

Odilon Antônio Paula Tavares

ALTA ASSIMETRIA DE MASSA NA DESINTEGRAÇÃO
ESPONTÂNEA E INDUZIDA DE NÚCLEOS PESADOS

Tese de

DOUTORADO

CENTRO BRASILEIRO DE PESQUISAS FÍSICAS

Rio de Janeiro

-1978-

AGRADECIMENTO

Certa vez, por ocasião de minha dissertação de Mestrado, coloquei-me diante do papel para redigir os agradecimentos. Devo confessar que, dentre todas as tarefas, achei esta a mais difícil. Primeiro, por considerar um dever de justiça agradecer a quem nos beneficiou e, depois, por me terem faltado as palavras que teriam dado a medida de como fui grato àquelas pessoas que, com o seu saber e inteligência, tanto enriqueceram o meu trabalho.

Agora, decorridos cinco anos, acho-me diante da mesma situação. Quisera ser capaz de exprimir por palavras o que realmente sinto por aqueles que deram o máximo de sua capacidade, tenho certeza, para a concretização de meu trabalho. Contudo, com o coração alegre por ter contado com o auxílio de muitos em mais uma experiência inclusive, digamos, de camaradagem, deixo aqui registrado o meu profundo reconhecimento

- ao Prof. Jader B. Martins, amigo certo nas horas certas e incertas, sempre presente nas grandes decisões, e a quem muito devo por uma lista infundável de atuações, sem as quais não me seria possível realizar este trabalho;

- à Profa. M. Gall, de quem muito aprendi durante os primeiros passos da longa caminhada do saber científico, e pela sua inesquecível contribuição nas fases preliminares de familiarização com as técnicas de laboratório;

- à Profa. Iraci O. de Souza, que participou ativamente em grande parte deste trabalho dando-lhe sua significativa contribuição;

- ao Prof. João de Deus Pinheiro Filho, que tantas vezes me acompanhou em diversas atividades de laboratório e me assistiu em momentos difíceis do trabalho;

- ao Prof. Emil de Lima Medeiros, este incansável jo-

vem e amante da Ciência, com quem dividi grande parte do trabalho experimental e manteve intensas discussões;

- aos colegas mais chegados do Departamento de Física Nuclear e Partículas do CBPF, Profs. Mioco Foshina, Ana Maria S. de Aquino, Elizabeth S. de Almeida e João Lúcio Vieira, por proporcionarem um ambiente de pesquisa e de camaradagem indispensáveis ao desenvolvimento do trabalho científico;

- aos Profs. e amigos Paulo G. da Cunha e Tom M.J. Knöfel, e à Profa. Maria Júlia M.T. de Campos, do IRD, pela boa vontade e competência com que deram sua contribuição valiosa em etapas decisivas do trabalho;

- ao Prof. F. Salvetti, pelo seu inigualável desempenho na preparação dos filmes de urânio, e pelo carinho com que sempre nos tem recebido na Universidade de Roma;

- ao Prof. V. di Napoli, por sua amizade e pelo espírito de crítica e atenção em inúmeras discussões mantidas durante várias fases do trabalho;

- aos Profs. M.L. Terranova e L.G. Conti, pela ajuda inestimável na apresentação de resultados em publicações preliminares;

- ao Dr. Achilles Suarez, pela presteza com que sempre tem nos servido com as disponibilidades de irradiação no IEA;

- aos Drs. R. Brandt, A. Săndulescu, W. Greiner e R.H. Iyer, pela gentileza com que nos comunicaram, antes da publicação, uma série de resultados importantes concernentes ao nosso trabalho;

- ao Dr. W. Wölfl, pela ótima qualidade das irradiações conseguidas no reator "Saphir";

- às microscopistas Hilda V. da Silva, Lésia Hryhorczuk e Luíza dos Reis Rosa, pela paciente dedicação nos seus excelentes trabalhos de microscopia;

- à calculista Celeste Aída B. Lopes, pela valiosa colaboração prestada nas diversas fases do cálculo;

- à equipe da Biblioteca do CBPF, por sua atenção em localizar publicações indispensáveis ao andamento de meu trabalho;

- aos membros da Gerência de Processamento de Dados do CBPF, pelo seu empenho em facilitar-me a execução dos programas;

- ao Sr. Hiran Cordeiro, pela primorosa execução da parte gráfica;

- à Helena de Souza Ciccarino, pelo seu magnífico desempenho na preparação dos datiloscritos;

- ao antigo CBPF - representado pelo Prof. Alfredo M. de Oliveira e pelo Dr. José M. de Faria - que me acolheu durante vários anos, proporcionando-me oportunidades de estudo e pesquisa científica;

- ao CNPq, através da atual direção e administração do CBPF, pelas condições favoráveis oferecidas ao andamento dos trabalhos de pesquisa;

- o mesmo faço à CNEN, pelo apoio a mim concedido mediante Bolsas durante os primeiros anos de minha formação científica;

- enfim, a todos que, direta ou indiretamente, deram sua contribuição para a realização deste trabalho.

