente observada por Alvarez [26] em 1943 e, desde então, tem sido revista por vários autores. Quanto a frequência de ocorrência deste tipo de fissão ternária, destacamos na tabela abaixo (tabela II.1) alguns autores e seus resultados:

TABELA II.1

Autores	Frequência
Titterton e Brinkley [10]	1 para 280
Muga, Bowman e Thompson [2]	1 para 415
Watson [3]	1 para 345
Henderson e colaboradores [9]	1 para 312
Nobles [4]	1 para 299

Quanto a distribuição de energia de partículas alfa de longo alcance na fissão espontânea do ^{252}Cf , destacamos abaixo, na tabela II.2, alguns estudos de autores apresentando o pico de energia encontrado:

TABELA II.2

Autores	Pico de Energia(MeV)
Muga, Bowmann e Thopson [2]	19
Watson [3]	16
Nobles [4]	17
Fluss, Kaufman, Steinberg e Wilkins [6]	16
W. Loveland [7]	16
Z. Fraenkel [5]	15
Grachëv, Gusev e Seliverstov [8]	15,8

CAPITULO III

Um Modelo Teórico

Determinar o caminho da partícula alfa dentro do campo eletrostático dos outros dois fragmentos da tripartição (fragmentos de massas comparáveis M_i), envolve um problema de três corpos de Mecânica Clássica, que não tem solução exata. De acordo com a referência 12, desenvolvemos em seguida, uma solução aproximada.

No instante da quebra do núcleo do ^{252}Cf (figura III.1), as distâncias do ponto de contato dos dois fragmentos, onde assumimos que seja emitida a partícula alfa de longo alcance, e os centros de cargas (Z) dos fragmentos é dado por $s_i = r_i (1 + 0,9314 \beta_i)$, onde β_i é o parâmetro de deformação dos fragmentos ($i = 1$ para o fragmento mais leve e, igual a 2, para o fragmento mais pesado).

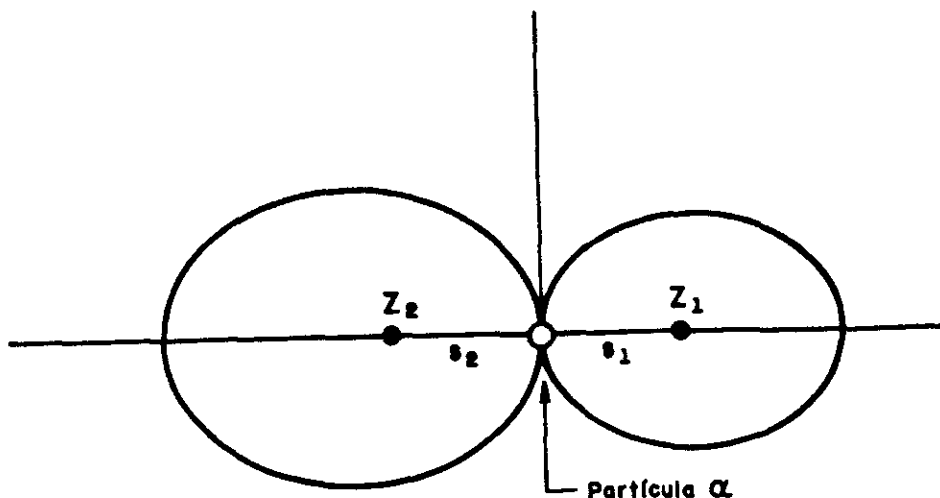


Fig. III.1: Os fragmentos e a partícula alfa de longo alcance no instante da "quebra" do núcleo de ^{252}Cf .

Para um instante $t(k)$ posterior podemos observar na figura III.2, a posição relativa dos fragmentos de fissão e a partícula alfa de longo alcance, onde $X_i(t)$ é a posição dos fragmentos.

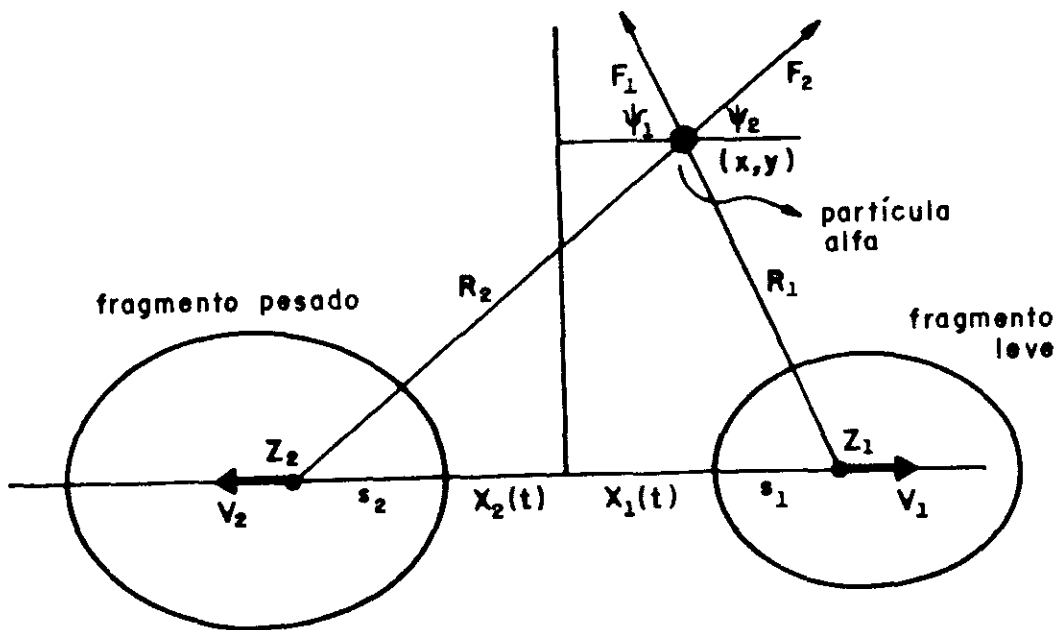


Fig. III.2: Os dois fragmentos de fissão e a partícula alfa de longo alcance em um tempo genérico $T(k)$.

Nas figuras III.1 e III.2, temos:

- S_i ($i = 1, 2$) - Distâncias no instante da fissão do ponto de contato dos dois fragmentos, de onde a partícula α está emitida aos centros de carga dos dois fragmentos.
- $X_i(t)$ ($i = 1, 2$) - Abcissas dos dois fragmentos após um tempo T , marcadas a partir do ponto de contato.
- $P(x, y)$ - Ponto onde se encontra a partícula α após o tempo T .
- F_i ($i = 1, 2$) - Forças coulombianas que atuam sobre a partícula α pela ação dos campos de dois fragmentos.
- Z_i ($i = 1, 2$) - Números atômicos dos dois fragmentos.
- ψ_i ($i = 1, 2$) - Ângulo que os vetores associados às forças coulombianas formam com uma linha paralela ao eixo das abcissas.
- R_i ($i = 1, 2$) - Distâncias dos centros de carga do fragmento de fissão à partícula alfa considerada puntiforme.

Assumimos que o movimento dos dois centros de cargas estão confinados ao eixo x, ou seja, as forças exercidas por alfa sobre os fragmentos é desprezível comparada com as forças que os fragmentos M_i fazem um sobre o outro. Assumimos também que a velocidade inicial dos dois fragmentos é nula e que alfa só tem velocidade inicial no eixo y (que é, então, o único parâmetro ajustável do problema dinâmico). Assim obtemos as equações do movimento para os fragmentos e para a partícula alfa que são, respectivamente:

- para o fragmento mais leve (M_1)

$$M_1 \frac{d^2 X_1}{dT^2} = \frac{Z_1 Z_2 e^2}{(S_1 + X_1 + S_2 + X_2)} \quad (\text{III.1})$$

- para o fragmento mais pesado (M_2)

$$M_2 \frac{d^2 X_2}{dT^2} = \frac{Z_1 Z_2 e^2}{(S_1 + X_1 + S_2 + X_2)} \quad (\text{III.2})$$

- e para a partícula alfa

$$\frac{m d^2 x}{dT^2} = \frac{Z_2 e^2 \cos \psi_2}{(R_2)^2} - \frac{Z_1 e^2 \cos \psi_1}{(R_1)^2} \quad (\text{III.3})$$

e

$$m \frac{d^2 y}{dT^2} = \frac{Z_2 e^2 \sin \psi_2}{(R_2)^2} + \frac{Z_1 e^2 \sin \psi_1}{(R_1)^2} \quad (\text{III.4})$$

Fazendo uma evolução temporal e usando para efei

to de cálculo um incremento de tempo igual a 10^{-23} s, obtem-se que, para um tempo $(k+1)$ as componentes da velocidade de alfa são iguais a:

$$V_y(k+1) = V_y(k) + \frac{F_y(k+1)}{m} \Delta T \quad ; \quad (\text{III.5})$$

$$V_x(k+1) = V_x(k) + \frac{F_x(k+1)}{m} \Delta T \quad (\text{III.6})$$

Assim, facilmente pode-se determinar o ângulo θ de emissão que é obtido como $\theta = \text{tg}^{-1}(V_y/V_x)$, e para uma energia cinética inicial igual a 2 MeV, o ângulo é calculado para várias massas e representado graficamente na fig. III.3. Os resultados experimentais também são apresentados.

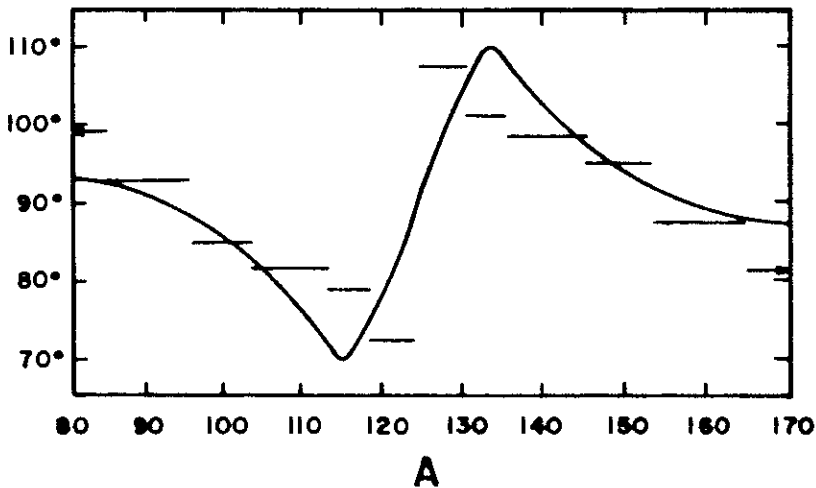


Fig. III.3: Curva teórica para a correlação angular para a partícula alfa, assumindo a energia cinética inicial igual a 2MeV, comparada com resultados experimentais de Fraenkel e Thompson^[27] representados pelas barras horizontais.

Variando o valor da energia cinética inicial fazemos os mesmos cálculos anteriores, e os resultados são plota-

dos na figura III.4.

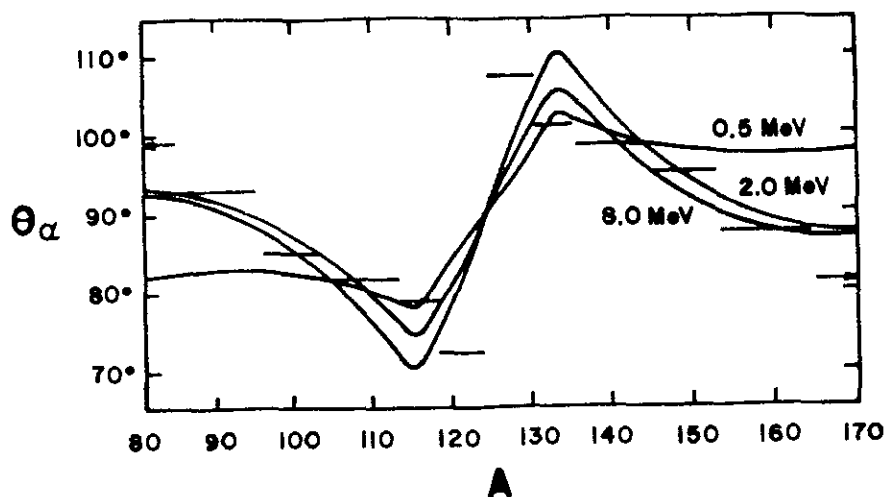


Fig. III.4: Curvas teóricas para a correlação angular para a partícula alfa, assumindo energias cinéticas iniciais igual a 0,5, 2,0 e 8,0 MeV, respectivamente, comparadas com resultados experimentais de Fraenkel e Thompson [27] representados pelas barras horizontais.

Finalmente apresentamos na figura III.5, um cálculo teórico para a posição dos dois fragmentos e da partícula alfa de longo alcance, depois de sucessivos incrementos temporais de 2.0×10^{-22} segundos cada, para a razão de massa 131/117 dos fragmentos e energia cinética inicial de 2.0 MeV para a partícula alfa de longo alcance.

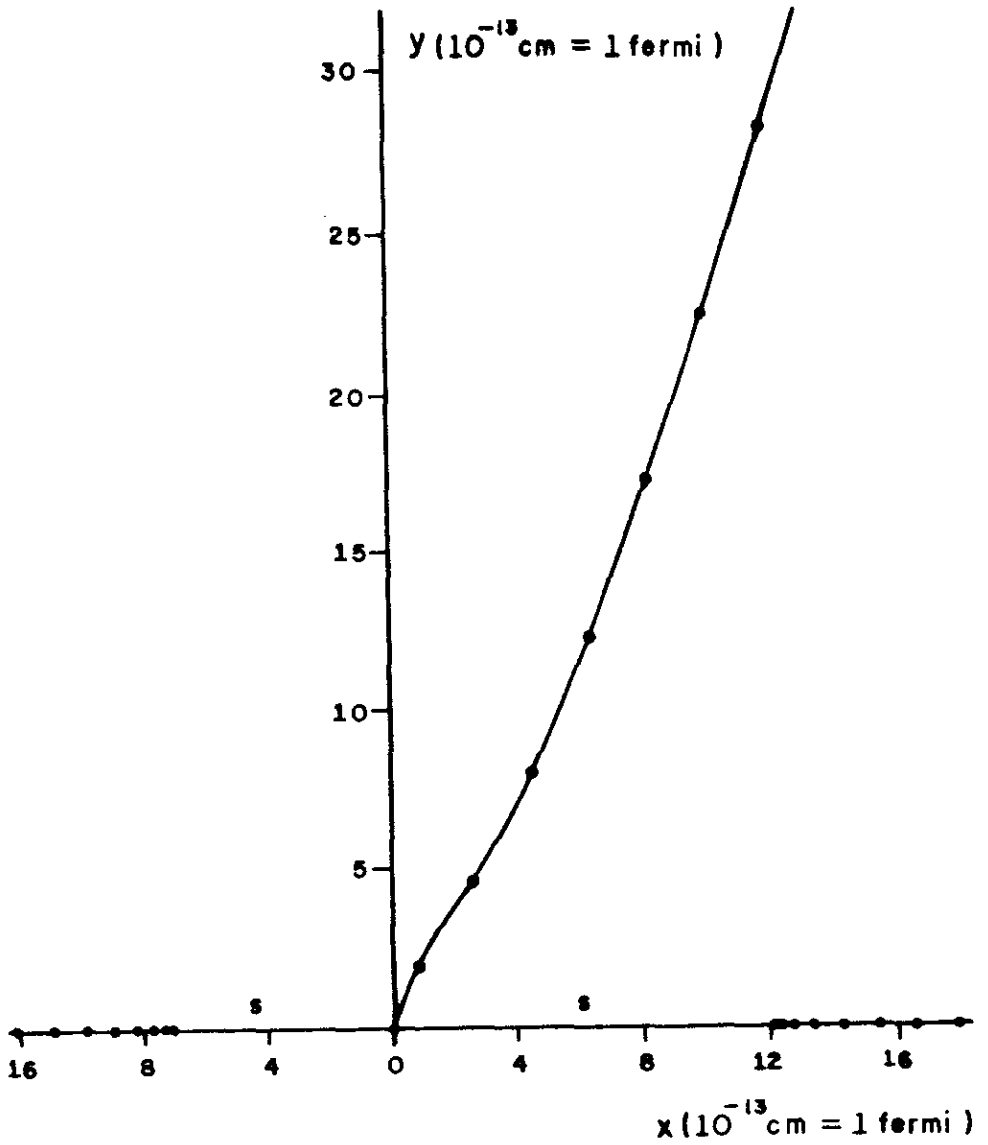


Fig. III.5: A posição dos dois fragmentos e da partícula alfa de longo alcance de sucessivos movimentos temporais de 22×10^{-22} segundos cada.