RESUMO

São apresentados e discutidos resultados experimentais e teóricos que dizem respeito a uma nova forma de ruptura de núcleos pesados ($A > 230$) em fragmentos de massa bem diferente que a dos produtos da fissão ordinária.

Experiências de longo tempo de exposição realizadas em nosso laboratório com a técnica de emulsão nuclear, fornecem evidências físicas de que o U^{238} é também um emissor espontâneo de íons de números de massa compreendidos entre 20 e 70. Outras observações experimentais referidas na literatura, tais como uma anomalia na abundância isotópica de neônio e argônio encontrados em minerais radioativos e gases naturais, e traços de pequeno diâmetro observados recentemente em vidros de urânio preparados no século passado, são muito provavelmente também indicativas deste novo modo de desintegração nuclear. Estes resultados são interpretados como uma alta assimetria de massa na fissão ou como um mecanismo de emissão de grandes aglomerados ("clusters") de nucleons por penetração de barreira de potencial. Estimativas preliminares mostram, para o U^{238} , um bom acordo com os resultados experimentais.

Lâminas de vidro com filmes finos de urânio ($\sim 0,3\mu\text{m}$) preparados há 16 anos são também analisadas com o objetivo de confirmar estes resultados. Porém, um estudo minucioso mostra que o vidro utilizado nas condições experimentais do presente trabalho não é um detetor adequado para a investigação de um fenômeno desta natureza, permitindo apenas redeterminar a meia-vida do U^{238} por fissão espontânea. O valor obtido é $(7 \pm 1) \times 10^{15}$ anos, o qual está em bom acordo com outros resultados da literatura.

Uma série de experiências por nós realizadas com emulsões nucleares e sanduíches de mica, bem como dados recentes obtidos por radioquímicos, mostram ser também possível a emissão de íons pesados pelo U^{238} induzida tanto por fótons de baixa energia como por neutrons de reator.

SUMÁRIO

	<u>Pág.</u>
AGRADECIMENTOS	iv
RESUMO	vii
· LISTA DE FIGURAS	x
LISTA DE TABELAS	xii
INTRODUÇÃO	1
<u>CAPÍTULO I</u> - ALTA ASSIMETRIA DE MASSA NA DESINTEGRAÇÃO ESPONTÂNEA DO U ²³⁸	8
1.1 - Introdução	8
1.2 - Análise de Traços em Emulsão Nuclear	10
1.3 - Emissão Espontânea de Íons Pesados pelo U ²³⁸	17
1.3.1 - Energética do Processo	18
1.3.2 - Perda de Energia por Ionização e Alcance em Emulsão Nuclear	19
1.3.2.1 - Ionização	21
1.3.2.2 - Alcances	29
<u>CAPÍTULO II</u> - OUTRAS EVIDÊNCIAS EXPERIMENTAIS DA EMISSÃO DE ÍONS PESA DOS PELO URÂNIO	34
2.1 - Excesso de Isótopos de Neônio e Argônio em Minerais Radioativos e Gases Naturais	34
2.2 - Emissão de Íons Pesados pelo U ²³⁸ Induzida por Fótons de Baixa Energia	39
2.3 - Alta Assimetria de Massa na Fissão do U ²³⁸ por Neu - trons Rápidos	45
<u>CAPÍTULO III</u> - RESULTADOS OBTIDOS UTILIZANDO VIDRO COMO DETETOR DE PAR TÍCULAS CARREGADAS	50
3.1 - Vidros Artificiais de Urânio	50
3.2 - Análise de Traços de Fragmentos Nucleares em Vidro ...	53

3.2.1 - Preparação dos Filmes de Urânio	54
3.2.2 - Determinação da Densidade Superficial de Urânio no Vidro	56
3.2.3 - Observação de Traços em Vidro	63
3.2.4 - Fissão Espontânea do U^{238}	70
<u>CAPÍTULO IV</u> - CONSIDERAÇÕES TEÓRICAS E CONCLUSÕES	76
4.1 - Introdução	76
4.2 - Emissão de Íons Pesados por Penetração de Barreira de Potencial	76
4.3 - Alta Assimetria de Massa na Fissão Espontânea de Nú cleos Pesados	84
4.4 - Conclusões	85
<u>APÊNDICE A</u> - PERDA DE ENERGIA POR COLISÕES ATÔMICAS DE PARTÍCULAS CARREGADAS NUM MEIO-COMPOSTO	90
<u>APÊNDICE B</u> - PERDA DE ENERGIA POR IONIZAÇÃO E ALCANCE DE PRÓTONS EM EMULSÃO NUCLEAR	94
<u>BIBLIOGRAFIA</u>	103

LISTA DE TABELAS

<u>Tab.</u>	<u>Pág.</u>
1.2.1 - Chapas de emulsão nuclear utilizadas na redeterminação da meia-vida de fissão espontânea do U^{238}	10
1.3.2.2.1 - Energia cinética e alcance em emulsão de possíveis produtos de desintegração espontânea do U^{238}	33
2.1.1 - Produção de isótopos de neônio e argônio em minerais radioativos	38
2.2.1 - Resultados experimentais obtidos para a fotofissão do U^{238} a baixa energia com a técnica de sanduíches de mica	44
3.2.2.1 - Dados relativos à determinação da espessura de filmes de urânio	58
3.2.2.2 - Espessura dos filmes de urânio	58
4.2.1 - Resultados do cálculo de penetração de barreira de potencial para alguns íons pesados no U^{238}	80
B.1 - Composição média de emulsões nucleares Ilford	97
B.2 - Ionização de prótons em emulsão nuclear	99
B.3 - Alcance de prótons em emulsão nuclear	101

INTRODUÇÃO

O presente trabalho relata uma série de experiências as quais fornecem evidências físicas de que núcleos de alguns átomos da região dos actinídeos, além de experimentarem o bem conhecido fenômeno da fissão, são também capazes, tanto espontaneamente como por processos induzidos, de desintegrar por emissão de íons pesados com números de massa compreendidos entre 20 e 70.

Desde 1959 este modo de desintegração nuclear tem sido observado em nosso laboratório, toda vez que se fazia experiências de fotofissão do urânio à baixa energia usando uma técnica especial de emulsão nuclear para a detecção dos fragmentos ⁽¹⁻⁵⁾.

No final dos anos 50, de Carvalho e colaboradores ^(6,7) começaram a desenvolver novas técnicas em emulsão nuclear para serem utilizadas em experiências de fissão de núcleos pesados induzida por fótons e partículas de baixa e alta energia. No caso da fissão do urânio, o método consiste basicamente em preparar películas de emulsão nuclear carregadas quantitativamente com soluções de um sal de urânio de tal modo que as propriedades de registro da emulsão não sejam alteradas durante os estágios de carregamento, armazenamento, exposição e revelação, permitindo, ao mesmo tempo, que se conheça a quantidade exata de urânio incorporado à emulsão. Após armazenar as películas por um longo período de tempo, ou irradiá-las com feixes de fótons ou partículas para se estudar fissão induzida, uma técnica especial de revelação é utilizada com a qual são obtidos traços de fragmentos de fissão

com ótima discernibilidade a despeito do intenso fundo de partículas alfa⁽⁸⁾. Para impedir o "fading" da imagem latente, as películas de emulsão nuclear são encapsuladas a vácuo e armazenadas à baixa temperatura. O método de revelação usado permite registrar legivelmente os traços de fragmentos de fissão, ao mesmo tempo que nenhuma partícula alfa torna-se visível. Desse modo, o fundo indesejável proveniente de partículas de baixa ionização (partículas alfa, elétrons, radiação gama e prótons de recuo) é completamente eliminado. Detalhes desta técnica podem ser encontrados em inúmeras publicações anteriores^(3,9,10,11).

No decorrer das experiências que então se faziam sobre a fissão do urânio induzida quer por fótons monoenergéticos quer por bremsstrahlung de baixa energia, era sistematicamente observado em todas as distribuições de alcance dos fragmentos registrados em emulsão um pequeno pico, porém claro, devido a traços mais curtos do que os normalmente atribuídos aos fragmentos da fotofissão do urânio. Aquela época, não foi possível encontrar qualquer explicação satisfatória para a origem desses traços mais curtos que os usualmente encontrados para os fragmentos da fissão ordinária. A conclusão de que os traços de curto alcance então observados eram decorrentes de uma desintegração por íons pesados, com massas inferiores a dos fragmentos de fissão, dos núcleos de U^{238} foto-excitados tornou-se evidente bem mais tarde, em 1973, quando foram analisadas placas de emulsão nuclear densamente carregadas com urânio, e que tinham sido expostas durante oito anos, com a finalidade de se determinar a constante de desintegração por fissão espontânea do U^{238} ^(12,13). Com a grande população de traços registrados nesta experiência de longo tempo

de exposição das chapas, foi observado novamente traços mais curtos do que os traços ordinários devido aos fragmentos da fissão espontânea. Então, pela primeira vez, a origem de tais traços de menor comprimento foi explicada como sendo devido a uma desintegração nuclear espontânea do urânio por íons pesados com números de massa compreendidos entre 20 e 70.

Outras evidências experimentais como, por exemplo, a observação sistemática de uma abundância isotópica altamente anormal (em relação à atmosférica) de neônio e argônio encontrados em minerais que contêm urânio e tório⁽¹⁴⁻¹⁷⁾, parecem corroborar fortemente esta hipótese de desintegração do urânio (e possivelmente também do tório) por íons pesados. A explicação para a origem desta não-usual abundância isotópica não está até hoje muito clara^(17,18), e é possível, como se discutirá mais adiante, que o excesso de neônio e argônio pode resultar em parte de uma emissão espontânea desses íons pelo urânio contido nos minerais.