CAPÍTULO IV

Material e Métodos

Para atingirmos os objetivos deste trabalho utilizamos uma fonte de ^{252}Cf cuja atividade medida em dezembro de 1981, era de $1,32 \times 10^5$ fissões/cm².minuto, com um diâmetro útil de 1cm.

O detetor utilizado foi emulsão nuclear do tipo KO, devido a sua baixa sensibilidade à prótons, da ILFORD, com espessura de 100 µm. (2cm de largura e 10cm de comprimento).

O detetor e a fonte foram orientados, obedecendo sempre o mesmo critério quanto à disposição geométrica (figura IV.1).

O centro geométrico do detetor foi colocado a 10 cm do centro da fonte de ^{252}Cf , e mantido a um ângulo de inclinação de 15° em relação a fonte (figura IV.1).

A disposição geométrica, o ângulo de inclinação e a distância fonte-detetor, foi determinada para a obtenção do maior número de eventos bem como possibilitar o registro de partículas alfa de longo alcance de até 40 MeV.

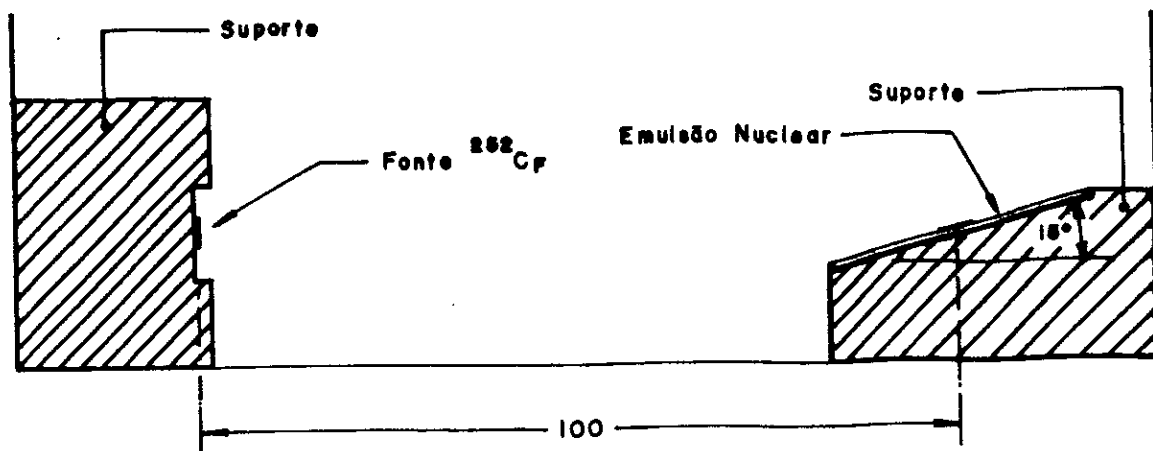


Fig. IV.1: Ilustração esquemática da disposição da fonte do ^{252}Cf e da emulsão nuclear nas experiências desenvolvidas.

Este arranjo experimental (figura IV.1) foi então levado ao interior de um recipiente de vidro onde foi feito vácuo.

Para possibilitar o melhor desempenho da microscopia, utilizou-se uma pequena abertura de 2cm no centro de emulsão, ou seja, era feita a vedação da emulsão nuclear com uma folha de cartolina com uma janela central de área igual a 2cm^2 .

Os detalhes do trabalho de microscopia estão no apêndice A (A.5).

IV.1 - PARA A OBTENÇÃO DE CONTAGEM DE FRAGMENTOS DE FISSÃO DO ^{252}Cf

Três emulsões nucleares do tipo KO foram irradiadas com tempos diferentes: duas, durante duas horas enquanto que a terceira foi irradiada durante dez horas.

Depois as emulsões nucleares foram submetidas a

revelações discriminatórias, para que só fossem revelados traços de fragmentos de fissão com o objetivo de posterior contagem de eventos na microscopia.

Os detalhes técnicos deste tipo de revelação estão no apêndice A (A.4).

IV.2 - PARA OBTENÇÃO DE CONTAGEM E ALCANCE DE PARTÍCULAS ALFA DE LONGO ALCANCE

Se, para a contagem ou mesmo a medida do alcance de partículas alfa de longo alcance, utilizássemos o mesmo procedimento do item anterior (IV.1), modificando apenas a revelação, permitindo também a revelação de partículas alfa de longo alcance, estaríamos com um grande problema de microscopia pois, a cada partícula alfa de longo alcance, teríamos 415 fissões espontâneas^[2] e aproximadamente 12.000 partículas alfa de decaimento^[11], o que resultaria em um trabalho de muita dificuldade e de possíveis grandes erros na microscopia.

Assim precisamos recorrer a um filtro que absorvesse todos os fragmentos de fissão bem como partículas alfa de decaimento. Depois de estudos baseados em J.B. Marion & F.C. Young^[28], resolvemos utilizar um filtro de alumínio de 30 µm de espessura.

O poder frenador deste filtro de alumínio, além de absorver todos os fragmentos de fissão do ²⁵²Cf bem como as partículas alfa de decaimento, faz com que as partículas alfa de longo alcance percam parte de sua energia pois estas tiveram que vencer também o filtro de alumínio, ou seja, ao obtermos os resultados de alcance das partículas alfa de longo alcance da

microscopia, temos que fazer uma correção na energia das partículas alfa de longo alcance para obtermos o espectro, digamos, "real". A título de exemplo, uma partícula alfa de 7 MeV, após passar pelo filtro de alumínio de 30 μm perde parte de sua energia devido a ionização no alumínio, ficando, então, com energia igual a 2 MeV^[28].

Três emulsões nucleares do tipo KO foram irradiadas duram 120 horas cada uma, para que pudéssemos obter uma estatística confiável. Após a irradiação, as emulsões foram, então, reveladas.

Detalhes deste tipo de revelação encontram-se no apêndice A (A.4).

CAPÍTULO V

Resultados

A fonte de ^{252}Cf utilizada, apresentava uma atividade de $1,32 \times 10^5$ fissões/cm².minuto, em dezembro de 1981, com um diâmetro de 1 cm.

Na tabela V.1, apresentamos os dados obtidos para três placas de emulsões nucleares, do tipo KO, todas com o mesmo tempo de exposição igual a 120 horas, onde foram realizadas as contagens de eventos, bem como o alcance das partículas alfa (fonte com filtro de alumínio com espessura de 30 μm).

TABELA V.1

Chapana	Total de Traços	Área de Observação [cm ²]	Densidade de Traços [cm ⁻²]	Densidade Específica de Traços [cm ⁻² h ⁻¹]	Densidade Específica Média de Traços $\bar{\rho}_\alpha$ [cm ⁻² h ⁻¹]
01	259	2,00	$1,29 \times 10^2$	1,08	1,03 \pm 0,02
02	217	1,78	$1,22 \times 10^2$	1,02	
03	202	1,70	$1,19 \times 10^2$	0,99	

Na tabela V.2 apresentamos os dados obtidos para três placas de emulsões nucleares do tipo KO, onde foram realizada

das as contagens de eventos de traço de fragmentos de fissão do ^{252}Cf .

TABELA V.2

Chapa Nº	Tempo Exposição (horas)	Nº de Traços	Área Observada [cm ²]	Densidade de Traços [cm ⁻²]	Densidade Específica de Traços [cm ⁻² h ⁻¹]	Densidade Específica Média $\bar{\rho}_{ff}$ [cm ⁻² h ⁻¹]
04	2h	1901	1,34	$1,42 \times 10^3$	$7,09 \times 10^2$	672 ± 24
05	2h	1132	0,83	$1,36 \times 10^3$	$6,82 \times 10^2$	
06	10h	9521	1,52	$6,26 \times 10^3$	$6,26 \times 10^2$	

Os valores da densidade específica média de fragmentos de fissão ($\bar{\rho}_{ff}$) bem como da densidade específica média de partículas alfa de longo alcance ($\bar{\rho}_{\alpha}$), foram calculadas tomando-se a média das respectivas densidades de traços, estabelecendo-se também assim, o desvio padrão.

V.1 OBTENÇÃO DA RAZÃO (R) ENTRE O NÚMERO DE FISSÕES DO ^{252}Cf E O NÚMERO DE PARTÍCULAS ALFA DE LONGO ALCANCE

Para a obtenção da razão entre o número de fissões do ^{252}Cf e o número de partículas alfa de longo alcance, temos que tomar os dados das Tabelas V.1 e V.2 e compararmos os dados de densidade específica média de ambas as Tabelas, pois assim teremos comparados os dados tomados pela mesma área de observação, mesmo tempo de exposição e em geometrias idênticas. Assim:

$$R = \frac{1}{2} \frac{\bar{\rho}_{ff}}{\bar{\rho}_{\alpha}} \tag{V.1}$$

onde $\bar{\rho}_{ff}$ é a densidade específica média de traços de fragmentos de fissão (o número de fissões é igual a $\frac{1}{2}\bar{\rho}_{ff}$) e $\bar{\rho}_{\alpha}$ é a densidade específica média de traços de partículas alfa de longo alcance.

Para o presente trabalho, a razão R encontrada foi de 326 ± 13 , ou seja, o número de fissões espontâneas é de 326 vezes maior do que o número de partículas alfa de longo alcance para o ^{252}Cf .

V.2 DETERMINAÇÃO DO ESPECTRO DE ENERGIA DAS PARTÍCULAS ALFA DE LONGO ALCANCE DO ^{252}Cf

A utilização do filtro de alumínio com $30 \mu\text{m}$ de espessura possibilitaria a obtenção do espectro de energia de partículas alfa de longo alcance a partir de 7 MeV.

A escolha da emulsão nuclear do tipo KO como detector deve-se principalmente ao fato desta apresentar baixa sensibilidade a prótons, com limiar de detecção de aproximadamente $5 \times 10^{-2} \text{ MeV/ m}^{[29]}$ (figura V.1).

Através dos dados obtidos na microscopia (apêndice A - A.5), efetuamos o levantamento do histograma do alcance das partículas alfa de longo alcance, demonstrado na fig. V.2.

Ao fazermos a análise do histograma do alcance das partículas de longo alcance (figura V.2), observamos um grande número de eventos com até $20 \mu\text{m}$ de comprimento (alcance) na emulsão nuclear utilizada.

Este fato pode ser explicado pelo registro em emulsões nucleares do tipo KO de prótons de recuo, devido a reação (n,p) , que marcam a emulsão nuclear com traços de tamanho

(alcance) de até 20 μm (prótons com energia de até 1 MeV^[29]).

Sabemos também que parte destes traços com até 20 μm são partículas alfa de longo alcance, mas não tendo neste caso como realizarmos uma revelação que discriminaria prótons de partículas alfa, optamos por desconsiderar todos os eventos com alcance até 20 μm na emulsão nuclear, o que por via de consequência, resulta em um novo histograma, representado na figura V.3. Este fato traz uma outra consequência: faz com que nosso espectro de energia seja obtido para partículas alfa de longo alcance a partir de 9,0 MeV.

Através de Pierre Demers^[29] (figura V.4) podemos a partir do histograma de alcance das partículas alfa de longo alcance (figura V.3), obter o histograma de energia destes eventos (figura V.5).

Este histograma de energia para partículas alfa de longo alcance, representado na figura V.5, seria o histograma desejado para atingirmos finalmente o nosso objetivo de determinarmos o espectro de energia, não fosse pela presença do filtro de alumínio de 30 μm de espessura que serviu como absorvedor de partículas alfa de decaimento e fragmentos de fissão do ^{252}Cf , mas que ao mesmo tempo fez com que as partículas alfa de longo alcance perdessem parte de sua energia original, isto é, conforme foram emitidas pela fonte.

Assim sendo, para a obtenção do histograma de energia das partículas alfa de longo alcance (figura V.6), como se estas não tivessem atravessado o filtro de alumínio, fizemos uma correção de energia no histograma da figura V.5. Esta correção foi realizada baseada em Marion e Young^[28] (figura V.7).

Finalmente, fazendo uma normalização para o número de eventos e uma aproximação, obtivemos o espectro de energia para as partículas alfa de longo alcance, representado na figura V.8 onde podemos observar um pico em torno de 15 MeV.