A partir de 1970, Storzer⁽¹⁹⁾, Wagner e colaboradores⁽²⁰⁾ e Thiel⁽²¹⁾ começaram independentemente a estudar vidros artificiais de urânio, fabricados durante o século passado, com a finalidade de redeterminar a meia-vida de fissão espontânea do U^{238} . Thiel e Herr⁽²²⁾ apresentaram recentemente os resultados da análise de uma amostra de um vidro de urânio de 126 anos. Também aqui, pode-se observar dois picos nas distribuições de diâmetro dos buracos (ampliados por ataque do vidro com ácido fluorídrico) criados pela passagem dos diferentes fragmentos no vidro, picos estes muito semelhantes aos que se observam nas distribuições de alcance dos fragmentos obtidas pela técnica de emulsão nuclear. No caso do vidro, tendo sido afastada a hipóte-

se de ocorrência de "fading" por efeito térmico (o que resultaria numa redução dos diâmetros) é possível que os diâmetros menores possam ser indicativos de uma emissão de íons pesados, o que sustentaria a conclusão anterior, obtida por métodos inteiramente diferentes (emulsão nuclear), de se tratar de um caso de desintegração espontânea do U^{238} por íons de número de massa compreendidos entre 20 e 70.

Outras observações experimentais possivelmente relacionadas aos traços de curto alcance observados nas experiências com emulsão nuclear e que parecem ser também indicativas da emissão de íons pesados induzida por fótons e partículas, são as seguintes: i) o registro de traços desemparelhados na fotofissão do urânio à baixa energia observados recentemente em nosso laboratório com a técnica de sanduiches de mica ⁽²³⁾; ii) traços desemparelhados observados com a mesma técnica na fissão de núcleos pesados induzida por partículas de alta energia ⁽²⁴⁻²⁸⁾; iii) os rendimentos de radionuclídeos com números de massa inferiores a ~ 70 , de um lado, e superiores a ~ 160 , de outro, observados por radioquímicos na fissão binária e ternária do U^{238} induzida por íons de hélio de 30-40 MeV ^(29,30) e por neutrons rápidos ^(31,32); iv) a recente observação de Epperson ⁽³³⁾ de uma forte anomalia, na região de número de massa em torno a 78, nos rendimentos dos produtos da fissão do Np^{236} fracamente excitado ($\approx 4,5$ MeV).

Teoricamente, este novo modo de desintegração de núcleos pesados pode ser interpretado como uma alta assimetria de massa na fissão ou como o resultado de uma emissão de grandes aglomerados de nucleons pelo núcleo ^(12,13,34) (*heavy nucleon-cluster*

emission). Com efeito, Săndulescu e colaboradores ⁽³⁵⁾ (*) foram capazes de mostrar novas estruturas nas distribuições de massa da fissão espontânea do U^{238} e Ne^{252} , como um resultado de um tratamento correto dos efeitos de camadas dos fragmentos. Os cálculos indicam, para a fissão espontânea do U^{238} , novos picos nas distribuições de massa, com rendimentos relativamente altos ($\approx 20\%$) com respeito aos máximos já bem conhecidos em torno a 96 unidades de massa. Também, o tratamento destes casos de divisão nuclear de alta assimetria de massa de um modo semelhante à de -sintegração alfa ^(13,36), tem mostrado que as penetrabilidades através as barreiras de potencial são competitivas com a emissão de partícula alfa, e que para alguns modos de emissão de aglomerados de nucleons (*clusters*) as penetrabilidades são até maiores que a de emissão de partícula alfa.

Tão logo foram observados traços de menor comprimento (comparado aos traços de fragmentos de fissão) nas chapas de emulsão nuclear carregadas com urânio e expostas por longo tempo para as medidas de fissão espontânea do U^{238} , fomos levados a procurar pelos mesmos traços em chapas carregadas com urânio e que tinham sido também usadas anteriormente tanto em experiências de fissão espontânea ⁽³⁷⁾ como em experiências de fotofissão à baixa energia ⁽⁴⁾. A observação sistemática de um pico correspondente a traços mais curtos nas distribuições de alcance é também fortemente indicativa de uma provável emissão de íons pesados pelo urânio induzida por fótons de baixa energia ($E_{\gamma} < 9 \text{ MeV}$).