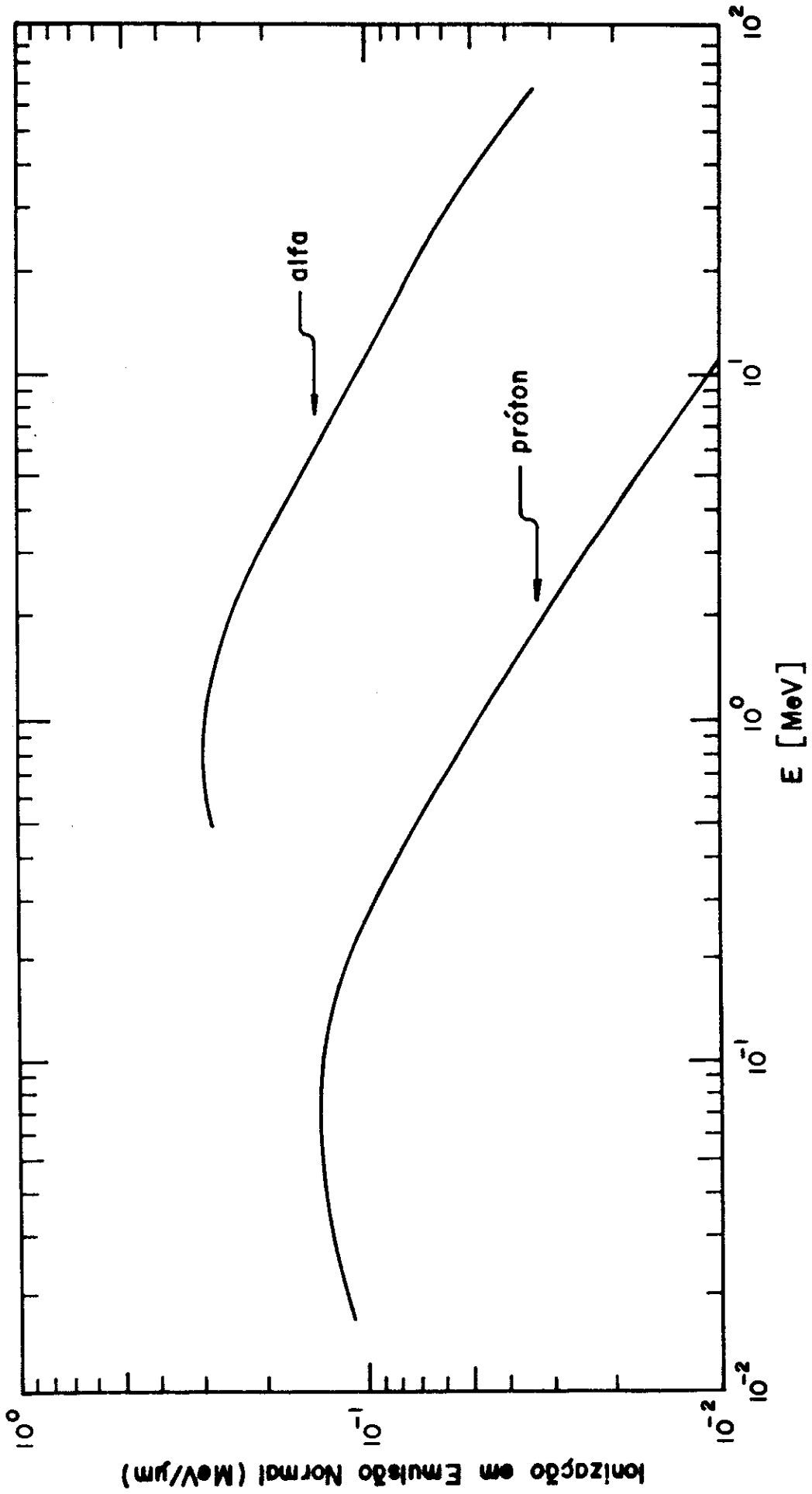


Fig. V.1: Ionização de prótons e partículas alfa em emulsão nuclear

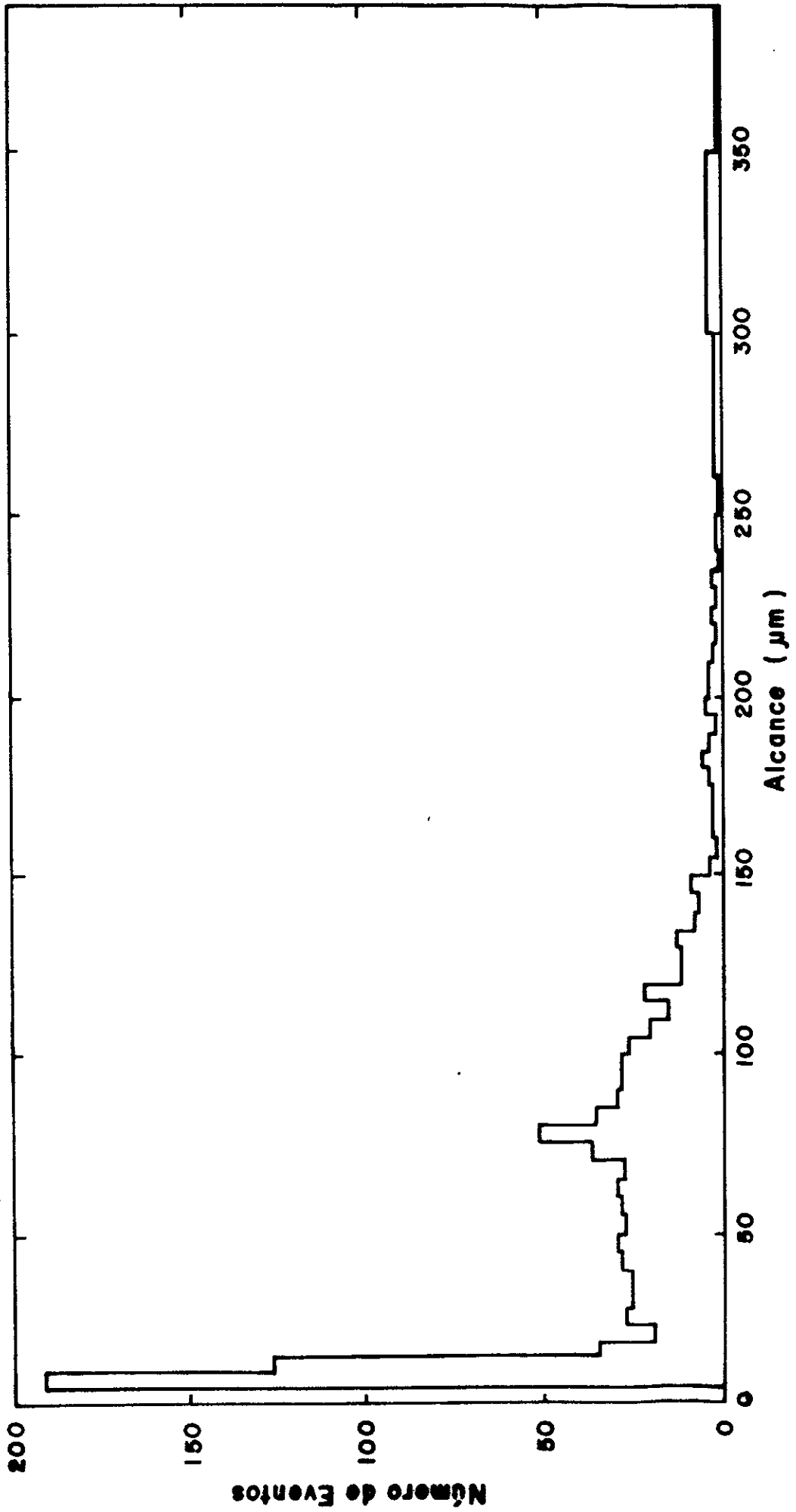


Fig. V.2 : Histograma do alcance de partículas alfa (fonte com filtro de alumínio)

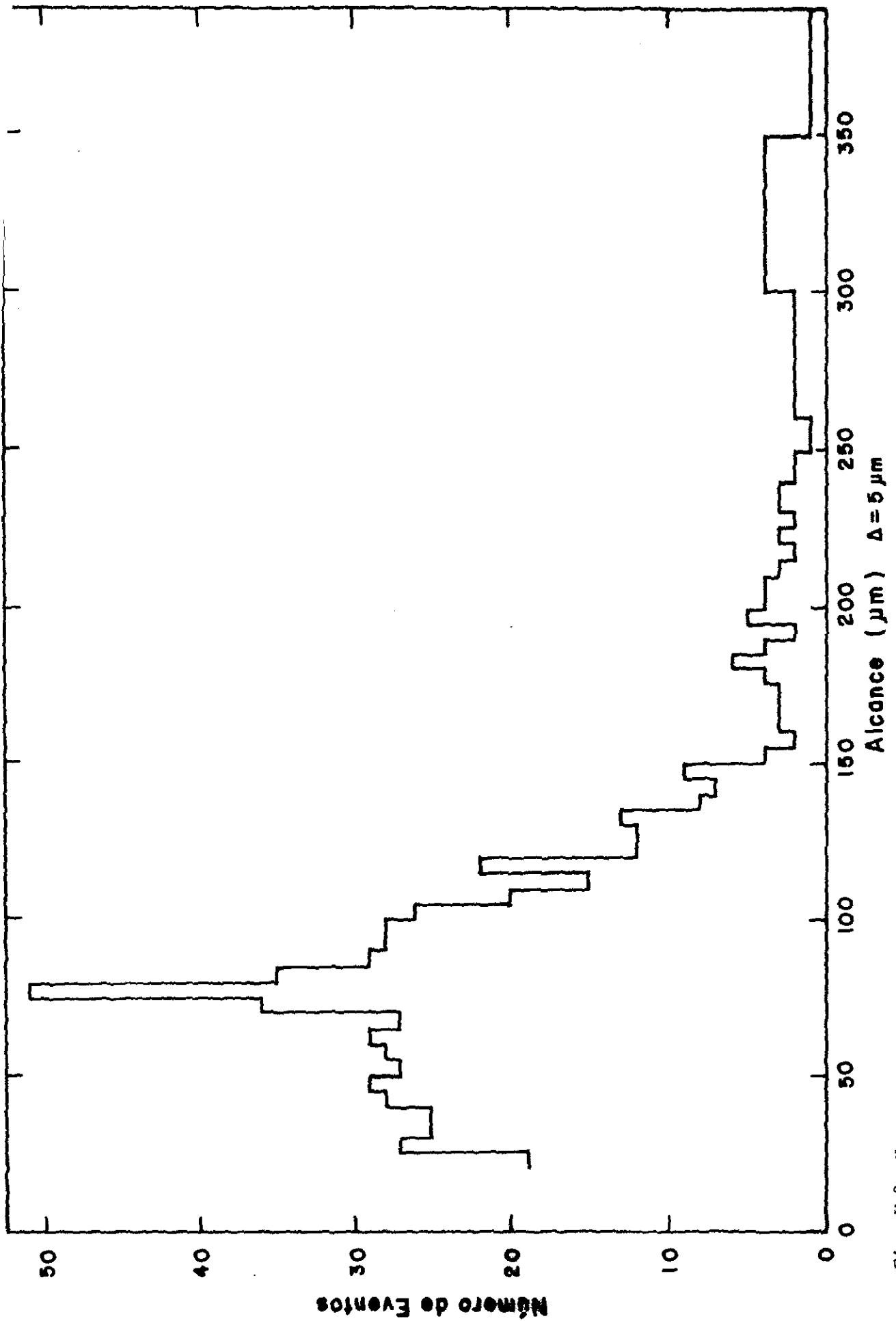


Fig. V.3: Histograma do alcance das partículas alfa de longo alcance (fonte com filtro de alumínio)

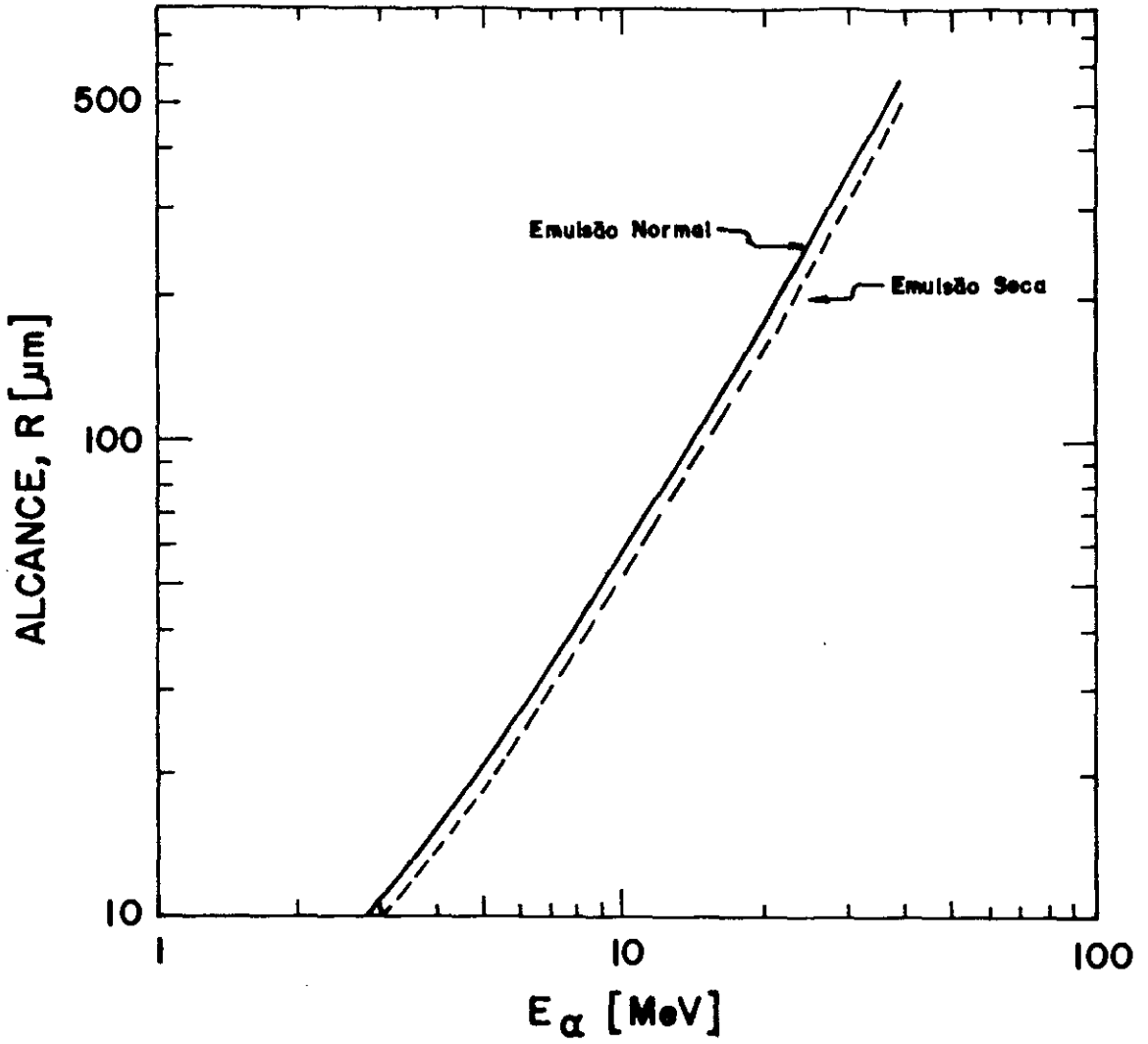


Fig. V.4: Alcance de partículas alfa em emulsão nuclear[29]