Uma vez que os traços de curto alcance em chapas de

(*) A. Săndulescu e W. Greiner, Comunicação Particular a H.G. de Carvalho (1978).

emulsão nuclear carregadas com urânio e irradiadas com fótons de baixa energia foram interpretados como um novo fenômeno nuclear que havia escapado à observação, decidiu-se, em consequência conduzir uma série de experiências em nosso laboratório⁽²³⁾ com a finalidade de confirmar a conclusão chegada, anos mais tarde, de que muito provavelmente se tratava de uma desintegração por íons pesados do urânio foto-excitado. O objetivo primordial dessas experiências foi o de utilizar métodos de identificar e diferenciar claramente o registro de eventos de fissão binária da emissão simples de íons por meio da origem marcada dos fragmentos. Com este propósito em mente, foi usada a técnica de sanduiches de mica com finíssimas camadas de urânio ($\approx 20\mu\text{g}$ de U/cm^2). Nos últimos meses, foram também analisadas em nosso laboratório placas de vidro recobertas com filmes finos de urânio ($\approx 0,3\ \mu\text{m}$ de espessura), preparadas há cerca de 16 anos, para uma nova redeterminação da meia-vida de fissão espontânea de U^{238} .

O objetivo do presente trabalho é descrever e discutir os resultados obtidos de tais experiências. Serão também mostrados e discutidos resultados de outros autores. No Capítulo I será dada atenção aos processos espontâneos de fissão e emissão de íons pesados pelo U^{238} , com ênfase especial ao método de detecção de fragmentos nucleares pesados pela técnica de emulsão nuclear. No Capítulo II serão apresentadas outras evidências experimentais da possível emissão de íons pesados pelo U^{238} , tanto por processos espontâneos como induzidos por fótons de baixa energia e neutrons de reator. No Capítulo III serão discutidos os resultados experimentais obtidos com a técnica de vi

dro. Por último, no Capítulo IV, serão comentadas algumas con
si
derações teóricas e apresentadas as conclusões finais.

CAPÍTULO I

ALTA ASSIMETRIA DE MASSA NA DESINTEGRAÇÃO ESPONTÂNEA DO U^{238}

1.1 - *Introdução*

A primeira evidência experimental de que o U^{238} é também um emissor espontâneo de íons na região de massas compreendida entre o neônio e o níquel⁽¹⁵⁾ resultou de uma análise cuidadosa de chapas de emulsão nuclear carregadas com urânio, e armazenadas por um longo período de tempo, com a finalidade de se redeterminar a meia-vida de fissão espontânea do U^{238} .

A motivação inicial que nos levou a conduzir uma experiência de longo tempo de exposição resulta do fato de que a baixa atividade do U^{238} com respeito à fissão espontânea (da ordem de 10^{-16} ano⁻¹) torna as medidas muito difíceis, levando mesmo a um espectro de resultados para a constante de desintegração do U^{238} por fissão espontânea, λ_f (veja a Fig. 1.1.1). Há, pois, grandes diferenças nas determinações experimentais de λ_f , seja pelos diferentes métodos de medida usados que por medidas individuais. Por razões estatísticas, tornam-se necessárias exposições muito prolongadas para que se possa acumular o número desejável de eventos de fissão espontânea.

Emulsões nucleares carregadas com urânio, que constituem um método integral de registro de traços de fragmentos de