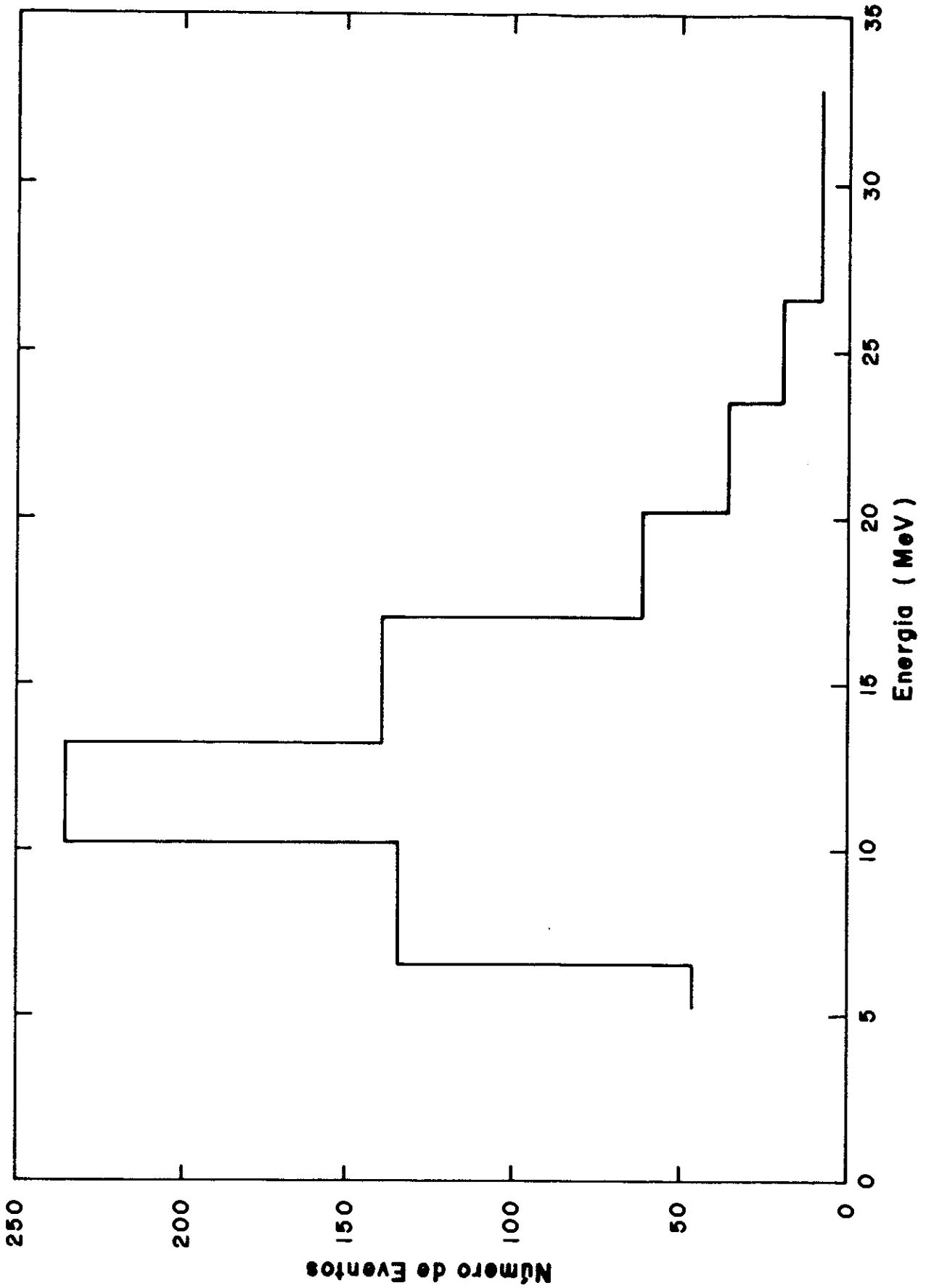


Fig. V.5: Histograma de energia para partículas alfa de longo alcance (fonte com alumínio)

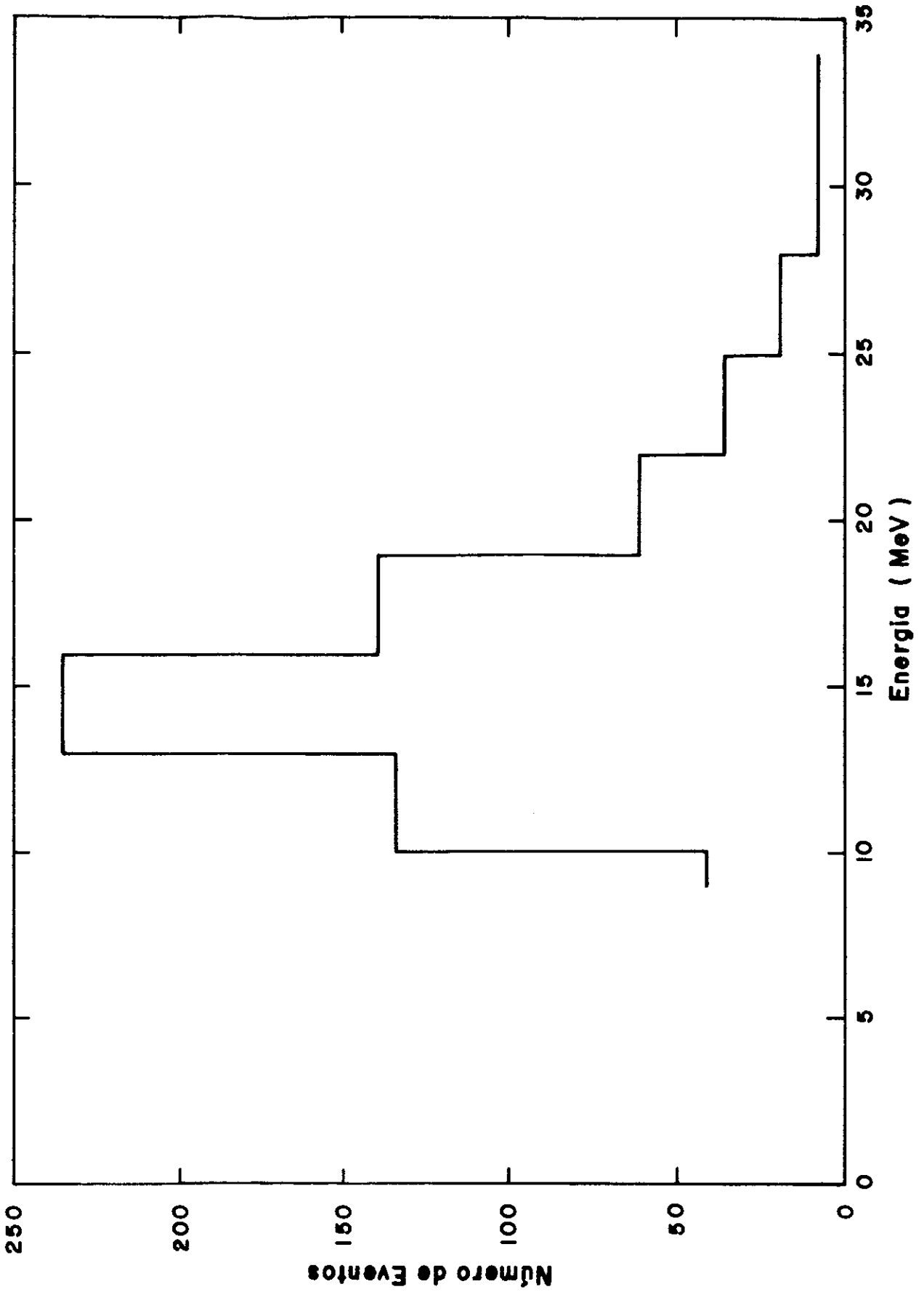


Fig. V. 6: Histograma de energia de partículas alfa emitidas pela fonte

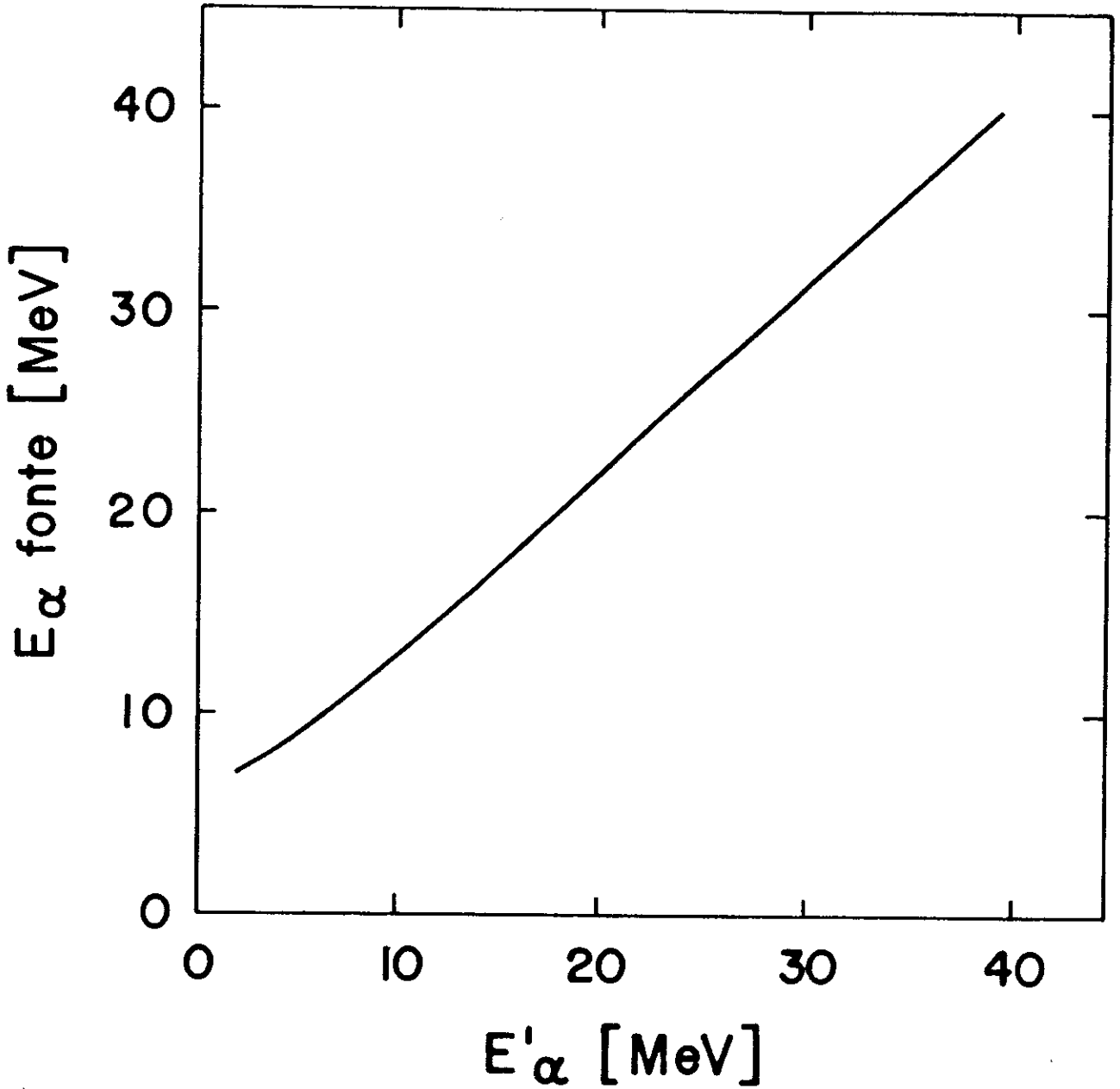


Fig. V.7: Correção da energia das partículas alfa de longo alcance após passagem pelo filtro de alumínio.

No eixo y: Energia das partículas alfa emitida na fonte.
No eixo x: Energia das partículas alfa após passagem pelo filtro de alumínio.

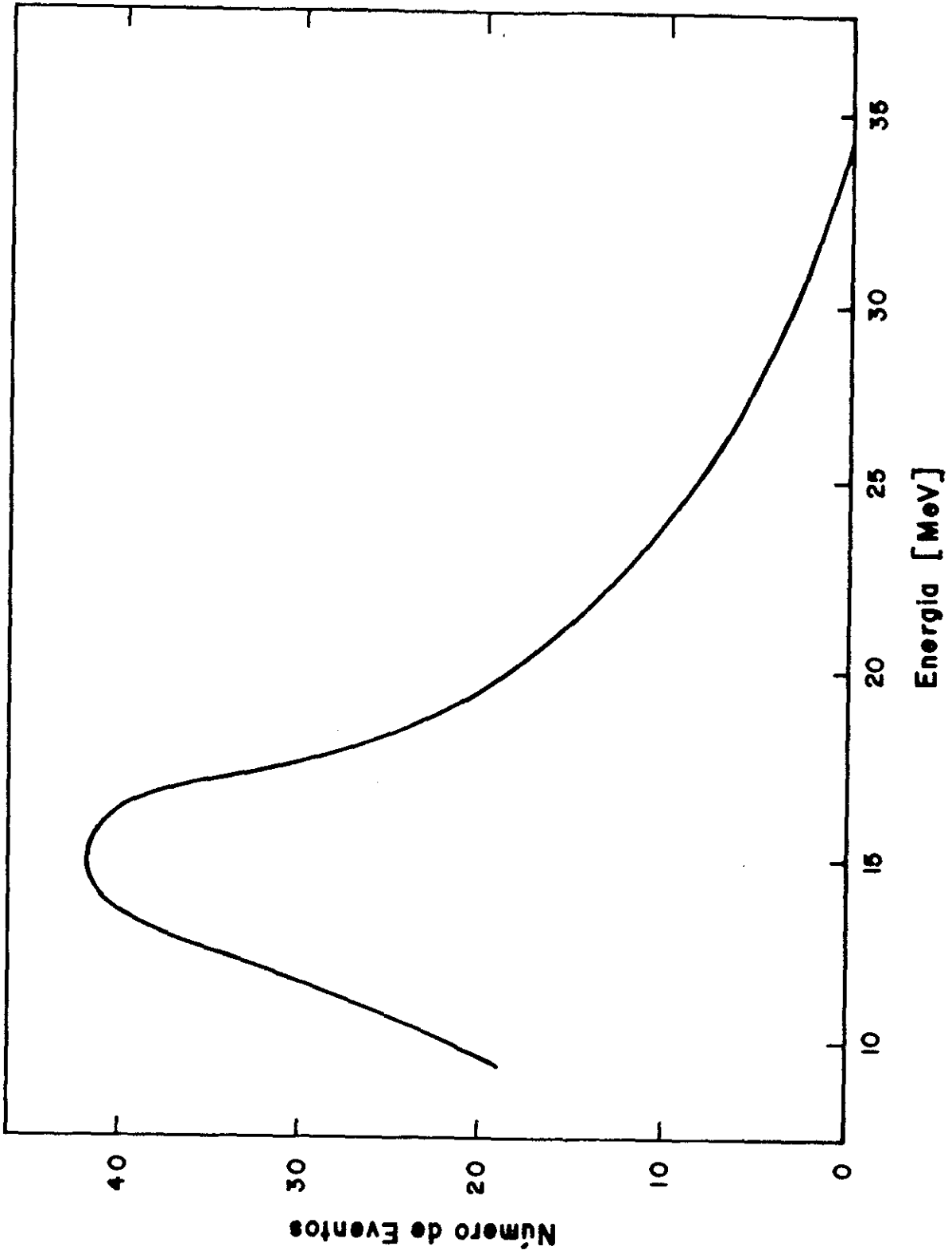


Fig. V.8: Espectro de Energia para as partículas alfa de longo alcance.

CAPÍTULO VI

Discussões e Conclusões

VI.1 DISCUSSÕES

Na tabela VI.1 abaixo, reproduzimos a tabela II.1, acrescentando o resultado do presente trabalho:

Tabela VI.1

Autores	Frequência
Titterton e Brinkley ^[10]	1 para 280
Muga, Bowmane Thompson ^[2]	1 para 415
Waltson ^[3]	1 para 345
Henderson e colaboradores ^[9]	1 para 312
Nobles ^[4]	1 para 299
PRESENTE TRABALHO	1 para 326

Analisando a tabela V.1, podemos observar que o resultado deste presente trabalho (1 partícula alfa de longo alcance para 326 fissões espontâneas do ^{252}Cf), é muito próximo dos resultados de Watson^[3], Henderson e colaboradores^[9], autores estes que fizeram uso de técnica de detecção de partículas alfa e fragmentos de fissão envolvendo eletrônica.