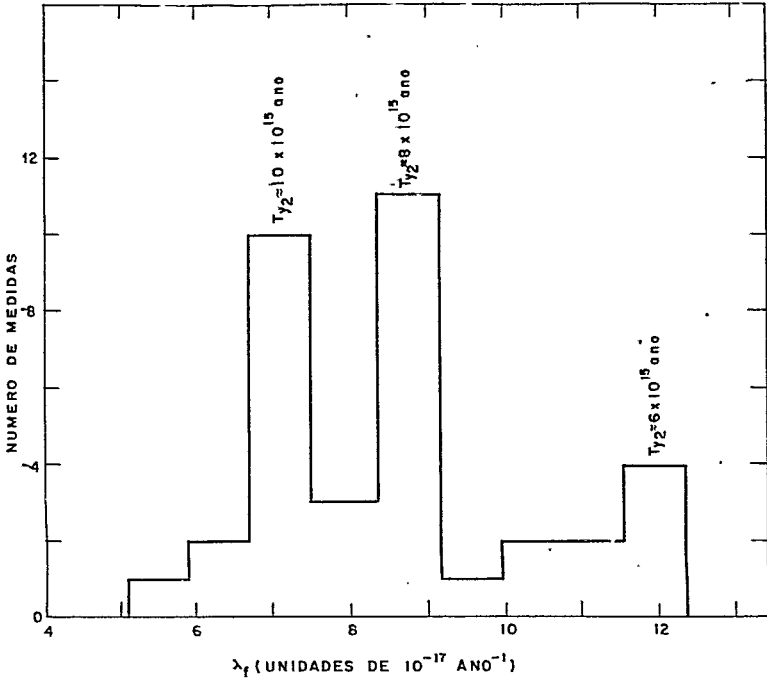


FIGURA 1.1.1 - Distribuição de frequência dos resultados experimentais obtidos até o presente para a constante de desintegração do U^{238} por fissão espontânea, λ_f . O histograma foi construído a partir dos dados relacionados nas compilações de de Carvalho e colaboradores (Ref.(13)), Thiel e Herr (Ref.(22)) e da medida mais recente realizada por Rizzo (Ref.(38)). Das anteriores a 1947, bem como a medida de Hoff Lu e colaboradores(Ref.(39)), não foram consideradas por se afastarem da maioria dos resultados por um fator maior que 2. Afora o grande intervalo de valores coberto por λ_f , três grupos de medidas são predominantes: 29% em torno a $6,9 \times 10^{-17} \text{ ano}^{-1}$, 31% em $8,5 \times 10^{-17} \text{ ano}^{-1}$ e 14% em $11,5 \times 10^{-17} \text{ ano}^{-1}$. As correspondentes meias-vidas acham-se também indicadas. Atualmente, o resultado $\lambda_f = (8,46 \pm 0,06) \times 10^{-17} \text{ ano}^{-1}$ obtido por Galliker e colaboradores (Ref.(40)) é o recomendado para trabalhos de datação pela técnica de traços de fragmentos de fissão.

fissão, foram utilizadas em nosso laboratório para uma nova medida de λ_f . Uma outra técnica que tem sido também por nós utilizada é a detecção dos fragmentos da fissão espontânea do urânio em placas de vidro, com uma das superfícies previamente recoberta com um filme fino de urânio. Neste Capítulo, discutiremos os resultados obtidos com a técnica de emulsão nuclear e no Capítulo III os obtidos com a técnica de vidro.

1.2 - Análise de Traços em Emulsão Nuclear

Várias chapas de emulsão nuclear carregadas com urânio (7,9,10) foram preparadas e armazenadas à baixa temperatura por um período de tempo suficientemente longo que permitisse o acúmulo de um grande número de traços de fragmentos da fissão espontânea do U^{238} (veja Tab. 1.2.1). O intenso fundo indesejável

TABELA 1.2.1 - Películas de emulsão nuclear (K0-Ilford) carregadas com urânio natural utilizadas na redeterminação da meia-vida de fissão espontânea do U^{238} (12).

Nº	Espessura (μ m)	Massa (g)	Carga (mg U/g)	Tempo de Exposição (d)	Exposição total (mg.d/cm ²)
1	450	4,27	21,2	135	$0,477 \times 10^3$
2	450	4,14	21,2	208	0,714
3	240	1,82	18,2	1538	2,55
4	250	2,33	18,2	1548	3,38
5	590	0,80	19,2	3057	12,5

vel de traços de partículas alfa (da ordem de 10^6 por evento de fissão espontânea) foi eliminado mediante o uso da técnica

de revelação que permite tornar bem legíveis apenas traços de partículas de maior ionização⁽⁸⁾. Desse modo, foi obtida uma alta população de traços (de até 10^4 por cm^2) uniformemente distribuídos no volume da emulsão. Para identificação e contagem dos eventos de fissão, um grande número de traços tiveram seus comprimentos medidos (com resolução de $1\mu\text{m}$), com a finalidade de se construir distribuições de alcance detalhadas. Essas distribuições mostraram um resultado muito surpreendente: o aparecimento de um novo pico, ao lado do pico característico dos traços de fragmentos da fissão espontânea do U^{238} .

A Fig. 1.2.1 mostra duas distribuições de alcance típicas obtidas nas condições experimentais acima descritas. Ambos os fragmentos (leve e pesado) de um evento de fissão ordinária contribuem para o comprimento total dos traços mais longos, medidos com melhor precisão, e que se distribuem normalmente em torno a $22\mu\text{m}$. Este resultado está em bom acordo com os bem conhecidos alcances de fragmentos de fissão em emulsão normal ($\approx 11\mu\text{m}$ para o fragmento pesado e $\approx 15\mu\text{m}$ para o leve) determinados experimentalmente por diversos autores^(41,42). Além disso, a densidade N_f dos traços correspondentes aos eventos de fissão (traços mais longos nas distribuições de alcance), e determinada para as diversas chapas com diferentes exposições totais, E ($\text{mg-dia}/\text{cm}^2$), nos permitiu construir um gráfico N_f versus E (veja Fig. 1.2.2) a partir do qual se obteve $(6.0 \pm 0,4) \times 10^{15}$ anos para a meia-vida de fissão espontânea do U^{238} (cf. Fig. 1.1.1). Este resultado é comparável aos obtidos por outros métodos experimentais (radioquímica⁽⁴³⁻⁴⁶⁾, câmara de ionização⁽⁴⁷⁾ e cintilador líquido com U_3O_8 em suspensão⁽³⁸⁾).