Por outro lado, o resultado deste presente trabalho é altamente discordante com os resultados obtidos por Titterton e Brinkley^[10]; Muga, Bowman e Thompson^[2] que fizeram uso de técnica de detecção de partículas alfa e fragmentos de fissão envolvendo emulsões nucleares, técnica semelhante a utilizada

neste presente trabalho.

Na Tabela VI.2 reproduzimos a Tabela II.2 acrescentando o resultado do presente trabalho:

Tabela VI.2

Autores	Pico de Energia (MeV)
Muga, Bowman e Thompson ^[2]	19
Watson ^[3]	16
Nobles ^[4]	17
Fluss, Kaufman, Steinberg e Wilkins ^[6]	16
W. Loveland ^[7]	16
Z. Fraenkel ^[5]	15
Grachëv, Gusev e Seliverstov ^[8]	15,8
PRESENTE TRABALHO	15

Podemos observar que o resultado do presente trabalho para o pico do espectro de energia das partículas alfa de longo alcance (15 MeV) é coincidente com o resultado obtido por Fraenkel^[5], e altamente concordante com os resultados obtidos por Watson^[3], Fluss e colaboradores^[6], Grachëv e colaboradores^[8] e Loveland^[7], autores estes que fizeram uso de técnicas eletrônicas em seus trabalhos. Por outro lado, o resultado deste presente trabalho para o pico do espectro de energia das partículas alfa de longo alcance (15 MeV) é discordante com o resultado obtido por Muga, Bowman e Thompson^[2], que fizeram uso da técnica de emulsão nuclear.

Observando a figura VI.1 que reproduz o espectro de energia obtido por W. Loveland^[7] e a figura VI.2 que reproduz o espectro de energia obtido por Muga, Bowman e Thompson^[2] e comparando-as com a figura V.8 que mostra o espectro de energia obtido no presente trabalho, notamos que o valor máximo de energia para partículas alfa de longo alcance detectadas no trabalho de Loveland^[7], foi de 32 MeV, este trabalho foi realizado

utilizando técnica de detecção envolvendo aparato de eletrônica, enquanto que neste presente trabalho detectamos partículas alfa de longo alcance de até 34 MeV, resultado este coincidente com o de Muga, Bowman e Thompson^[2] que, por sua vez, fizeram uso de técnica de carregamento de emulsão nuclear para a obtenção deste espectro reproduzido na figura VI.2.

Era intenção original deste trabalho também fazer o levantamento do espectro angular de emissão de partículas alfa de longo alcance. Para tanto necessitaríamos de fazer um carregamento de emulsão nuclear, que consiste basicamente de, ao misturarmos a gelatina para a composição da emulsão nuclear, dissolvermos nesta mistura uma solução contendo no caso ^{252}Cf .

Este experimento foi realizado mas, ao analisarmos os resultados obtidos, notamos um número muito pequeno de eventos na emulsão nuclear carregada, o que provavelmente nos levaria a uma estatística muito pobre e pouco conclusiva. O baixo número de eventos deve-se ao fato da fonte de ^{252}Cf do laboratório estar com atividade reduzida.

Assim sendo, optamos por apenas apresentar na figura VI.3 uma microfotografia que mostra uma tripartição do ^{252}Cf , não entrando, de forma alguma, nos resultados obtidos com este experimento.

Uma das questões quanto ao fenômeno da emissão de partículas alfa de longo alcance associada à fissão do ^{252}Cf é a discussão do ponto de vista teórico, se a partícula alfa de longo alcance é formada na quebra do núcleo de ^{252}Cf ou se é emitida como um "cluster", fato este, por exemplo, discutido na literatura por Pik-Pichak^[33].

Os resultados deste presente trabalho não nos fornece indicação para que possamos discutir este fato, ainda em aberto na literatura.

VI.2 CONCLUSÕES

- O modelo de Peter Fong^[12], apesar de simples, explica bem a dinâmica do processo de emissão das partículas alfa de longo alcance na fissão espontânea do ^{252}Cf .
- O resultado obtido para o pico do espectro de energia (15 MeV) está em concordância com a maioria dos trabalhos existentes na literatura, que fizeram uso de detecção de partículas alfa de longo alcance através de sistemas eletrônicos.
- A relação entre o número de partículas alfa de longo alcance e o número de fissões espontâneas do ^{252}Cf obtida neste presente trabalho (uma partícula alfa de longo alcance a cada 326 fissões espontâneas), concorda com a média aritmética dos valores obtidos na tabela II.1 (330,2 MeV).
- O processo utilizado com o absorvedor de alumínio, com objetivo de eliminar as partículas alfa de decaimento bem como os fragmentos de fissão, apresentou um resultado relevante.
- A técnica de emulsão nuclear continua sendo a mais razoável para a verificação deste evento. Com o desenvolvimento de pesquisa no campo de detetores, será possível utilizar, por exemplo, CR-39 para este tipo de pesquisa.
- É intenção prosseguirmos nosso trabalho no estudo da emissão de partículas alfa de longo alcance em outros núclídeos, como é o caso da fissão espontânea do ^{235}U .

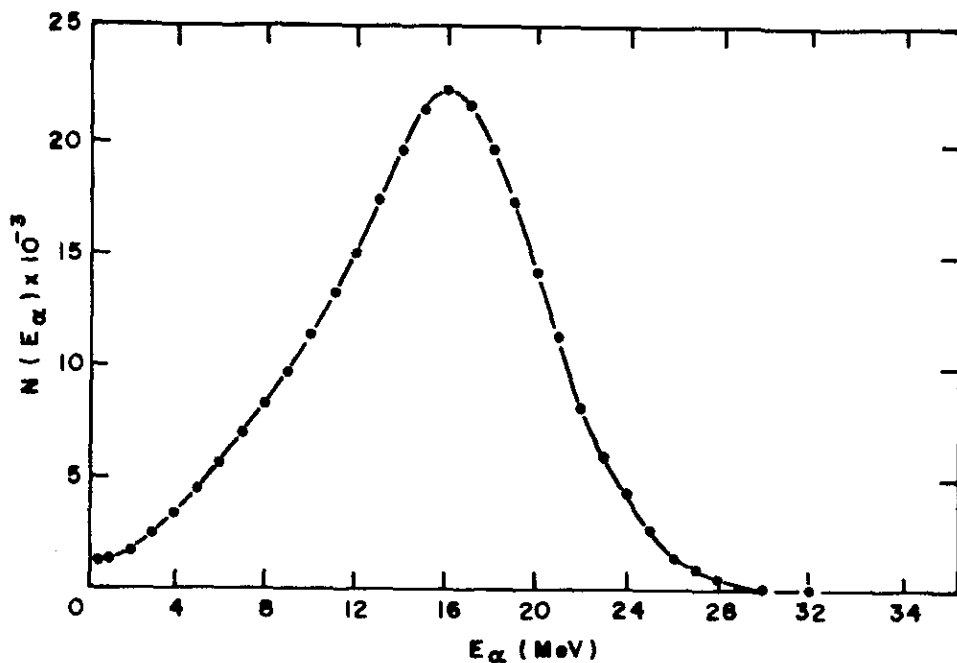


Fig. VI.1 Reprodução do resultado de W. Loveland [7]

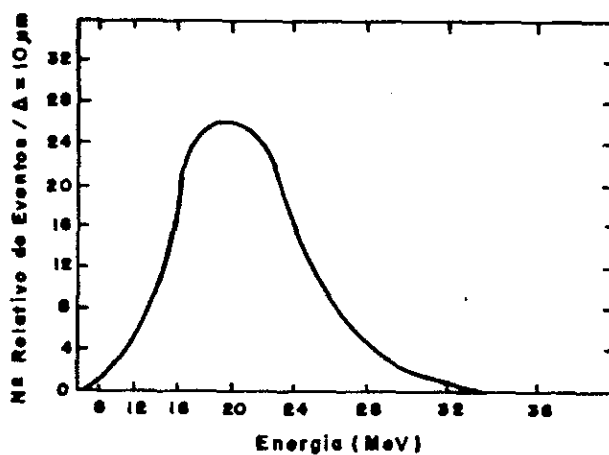


Fig. VI.2: Reprodução do resultado de Muga, Bowman e Thompson [2]



Fig.VL3:Em destaque, a fissão ternária do ^{252}Cf (escala 1:1000)

APÊNDICE A

A Emulsão Nuclear como detetor de fragmentos de fissão e partículas alfa

Introdução

A emulsão nuclear, além de ser um instrumento poderoso no estudo da fissão espontânea assim como no estudo da fissão induzida por diferentes maneiras, é também um meio de investigação de vários fenômenos, como por exemplo, a produção de mésons, identificação de novas partículas e muitos outros.

A técnica de Emulsão Nuclear apresenta certas desvantagens tais como:

- o pequeno volume no qual se analisa um fenômeno, visto que, frequentemente na microscopia trabalha-se no limite de resolução das objetivas;
- o "fundo" constituído por um acúmulo de grande número de traços indesejáveis;
- distorções na revelação que afetam as medidas de comprimento e ângulo;
- variações da espessura com a umidade relativa;
- morosidade no exame das películas ao microscópio;

- o desaparecimento gradual da imagem latente (fading).

O que se segue é uma síntese dos principais fatos relacionados com a técnica de emulsão nuclear, necessários à compreensão do mecanismo de detecção de fissão e partículas alfa.

A.1 - EMULSÕES NUCLEARES

A emulsão nuclear é uma dispersão de grãos de halogenetos de prata (principalmente brometo) em gelatina e que apresenta as seguintes características: películas com espessura que variam de 25 a 1200 μm ; relação em peso, de 83 para 17 de halogeneto de prata para gelatina; relação em volume de 49 para 51, e grãos, cujos diâmetros variam de 0,1 a 0,4 μm . Uma das características da emulsão nuclear é a alta concentração do halogeneto de prata, sendo cinco vezes maior do que a usada em fotografia comum. A emulsão nuclear possui as seguintes propriedades: poder frenador ("stopping power") cerca de 2000 vezes maior do que o dos gases à pressão de uma atmosfera; registra continuamente partículas ionizantes durante a exposição; é altamente higroscópica e sua massa específica varia com a umidade relativa do ambiente.

A questão da sensibilidade das emulsões nucleares está ligada ao tamanho e densidade dos grãos, sendo dependente da temperatura, pressão, tensões internas e umidade relativa. A influência da temperatura sobre a sensibilidade das emulsões expostas à luz é mais significativa do que as expostas a raios X ou partículas carregadas. Exemplificando, a sensibilidade da emulsão nuclear tipo G.5 é máxima por volta de 0°C e para o tipo C.2 o máximo ocorre em torno de 25°C . Verificou-se

que agentes oxidantes podem dessensibilizar a emulsão nuclear.

A composição química média das emulsões nucleares das séries G, K e L fabricadas pela Ilford, a 58% de umidade relativa pode ser vista na Tabela A.1 que se segue.

Elemento	g/cm ³
Prata	1,817 ± 0,029
Bromo	1,388 ± 0,020
Iodo	0,0120 ± 0,0002
Carbono	0,277 ± 0,006
Hidrogênio	0,0534 ± 0,0012
Oxigênio	0,249 ± 0,005
Nitrogênio	0,074 ± 0,002
Enxôfre	0,0072 ± 0,0002

Tabela A.1: Composição da emulsão nuclear Ilford das séries G,K e L (58% de umidade relativa)

O diâmetro e a forma dos grãos de halogeneto de prata podem variar em emulsões nucleares de mesma composição química. Aliás, esta é uma das características dos diferentes tipos de emulsão. Temos, por exemplo, que os diâmetros médios dos grãos na emulsão G.5, K.0 e L.4 da Ilford são 0,27, 0,20 e 0,14, respectivamente. As emulsões nucleares podem ser encontradas em inúmeras firmas que se destacaram pelo sucesso na fabricação de emulsões para pesquisa e, entre elas, citamos a Ilford Ltda (Londres), a Eastman Kodak Company (Rochester), NIKFI Institute (Moscou), Fuji Films (Tóquio) e Kodak Ltda (Harrow).

A.1.1 A Gelatina e Suas Propriedades

A gelatina é uma mistura de diferentes polipeptídios, de composição química não definida e originária do coláge

no. É uma substância anfótera estruturalmente contendo radicais ácidos e básicos. Sua composição média porcentual, em peso, é: hidrogênio 7, carbono 51, nitrogênio 18 e oxigênio 24; seu peso molecular médio varia de 20.000 a 400.000 unidades de massa atômica. Quando a gelatina se encontra em solução aquosa é possível a neutralização dos radicais, a depender do pH da solução e então ela adquire a carga elétrica do radical carregado predominante. Existe um particular valor do pH, chamado "ponto isoelétrico" no qual as cargas positivas são balanceadas pelas negativas. Este ponto (4,25 para a emulsão G.5 Ilford) depende da estrutura molecular e varia com a origem e processo de obtenção da gelatina.

As propriedades da gelatina dependem do pH do meio em que ela se encontra. Temos, por exemplo, que a viscosidade das soluções da gelatina é mínima no ponto isoelétrico; o ponto de fusão da gelatina é máximo na vizinhança do ponto isoelétrico; sendo uma substância higroscópica, sofre considerável aumento de volume, que é mínimo no ponto isoelétrico; em soluções cujo pH é maior que o do seu ponto isoelétrico, a gelatina possui carga negativa predominante que contribui para diminuir a velocidade de difusão de íons negativos, fato este, de grande importância nos processos de revelação e fixação.

A.1.2 Cristais de Halogeneto de Prata

O halogeneto de prata é a substância fotossensível por excelência. Sua sensibilidade depende principalmente da existência de tensões internas as quais provêm de imperfeições na estrutura cristalina produzidas durante o processo de fabricação dos micro cristais (grãos). A própria gelatina, on-

de eles se acham dispersos, pode ser agente sensibilizador. Eles podem perder a sensibilidade quando submetidos a tratamento térmico, daí a dependência da sensibilidade com a temperatura. O brometo de prata, por exemplo, tem estrutura cristalina cúbica. No entanto os cristais de brometo de prata se apresentam com forma octaédrica nas emulsões comuns e forma aproximadamente esférica nas emulsões nucleares conservando porém, internamente, a sua estrutura cristalina.

Na obscuridade e a baixas temperaturas os cristais de halogeneto de prata são maus condutores de eletricidade. Quando porém são iluminados e simultaneamente lhes aplicam uma diferença de potencial, obtem-se uma corrente. Esta propriedade dos halogenetos de prata é conhecida como "Fotocondutividade" e é interpretada da seguinte maneira: a luz arranca elétrons do cristal e estes elétrons livres são responsáveis pela condutividade do cristal. Quando os elétrons são liberados do brometo de prata por partículas ionizantes, por exemplo, dissipa-se em média 5,8 eV por elétron. A fotocondutividade depende fracamente da temperatura do cristal e é explicada em Mecânica Quântica admitindo-se que o espectro de energia dos elétrons é composto de faixas de níveis permitidos de energia, separadas por largas zonas proibidas. Assim se explicaria a fotocondutividade admitindo-se que, normalmente, a faixa de níveis eletrônicos que constituem a banda de condução está totalmente vazia de elétrons e separada da faixa inferior por uma faixa proibida de largura cerca de 2,5 eV (Fig. A.1). Um cristal no seu estado fundamental se comportaria como um isolante porém, se um elétron adquire energia suficiente para atingir a faixa de condu-

ção, ele se comporta como um elétron livre de um condutor metálico. Isto se dá quando o cristal absorve radiação suficiente para elevar elétrons da faixa inferior à de condução.

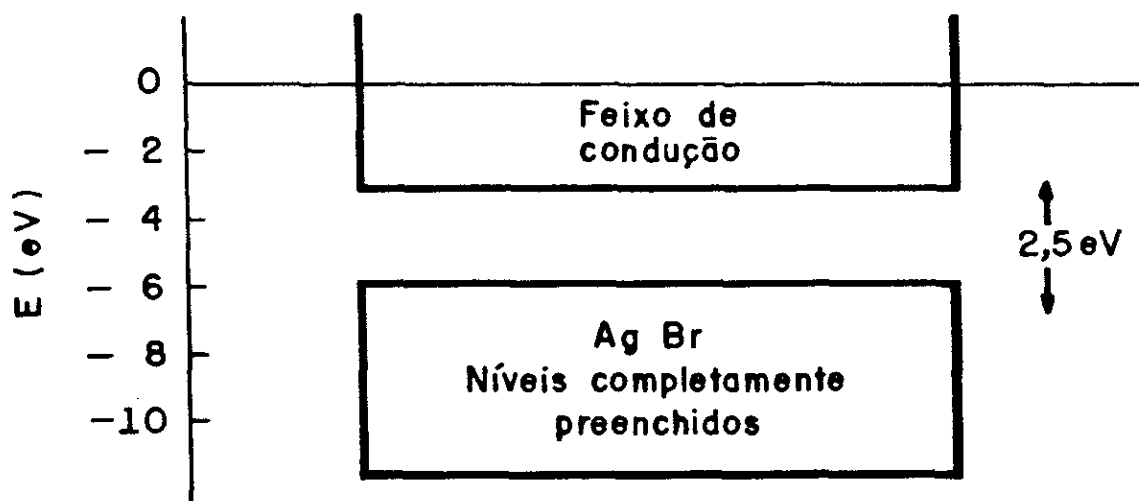


Fig. A.1: Faixas de Níveis Eletrônicos

Uma outra propriedade dos halogenetos de prata não muito comum em cristais e fundamental no mecanismo fotográfico, é a "condutividade iônica" segundo a qual os íons prata se movimentam através da rede cristalina. Este comportamento é explicado com base nos defeitos de estrutura cristalina (defeitos de Frenkel e Schottky apresentados pelos cristais em equilíbrio termodinâmico (Fig. A.2). Os "defeitos de Frenkel" consistem no deslocamento de um íons prata, cujo volume é suficientemente pequeno, da sua posição de equilíbrio na rede para uma posição intersticial entre dois planos deixando um "furo" (*) (o movimento é possível por causa da agitação térmica). Os "defeitos de Schottky" são considerados como provenientes da retirada de um par de íons do interior da estrutura para a superfície do cristal, deixando "furos" que se podem deslocar. Nesse tipo de

(*) "furo" = espaço vazio, lacuna, etc.

defeito, tanto o ânion como o cátion contribuem para a conduti-

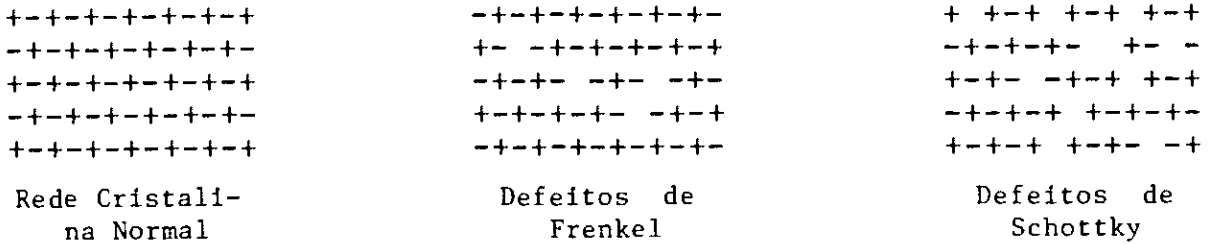


Fig. A.2: Defeitos de estrutura cristalina do AgBr

vidade iônica. Acredita-se que os defeitos de Frenkel sejam mais frequentes nos cristais de halogeneto de prata, podendo existir tais defeitos em maior número na superfície do que no interior do cristal, acarretando um excesso de carga negativa na superfície do grão de halogeneto de prata que pode repelir íons negativos. Este fato, levou James^[30] a elaborar sua "Teoria da Barreira de Carga", que é a base para a compreensão dos processos de discriminação de partículas.

A.2 MECANISMO DE REGISTRO DA TRAJETÓRIA DE PARTÍCULAS CARREGADAS EM EMULSÃO

Quando uma emulsão nuclear é exposta a uma radiação ou atravessada por partículas carregadas, os grãos de halogeneto de prata ficam sensibilizados (imagem latente) tornando-se capazes, preferencialmente, de serem reduzidos à prata metálica pela ação de um banho revelador. A formação de uma imagem revelável em um cristal de halogeneto de prata exige uma quantidade de energia tão diminuta que a modificação operada no cristal se restringe a um pequeno número de íons do cristal. Desde o século passado, sabe-se que a imagem latente não se encontra localizada unicamente na superfície dos grãos. Uma grande parte desta imagem se localiza internamente. A imagem latente ex-

terna pode ser destruída por oxidação, dissolução e lavagem da superfície do grão, deixando contudo intacta a imagem latente interna. Acredita-se que a prata metálica fotolítica constitui a substância principal da composição da imagem latente.

Quando na sua trajetória, uma partícula atravessa um certo número de grãos, o número de elétrons que a partícula produz na faixa de condução do cristal é proporcional à energia. Se o número de elétrons for suficiente para produzir uma imagem latente, o grão será reduzido à prata metálica, quando revelado. A fixação retirará os grãos de brometo de prata que não foram atravessados pelas partículas ionizantes e as trajetórias poderão ser observadas ao microscópio. Como o volume final é deficiente em brometo de prata, há uma contração da película que é levada em conta nas medidas (Fig. A.3).

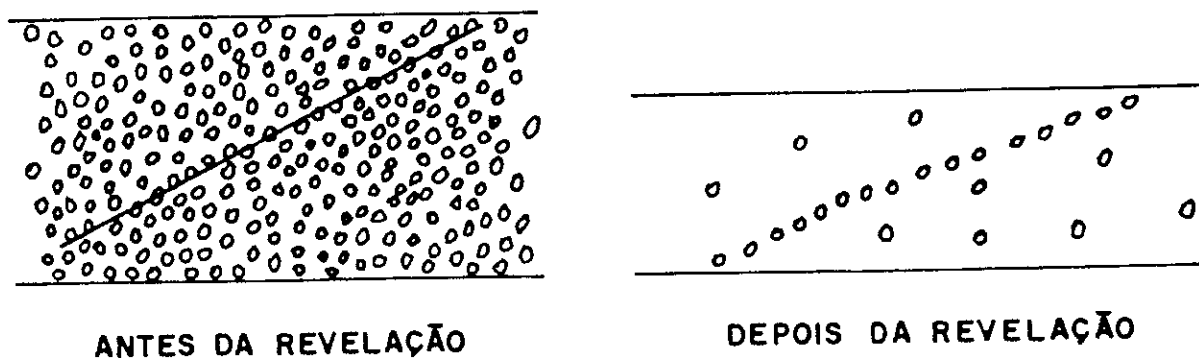


Fig. A.3: Aspecto da emulsão nuclear antes e após a revelação

A.2.1 Formação da Imagem Latente

Segundo a teoria de Gurney e Mott^[31] a absorção

pelo brometo de prata de energia procedente da radiação (luz, raios X, raios γ ou partículas carregadas) libera elétrons, situando-os na faixa de condução do cristal possibilitando a livre movimentação desses elétrons como nos condutores (fotocondutividade). Gurney e Mott admitem a existência de pontos da superfície do cristal ou do seu interior, que são capazes de capturar os elétrons (armadilhas de elétrons) e são chamados "centros ativos do cristal". Na direção de um elétron capturado, move-se um íon intersticial Ag^+ (condutividade iônica) e se combina com o elétron, dando origem a um átomo de prata. Pela repetição, há formação de uma partícula coloidal de prata metálica na superfície ou no interior do cristal e esta constitui o que se acredita ser a imagem latente ou uma de suas formas. Estima-se que o número de átomos de prata necessário para a formação de um centro revelável é de 4 a 300. Os "furos" positivos, produzidos pela ausência dos elétrons que passaram para a faixa de condução, movem-se para a superfície e, aí, liberam o bromo que escapa do cristal reagindo com o material envolvente do grão ou se difundindo neste.

Supondo que inicialmente um certo número de elétrons seja lançado na faixa de condução por efeito da radiação, uma parte deles pode escapar pela recombinação ou por outro processo qualquer. A outra parte é capturada pelas "armadilhas" e, através da combinação dos íons Ag^+ , forma-se a prata fotolítica a qual necessita de um processo de estabilização. Se a prata não for estabilizada, ela emitirá um elétron que retorna à faixa de condução, e se transformará em Ag^+ . A sensibilidade da emulsão é então definida como a razão entre o número de áto-

mos estáveis de prata fotolítica formado e o número de elétrons lançado inicialmente na faixa de condução pela radiação.

A.2.2 Desaparecimento da Imagem Latente

Existem diversos processos pelos quais a imagem latente pode desaparecer durante o tempo que vai da exposição à revelação. Um deles é a ejeção termoiônica de elétrons da prata, convertendo Ag em Ag^+ ; este mecanismo é conhecido por "fading" físico (physical fading). Um outro é a oxidação química da prata por agentes oxidantes presentes na emulsão. Observa-se que o desaparecimento da imagem latente (fading) aumenta com a quantidade de água contida na emulsão, com a temperatura, com o baixo pH da emulsão e com o armazenamento em meio oxidante. Para se prevenir contra o "fading", deve-se ter um pH de gelatina neutra ou alcalino e o armazenamento precisa ser feito à baixa temperatura, de preferência no vácuo e com as películas de emulsão bem secas.

Um outro mecanismo que ocorre é a oxidação da prata constituinte da imagem latente, por agentes oxidantes produzidos frente a própria exposição. Se algum bromo permanece desligado, ele tende a destruir a imagem latente acontecendo um particular desaparecimento desta imagem, conhecido por "solarização". Para baixas exposições, a pequena quantidade de bromo liberada na superfície do grão é prontamente combinada com os receptores de bromo, como por exemplo, o sulfeto de prata existente na superfície do grão, ou então pela combinação do bromo com a gelatina. Para altas exposições, no entanto, o número de receptores de bromo não é suficiente para se dar a combinação com todo bromo gerado. O bromo, por combinação direta, produz

uma superfície de realogenação dos resíduos de prata e destrói os centros de imagem latente. Este fenômeno parece ocorrer principalmente com a imagem latente superficial, uma vez que os "furos" positivos geram halogenetos na superfície dos grãos. Verificou-se que o pH tem uma grande influência sobre o processo de solarização, o qual é menor para pH altos do que baixos. A água contida na gelatina também desempenha um importante papel na solarização.

A.3. UMA SÍNTESE DO PROCESSO FOTOGRÁFICO

A revelação da imagem fotográfica normalmente envolve a redução dos grãos do brometo de prata, que contém os centros de imagem latente, à prata metálica. De acordo com o mecanismo predominante, este processo pode se dar de diferentes maneiras sendo caracterizado pela origem da prata reduzida. Assim é que, quando o banho revelador não contém substância que dissolva os grãos de brometo de prata, o processo predominante é chamado "revelação química" ou "direta"; neste caso a prata vem do grão originalmente exposto à radiação. Um outro, conhecido por "revelação física" é aquele em que o banho revelador contém, além do agente redutor da prata, um sal solúvel de prata, o nitrato, por exemplo. Neste caso, a prata metálica, pela revelação dos íons de prata da solução nos centros de revelação, catalizará a redução de mais íons de prata. O processo é então autocatalizador, produzindo prata metálica em partículas compostas quimicamente de forma esférica. Um terceiro processo (revelação "solution-physical") é similar à revelação física diferindo no fato de que toda a prata, provém dos grãos de brometo de prata inicialmente dissolvidos pela a-

ção de solventes químicos como por exemplo, o sulfito de sódio, especialmente adicionados ao banho revelador para esta finalidade. A ação do solvente é fazer com que os centros de revelação mais internos fiquem expostos ao agente revelador. Neste processo, tanto os centros de imagem latente externos como os internos são ativos.

A.3.1 A Revelação e os Parâmetros que a Influenciam

A revelação de uma emulsão nuclear, exposta a uma determinada dose de radiação, depende principalmente dos seguintes fatores:

- concentração do agente revelador;
- aditivos do banho revelador (os quais determinam o tipo ou o processo de revelação);
- quantidade de solvente;
- concentração de brometo;
- pH;
- temperatura.

O conhecimento da influência de cada um desses fatores é útil na determinação de condições favoráveis aos diferentes tipos de revelação.

A concentração do agente revelador é importante tanto na sua difusão na emulsão, como na velocidade da revelação através de absorção. O fluxo de revelador normal à superfície da emulsão na direção da difusão é proporcional ao gradiente da concentração do agente revelador. O acúmulo do agente revelador num dado elemento de volume na emulsão nuclear é proporcional ao laplaciano da concentração^[]. Por outro lado, a taxa de revelação mediante absorção e a concentração do agente re

velador acham-se relacionados por uma equação do tipo

$$\text{taxa de revelação} \propto [\text{concentração}]^{\beta} ; 0,5 < \beta < 1.$$

A temperatura influencia a concentração efetiva do agente revelador, $[\text{concentração}]^{\beta}$, mudando o grau de absorção e a concentração do agente revelador ativo no volume da solução se o agente ativo for um íon, uma vez que o grau de dissociação depende da temperatura. Levando em conta a influência da concentração efetiva, a taxa de revelação pode ser representada pela equação

$$\text{taxa de revelação} = K.F(C) \cdot e^{-E/RT}$$

onde K é uma função do número de grãos com centros de imagem latente ainda não revelados e F(C) representa uma função da concentração do agente revelador e da composição do banho revelador; E é a energia de ativação (*) e R a constante dos gases. A Fig, A.4 ilustra o efeito da temperatura na revelação.