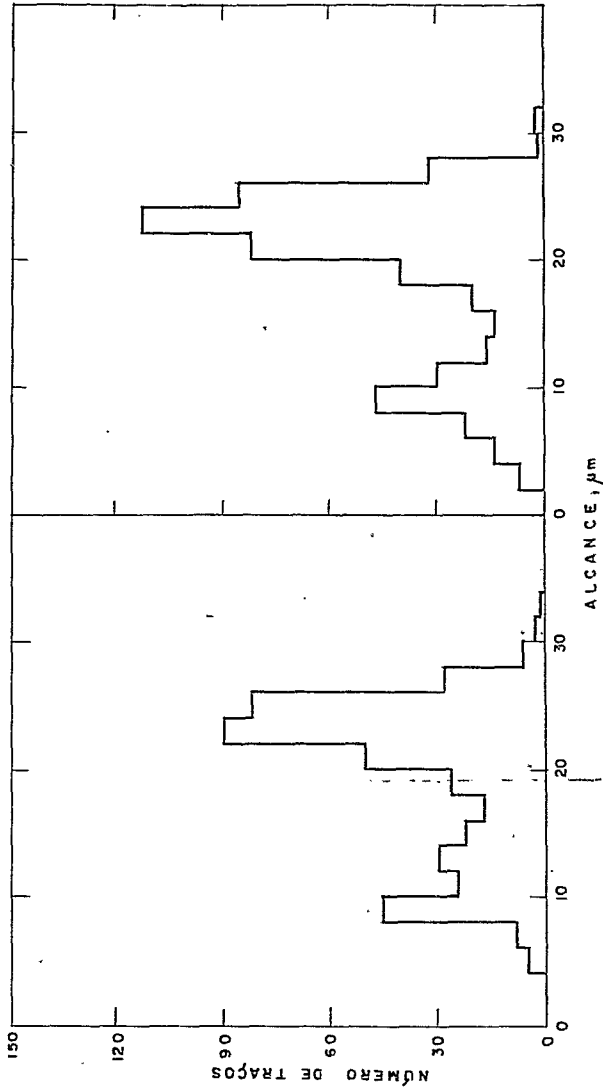


FIGURA 1.2.1 - Distribuições de alcance de fragmentos registrados em chapas de emulsão nuclear carregadas com urânio obtidas nas experiências de fissão espontânea do U^{238} (23). Um pico claro e largo aparece em torno a 10μm. A distribuição aproximadamente gaussiana centrada em $\sim 22\mu\text{m}$ corresponde aos traços de fragmentos da fissão espontânea (soma dos alcances dos fragmentos leve e pesado). O erro máximo na medida individual dos alcances é de $\pm 3\mu\text{m}$.

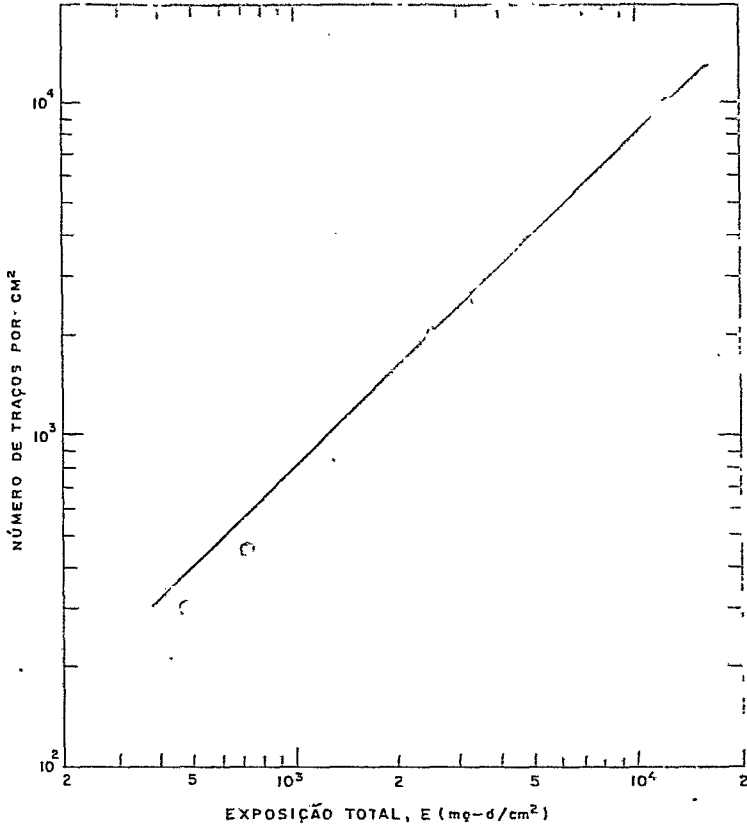


FIGURA 1.2.2 - Densidade de traços de U^{238} decorrente de fissão espontânea do U^{238} como uma função da exposição total, para as diversas chapas de emissão nuclear carregadas com U^{238} . A linha tracejada é o ajuste aos pontos pelo método dos mínimos quadrados.