O pH do banho revelador tem influência sobre a revelação afetando a taxa de difusão dos reagentes e os produtos da reação. O pH em uma camada de emulsão nuclear difere do pH do banho revelador devido à ação dos grupos iônicos da gelatina, uma vez que este pH é mais baixo do que na solução, a taxa de revelação é menor dentro da emulsão. Com baixo pH, a taxa de revelação é baixa e as espécies inativas não dissociadas pre

(*) Energia de ativação é a energia mínima necessária que se deve fornecer ao sistema para que ele evolua por si mesmo. A energia de ativação da revelação pode ter, em alguns casos, valores muito pequenos tais como 2Kcal/mol, para os reveladores mais rápidos. Esses reveladores fortes produzem um gradiente de revelação.

sentos no banho atuarão como uma fonte provedora de íons já usados pela reação com o halogeneto de prata. O pH do banho revelador pode ser ajustado a um valor conveniente pela adição de substâncias tampões. No caso de emulsões nucleares, quando o amidol é usado em baixa alcalinidade ou mesmo em solução ácida, é comum acrescentar-se ácido bórico e sulfito de sódio. A maior

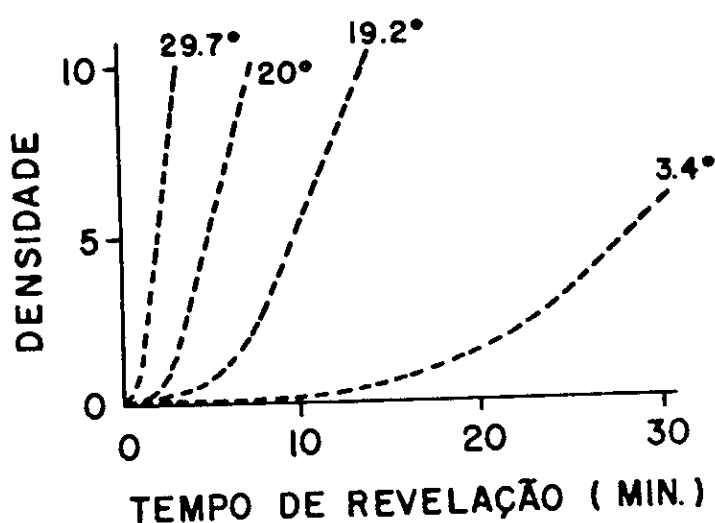


Fig. A.4: Efeito da temperatura na revelação

ria dos banhos reveladores são oxidados pela ação do oxigênio do ar, se não forem devidamente protegidos (com a presença de sulfito, por exemplo). As taxas de oxidação e de revelação dependem do pH e geralmente aumentam com o aumento deste. Em banhos reveladores não protegidos contra a oxidação o pH aumenta, acelerando o processo de oxidação.

O sulfito de sódio é usado como uma substância protetora do agente revelador. Ele é empregado nos reveladores em concentrações que vão desde 3g a 100g por litro. Sendo um solvente dos grãos de brometo de prata, e uma vez que esta pro-

priedade é uma função de sua concentração, segue-se que o tipo de revelação obtida depende da concentração do sulfito de sódio. Numa revelação química ele deve estar presente em concentrações bem baixas. Aumentando a sua concentração, gradualmente passa-se a revelação "solution physical". O efeito dos produtos de oxidação dos agentes reveladores é alterar a taxa de revelação à medida que se acumulam na solução, no caso do amidol, por exemplo, o efeito é diminuir a taxa de revelação. O sulfito de sódio tem a propriedade de combinar-se com os produtos da oxidação e formar compostos estáveis incolores, mantendo constante a taxa de revelação. O sulfito de sódio tem também influência sobre o tempo de indução (*), o qual diminui com o aumento da concentração do sulfito de sódio (Fig. A.5).

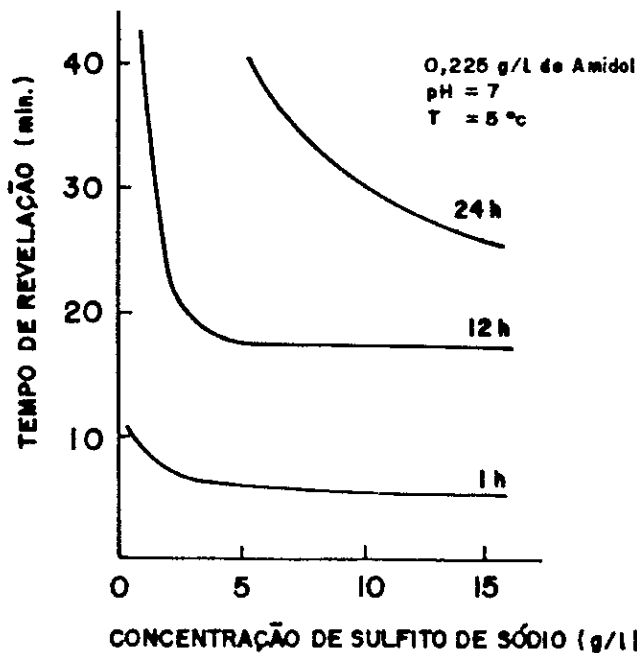


Fig. A.5: Efeito protetor do sulfito de sódio. Os números junto às curvas indicam diferentes tempos de armazenamento do banho revelador.

(*) Tempo de indução é o intervalo de tempo que vai desde a imersão da emulsão no banho revelador, até o início do processo de revelação.

O efeito do brometo de potássio, em uma concentração bem baixa, é reprimir a solubilidade do brometo de prata. Para concentrações maiores do que 0.002 M a solubilidade do brometo de prata começa a aumentar com a concentração do brometo de potássio, este começando a atuar como um agente complexador para a prata. Se os íons brometo estão em excesso, podem destruir os centros de imagens latente pela exposição destes a agentes oxidantes. A adição de brometo de potássio diminui a taxa de revelação e, em particular, a taxa de formação de "fog" (*), desde que sua concentração seja mantida abaixo do limite do efeito solvente.

A.3.2 O "Stop" (**), A Fixação e a Lavagem das Películas

Uma considerável quantidade de "fog" pode ser produzida pela revelação física nos primeiros estágios de fixação quando uma quantidade residual de revelador permanece dentro da emulsão nuclear. Isto acontece porque muitas partículas submicroscópicas de prata são formadas sobre a superfície do grão durante a revelação e atuam como micro-eletrodos para a revelação "solution physical". Para que a formação de "fog" seja evitada é conveniente retirar o agente revelador por lavagem e reduzir a revelação por intermédio de um banho de baixo pH e baixa temperatura. Com esta finalidade é aconselhável lavar a emulsão nuclear com água a 5°C e usar um banho de "stop" com 5g de sulfito de sódio por litro e ácido acético em quantidade adequada para atingir pH 3,5.

(*) Fog - "véu" de fundo.

(**) Stop - processo de interrupção da revelação.

Terminada a fase de interrupção da revelação, o banho fixador dissolverá os cristais de brometo de prata que não foram expostos à radiação; porém, deverá deixar intacta a prata dos grãos revelados. Um bom fixador não deve afetar a gelatina nem corroer a prata, ao mesmo tempo que ele deve transformar o brometo de prata insolúvel num composto solúvel o qual poderá ser facilmente retirado da emulsão nuclear. Existem muitos compostos com propriedades de fixação. Entretanto, por razões econômicas, estabilidade química e por não causar danos pessoais, o tiossulfato de sódio é o mais usado. A taxa de fixação depende da difusão do tiossulfato de sódio para o interior da emulsão e da formação dos complexos para o exterior. Consequentemente, a fixação depende fortemente da espessura e natureza da emulsão, bem como da concentração, pH, temperatura e mais adicionais usados no banho. Normalmente usa-se uma solução de 350 a 450 g/l de tiossulfato de sódio adicionando 5 g/l de sulfeto de sódio. A fixação deve ser iniciada à temperatura mais baixa possível e após duas horas, aumenta-se a 50°C, o que reduz a formação de "fog".

Quando o estágio de fixação está terminado é necessário lavar a emulsão com a finalidade de eliminar o sal fixador, o qual pode corroer os traços e produzir manchas. Se o tempo de imersão da emulsão no banho fixador for longo, a corrosão pode alterar a imagem revelada e até fazer com que ela desapareça. Fazendo-se circular água a uma velocidade conveniente (a baixa temperatura) consegue-se uma contínua remoção da camada do sal sobre a superfície da emulsão. O tempo de lavagem deve ser maior do que o de fixação, da ordem do dobro.

A.4 PROCESSOS DE REVELAÇÕES UTILIZADOS

A.4.1 Considerações Gerais

Quando o poder de revelação de um banho é tão baixo que apenas revela os grãos sensibilizados por uma dada partícula carregada, é razoável assumir que a revelação seja do tipo de uma reação química de primeira ordem. Isto significa que a taxa de revelação, dD/dt , é proporcional ao número de grãos sensibilizados ainda não revelados, isto é, $dD/dt = K(D_{\infty} - D)$, onde K é a taxa específica do processo; D_{∞} representa o número total de grãos que podem ser revelados e D é o número de grãos já revelados no tempo considerado. A forma integral desta equação é

$$D = D_{\infty} [1 - e^{-k(t - t_0)}]$$

onde t_0 é o tempo de indução. Em se tratando de dois tipos de partículas com diferentes poderes de ionização (por exemplo, fragmentos de fissão e partículas alfa), é possível ajustar o tempo dos dois processos de tal modo que o tempo de indução da revelação dos traços das partículas com menor ionização seja tão grande que permita a revelação completa dos traços das partículas com maior ionização.

A discriminação de traços de diferentes partículas em emulsão nuclear e a eliminação da formação de "fog" são obtidas da melhor maneira a baixas temperaturas, por um ajuste perfeito do tempo próprio para a ótima revelação. Como foi salientado anteriormente, o efeito da baixa temperatura é mais pronunciado na taxa de revelação dos grãos com menor número de cen

tros de imagem latente. No caso da revelação de traços no seu mínimo de ionização é possível, diminuindo convenientemente a temperatura, enfraquecer o processo de tal modo a se obter inibição da revelação.

O brometo de potássio afeta o tempo de indução sendo uma função da concentração, da natureza do banho revelador, da emulsão nuclear e da dose de exposição. Combinando o efeito do brometo e a baixa taxa de revelação é possível ajustar a revelação dos traços de fragmentos de fissão de tal modo a não se ter nenhum traço de partícula alfa.

Na prática, é muito difícil obter um revelador estritamente químico, por várias razões. Em primeiro lugar, o agente revelador pode ter alguma ação solvente. Se o tempo de revelação é muito grande, ele atua em parte, como um revelador interno. Em segundo lugar, para proteger o banho contra a oxidação do ar, geralmente se usa o sulfito de sódio o qual tem, como se sabe, ação solvente. Este efeito pode ser bastante reduzido diminuindo a concentração do sulfito de sódio, havendo, portanto, um compromisso entre a estabilidade e o grau de revelação "solution physical" permitida. Em geral, quando se usa amidol a baixa concentração, a quantidade de sulfito de sódio é mantida igual ou menor que 1g/l.

Um bom revelador deverá ter as seguintes características:

- baixo poder de formação de "fog";
- difundir-se bem;
- diminuir a distorção na gelatina;
- Suficiente poder de revelação para dar a desejada densidade de grãos do traço e estabilidade contra a oxidação

pelo ar durante o tempo de revelação.

A energia de ativação para a taxa de difusão é, em geral, pequena, variando de 4 a 7 kcal/mol. Se desejarmos nos aproveitar do efeito da temperatura sobre as taxas de difusão, revelação e formação de "fog", é conveniente usar reveladores com uma energia de ativação da ordem de 18 kcal/mol e escolher um tipo de revelação com energia de ativação equidistante desses dois valores (16 kcal/mol). Em geral, as energias de ativação da revelação química e "solution physical" preenchem esses requisitos.

O amidol é o revelador mais comumente usado em técnica de emulsão nuclear. Exceto pelo fato de que ele se oxida rapidamente pela ação do oxigênio do ar, é um dos poucos reveladores orgânicos que revela somente com a adição de sulfito e a pH relativamente baixo. O amidol, juntamente com o ácido bórico e os demais aditivos necessários, é comumente usado em banhos reveladores com pH próximo a 7. Ele revela a baixo pH, porém, a oxidação do banho vai aumentando com a diluição. Em consequência, o poder de revelação do banho diminui. O íon ativo do amidol tem uma carga negativa, seu tamanho e forma permitem boa difusão a baixo pH quando a gelatina ainda tem uma carga negativa predominante. O efeito do amidol sobre o tempo de indução é relativamente baixo uma vez que o íon ativo é negativamente monocarregado.

A.4.2 Técnica Experimental

A revelação que discriminará os traços de fragmentos de fissão dos traços de partículas alfa é conseguida pelo ajuste da revelação desses dois tipos de traços, de tal modo que o tempo de indução para o fundo de partículas alfa seja tão

longo que haja tempo suficiente para a revelação dos traços de fragmentos de fissão, antes do das partículas alfa se tornarem observáveis. A condição ideal de discriminação é revelar somente os traços de fissão e evitar qualquer traço de partículas alfa. Isso é importante, por exemplo, para a economia de tempo e eficiência no trabalho de microscopia. Obtém-se longo tempo de indução para as partículas alfa, da seguinte maneira:

- a) usando uma emulsão nuclear de baixa sensibilidade e de grão fino (emulsão tipo KO da Ilford);
- b) usando baixa concentração do agente revelador (50 a 500 mg/l de amidol, dependendo do caso);
- c) mantendo a revelação predominantemente química (usando a mínima quantidade de sulfito de sódio necessário a dar ao banho alguma proteção contra a oxidação: 3 g/l ou menos);
- d) moderando as taxas de formação de "fog" e a revelação dos pequenos centros de imagem latente (adicionando 1,2 g/l de brometo de potássio);
- e) mantendo o banho revelador a baixa temperatura (uma vez que a baixa temperatura aumenta o tempo de indução, a revelação deve ser feita na temperatura mínima possível permitida pela precipitação e solidificação do banho).

A.4.3 Discriminação entre Traços de Fragmentos de Fissão e Traços de Partículas Alfa

Para o presente trabalho foi escolhida uma emulsão KO-Ilford (grãos finos).

Depois da exposição, a emulsão foi colocada num banho revelador com a seguinte composição:

ácido bórico 2g
sulfito de sódio 3g

brometo de potássio 1,2g
amídol 200 mg
água destilada 1ℓ

O tempo de revelação foi de 4 horas, mantendo-se a temperatura a 3°C, seguindo 1 hora a 10°C. A oxidação do amídol pode ser evitada fazendo-se o banho revelador imediatamente antes de ser usado. Em seguida, procederam-se as fases de interrupção da revelação, fixação e lavagem da película, conforme já descritos no parágrafo A.3.2.

O aspecto dos traços revelados por este método é tal que somente os grãos ao longo da trajetória das partículas são revelados, e por isso, os traços não mostram qualquer variação de espessura devido a ionização secundária. O uso correto dos fatores que aumentam o tempo de indução possibilita escolher um tempo de revelação no qual se obtém traços de fragmentos de fissão perfeitamente visíveis na ausência completa de traços de partículas alfa (Fig. A.6).

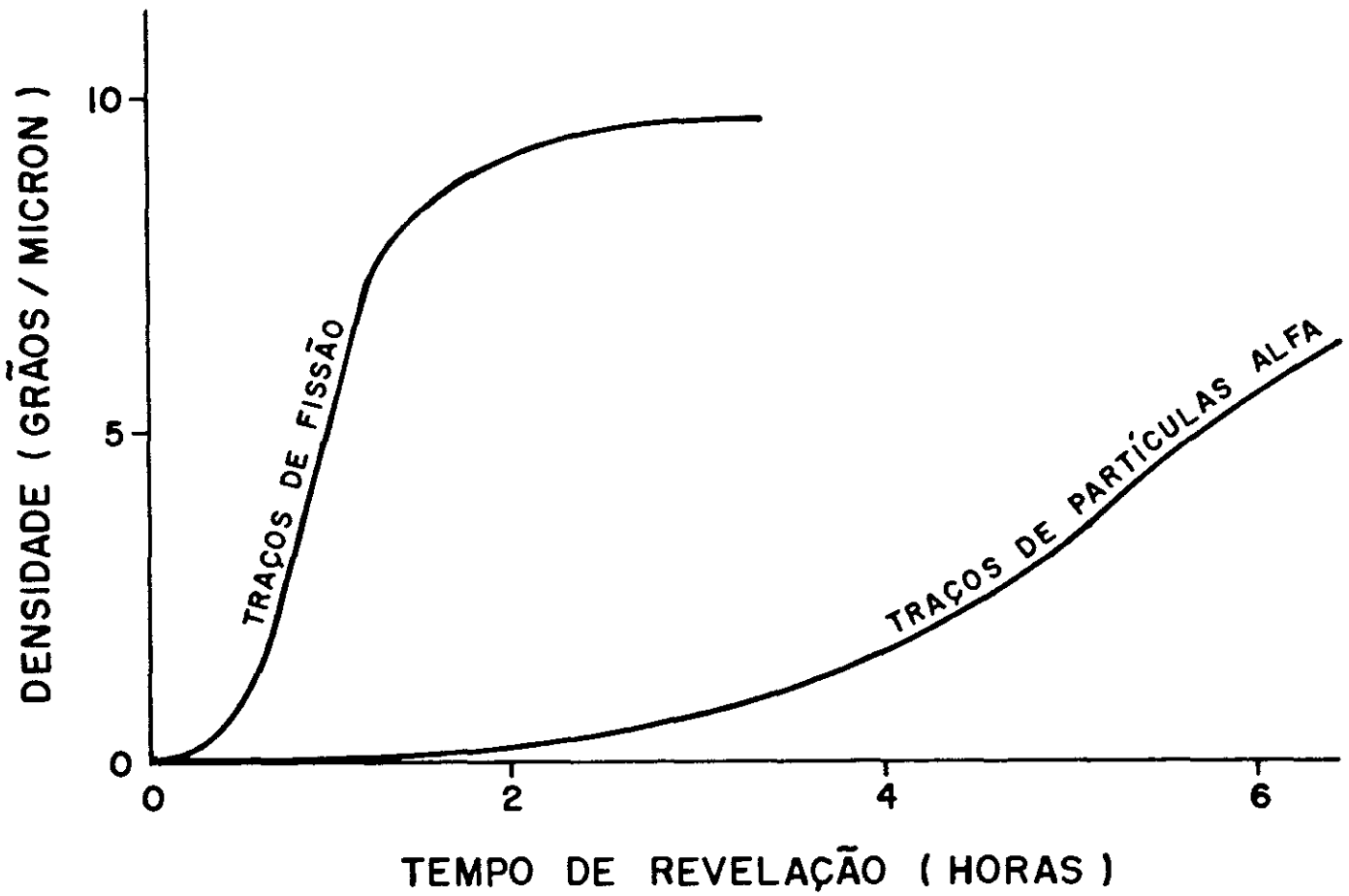


Fig. A.6: Ilustração do efeito do tempo de indução na revelação diferenciada de traços de partículas alfa e de fragmentos de fissão

A.4.4 Revelação de Emulsão Nuclear para Contagem de Traços de Partículas Alfa de longo alcance do ^{252}Cf

A Emulsão Nuclear do tipo KO já exposta ao ^{252}Cf foi colocada em dois banhos reveladores com a seguinte composição:

ácido bórico	2g
sulfito de sódio	3g
brometo de potássio	1,2g
amidol	1,0g
água destilada	1ℓ

O primeiro banho revelador tem duas etapas distintas. Inicialmente a emulsão nuclear é colocada no banho revelador durante 2 horas mantendo-se a temperatura a 4°C , seguindo de 4 horas a 10°C . Em seguida, no segundo banho revelador, a emulsão nuclear é colocada neste, a 4°C durante 6 horas. Por fim, procedeu-se às fases de interrupção da revelação, fixação e lavagem da película, conforme descrição no parágrafo A.3.2.

A.5 MICROSCOPIA

A.5.1 Observação dos Traços

A microscopia foi realizada com microscópio ORTHOLUX utilizando-se ocular 10x e objetiva 53x para a contagem dos eventos, ocular 10x e objetiva 100x bem como ocular 12,5x e objetiva 100x para a medida de alcance dos traços.

Para que fosse possível fazer um mapeamento da posição dos traços de partículas e para evitar que um mesmo traço fosse contado duas vezes, colou-se na superfície da película uma rede de referência. Este recurso permitiu também um contro

le de eficiência de observação dos traços por duas microscopistas que observaram as mesmas chapas.

A observação do traço de uma partícula alfa na emulsão nuclear, nos permite fazer uma série de medidas, que levarão à determinação do comprimento real \overline{AB} da trajetória da partícula alfa na emulsão (fig. A.7).

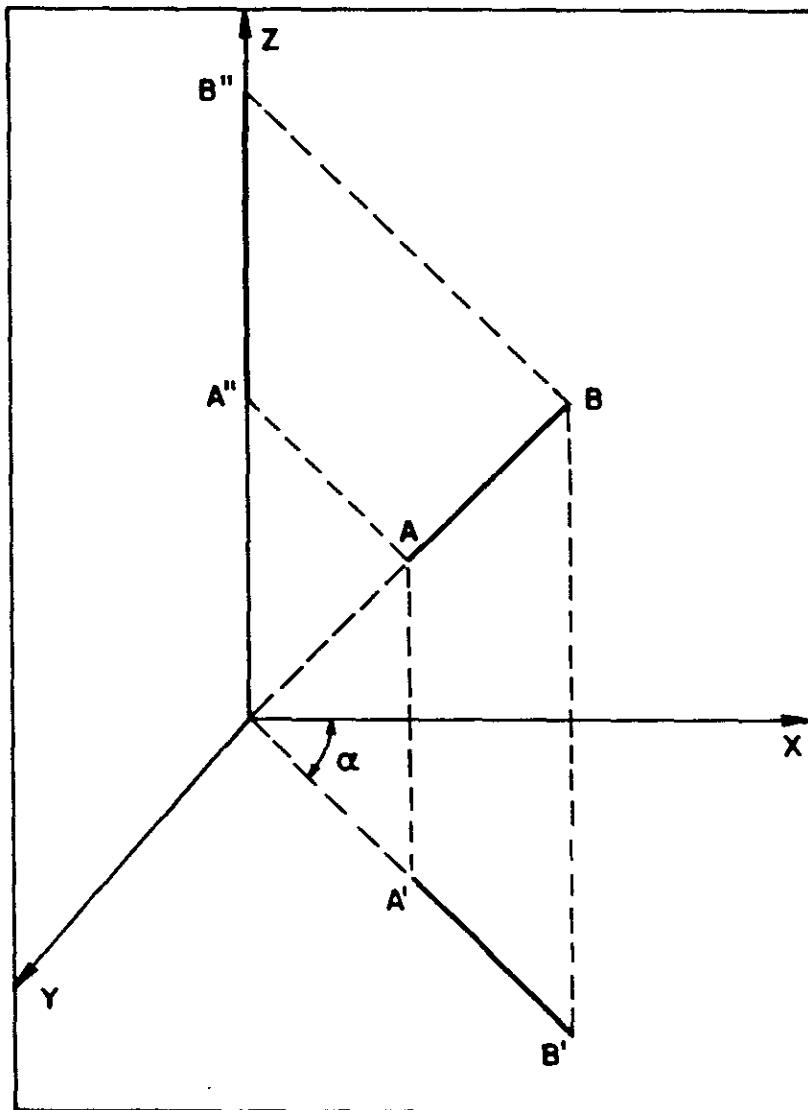


Fig. A.7: Orientação espacial da trajetória de uma partícula alfa na emulsão nuclear

- $\overline{A'B'}$ - Distância entre as extremidades da projeção de traços no plano da emulsão.
- $\overline{A''B''}$ - Distância vertical entre as extremidades do traço.
- ALFA - Ângulo entre a projeção do traço no plano da emulsão e uma direção arbitrária escolhida para o eixo-x.

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

- $\overline{A'B'}$ - Por intermédio de uma ocular com escala previamente calibrada.
- $\overline{A''B''}$ - Por um micrômetro acoplado ao movimento vertical do canhão do microscópio.
- ALFA - Por um goniômetro adaptado à ocular do microscópio.

Na figura A.7 vemos que o comprimento \overline{AB} da trajetória da partícula alfa na emulsão é dado por:

$$\overline{AB} = \sqrt{\overline{A'B'}^2 + \overline{A''B''}^2}$$

Contudo este comprimento não é o verdadeiro.

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

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

$$FC = l_i / l_f$$

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

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

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

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

e o alcance verdadeiro da partícula na emulsão nuclear é calculado por

$$\text{ALCANCE} = \sqrt{\overline{A'B'} [(\text{sen ALFA} \cdot CALV)^2 + (\text{cos ALFA} \cdot CALH)^2] + (\overline{A''B''} \cdot FC)^2}$$

A.5.2 Eficiência de Contagem

A partir do mapeamento dos traços de partículas alfa e traços de fragmentos de fissão encontrados por duas mi-

croscopistas, que observaram num mesmo volume de uma dada película, obedientes às mesmas instruções, é possível determinar a eficiência de cada observador e o número provável de traços existentes no volume observado. Isto é feito pelo método estatístico da dupla coincidência^[32].

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

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

que são as eficiências individuais.

A eficiência de uma observação dupla é dada por:

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

e o número total de eventos é dado por:

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

onde N_{AB} é o número de traços em coincidência encontrados pelos dois observadores.

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

Como a eficiência diminui com o decréscimo da densidade de eventos, o tempo de exposição das emulsões nuclea-

res deve ser programável de modo que se obtenha um máximo de eficiência, dentro dos limites inerentes à técnica experimental.

REFERÊNCIAS BIBLIOGRÁFICAS

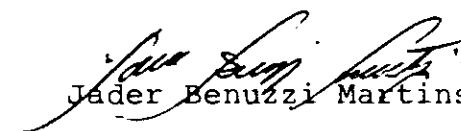
- [1] E.L. Medeiros, "Constante de desintegração do Urânio-238 por fissão espontânea redeterminada pelo método de traços em vidro", Tese de Mestrado, CBPF (1978).
- [2] M.L. Muga, H.R. Bowman e S.G. Thompson, Phys. Rev., 121, 270 (1961).
- [3] J.C. Watson, Phys. Rev., 121, 230 (1961).
- [4] R.A. Nobles, Phys. Rev., 126, 1508 (1962).
- [5] A. Fraenkel, Phys. Rev., 156, 1283 (1967).
- [6] M.J. Fluss, S.B. Kaufman, E.P. Steinberg e B.D. Wilkins, Physl Rev. C7, 353 (1973).
- [7] W. Loveland, Phys. Rev., C9, nº1, 395 (1973).
- [8] V.T. Grachëv, Yu. I. Gusev e D.M. Seliverstov, Sov. J. Nuc. Phys., 47, 3 (1988).
- [9] D.J. Henderson, H. Diamond e T.H. Braid, Bull. Am. Phys. Soc. II, 6, nº5 (1961).
- [10] E.W. Titterton e T.A. Brinkley, Nature, 187, 229 (1960).
- [11] Earl K. Hyde, "The Nuclear Properties of the Heavy Elements", vol.III, Fission Phenomena, Prentice-Hall, INC (1964).
- [12] P. Fong, "Statistical Theory of Nuclear Fission", Gordon and Breach, Science Publishers (1966).
- [13] O.A.P. Tavares, "Secções de Choque de Fotofissão do Urânio Tório e Bismuto em Altas Energias", Tese de Mestrado, 1973.
- [14] O. Hahn e F. Strassmann, "Uber Den Machneis Und Das Verhalten Der Bei Der Bestrhaltung Des Urans Mittels Neutronm Erdalkalimetalle", Naturwiss, 27, 11, 89 (1939).
- [15] O. Hahn, "New Atoms New York: Elsevier" (1950).
- [16] O.R. Frisch, "Physical Evidence for the Division of Heavy Nuclei Under Neutron Bombardment", Nature, 143, 276 (1939).


- [17] Anderson, Booth, Dunning, Fermi, Glasor e Slack, "The Fission of Uranium", Phys. Rev., 55, 511 (1939).
- [18] L. Meitner e O.R. Frish, "Desintegration of Uranium by Neutrons: a New Type of Nuclear Reactions", Nature, 143, 239 (1939).
- [19] Nier, Booth, Dunning e Grosse, "Nuclear Fission of Separated Uranium Isotopes", Phys. Rev., 57, 546-748 (1940).
- [20] W.E. Burcham, "Física Nuclear", Editora Reverté S.A. (1974).
- [21] N. Bohr e J.A. Wheeler, Phys. Rev., 56, 426 (1939).
- [22] R.D. Present, Phys. Rev., 59, 466 (1941).
- [23] H.G. de Carvalho e H. Schechter, Il Novo Cimento, vol. 16A, nº1 (1973).
- [24] L. Rowen e A.M. Hudson, Phys. Rev., 78, 533 (1950).
- [25] Z.W. Ho, S.T. Tsien, L. Vigneron e R. Chastel, Compt. Rend., 223, 1119 (1946).
- [26] L.W. Alvarez, as reported by Farwell, Setré e Wiegand, Phys. Rev., 71, 327 (1947).
- [27] Z. Fraenkel e S.G. Thompson, Phys. Rev. Letters, 13, 438 (1964).
- [28] J.B. Marion e F.C. Young, "Nuclear Reaction Analysis, Graphs and Tables", John Wiley & Sons, INC-New York (1968).
- [29] Pierre Demers, "Ionographie - Les Emulsions Nucleaires Principes et Applications", Les Presses Universitaires de Montréal (1955).
- [30] T.H. James, J. Franklin Inst., 240, 15 (1945).
- [31] R.W. Gurney e N.F. Mott, Proc. Soc., 164, 151 (1938).
- [32] S.N. Sokolov e K.D. Tolstov, "Control of Scanning Efficiency and Estimation of the True Number of Events", Korpuskularphotographie IV, Institute für Wissenschaftliche Photographie Technischen Hochschule München (1963).
- [33] G.A. Pik-Pichak, Yad. Fiz. 40, 336-346 (1984).

"EMIÇÃO DE PARTÍCULAS ALFA DE LONGO ALCANCE NA
FISSÃO ESPONTÂNEA DO ^{252}Cf "

MARCOS DE CASTRO FALLEIROS

Tese de Mestrado apresentada no Centro Brasileiro de Pesquisas Físicas do Conselho Nacional de Desenvolvimento Científico e Tecnológico, fazendo parte da banca examinadora os seguintes professores:


Jader Benuzzi Martins (Presidente)


João Dias de Toledo Arruda Neto


Luiz Carlos Santos de Oliveira

Rio de Janeiro, 19 de dezembro de 1989