Tornou-se necessário, portanto, encontrar uma explicação para o aparecimento do novo pico, menos intenso, porém claro, correspondente a traços de menor comprimento, e distribuídos em torno a $\approx 10\mu\text{m}$, uma vez que esses traços mais curtos não podem estar relacionados aos eventos ordinários da fissão espontânea do U^{238} .

De início, a chance de um possível erro instrumental foi excluída. A possibilidade dos traços de menor comprimento serem o resultado de uma sensibilidade não uniforme da emulsão, o que permitiria o registro de partículas alfa em regiões de alta sensibilidade, é muito improvável, pois a alta concentração de partículas alfa daria como resultado o aglomerado de um grande número de traços, e não traços isolados e dispersos uniformemente no volume da emulsão. Além do mais, não foi observado gradiente de revelação nas diversas chapas examinadas.

A hipótese da presença de bactérias que eventualmente poderiam produzir pequenos traços (colônias) que se assemelhassem aos de partículas carregadas foi totalmente eliminada pela análise feita em placas de emulsão Ilford-KO não carregadas e submetidas a idêntico processo de revelação que as demais. Essas placas (bem mais antigas do que as utilizadas nas experiências de fissão espontânea), ao serem examinadas ao microscópio, não mostraram traços de qualquer espécie. Por esse motivo ficou também eliminada a possibilidade dos traços curtos serem o resultado de recuos nucleares de reações dos componentes de alta energia da radiação cósmica ao nível do mar com os elementos constituintes da emulsão. A conclusão preliminar então chegada foi a de que o urânio incorporado à emulsão é, de alguma forma,

o responsável pela presença dos traços de menor comprimento observado nas diversas chapas.

Com efeito, a radioatividade alfa natural do urânio (e de uma possível contaminação de tório) contido nas películas de emulsão nuclear poderia induzir reações do tipo (α, n) e (α, p) , principalmente nos componentes leves da emulsão (C, N, O). No entanto, os núcleos de recuo resultantes de tais reações não teriam energia suficiente para deixar traços visíveis na emulsão. O urânio poderia também ser alvo de reações induzidas pela radiação cósmica dando como resultado recuos nucleares com ionização suficiente para deixar traços reveláveis. Segundo George e Evans⁽⁴⁸⁾, a frequência de produção de "estrelas"^(*) em emulsões nucleares Ilford, ao nível do mar, pela radiação cósmica, é da ordem de $1,5/(\text{cm}^3 \cdot \text{dia})$. Admitindo, em caso extremo, que toda "estrela" desse origem a um recuo nuclear revelável, a frequência desses recuos resultantes da interação da radiação cósmica com os núcleos de urânio presentes na emulsão, N_s , seria dada por

$$N_s / (\text{cm}^3 \cdot \text{dia}) = 1,5 \frac{\sigma_U N_U}{\sum_i \sigma_i N_i}, \quad (1.2.1)$$

onde N_U é a concentração de urânio, σ_U é a seção de choque de produção de estrelas no urânio, N_i são as concentrações dos componentes da emulsão nuclear e σ_i suas respectivas seções de choque para produção de estrelas. Supondo que as seções de choque

(*) Quando em uma emulsão observamos uma desintegração nuclear induzida por partículas de alta energia, observa-se uma série de traços que partem de um centro, como se fossem raios, cujo aspecto "estrelado" faz com que se fale de estrelas.

sejam proporcionais ao número de massa A (o que equivale a serem proporcionais ao volume nuclear) e sabendo que a concentração máxima permitida de urânio nas películas de emulsão é da ordem de $80\text{mg}/\text{cm}^3$, obtém-se $N_g \approx 0,03/(\text{cm}^3 \cdot \text{dia})$. Desse modo, obteríamos, por exemplo, para a chapa de maior tempo de exposição (3057 dias) uma densidade máxima de recuos nucleares cerca de $5,4/\text{cm}^2$, valor este que é aproximadamente 1000 vezes menor que a densidade observada de traços de comprimento em torno a $10 \mu\text{m}$ (cf. Fig. 1.2.1). As considerações acima eliminam, portanto, a hipótese dos traços de curto alcance serem provenientes de recuos nucleares resultantes de reações dos núcleos de urânio com a radiação cósmica, conclusão idêntica à chegada por Price e Walker⁽⁴⁹⁾ no estudo de traços "fósseis" de partículas carregados em mica.

Uma vez que os mecanismos descritos nos parágrafos anteriores mostraram ser improváveis em explicar a origem dos traços de curto alcance, fomos levados a concluir que esses traços de menor comprimento têm sua origem numa desintegração nuclear espontânea do urânio, um caso de emissão de grandes aglomerados de nucleons (*large nucleon-cluster emission*) de massas intermediárias na região do neônio ao níquel. Considerando que as chapas de emulsão nuclear foram carregadas com urânio natural, nos sa hipótese é a de que esta emissão espontânea de íons pesados ocorre a partir do isótopo U^{238} e não do U^{235} ou U^{234} , os quais são menos abundantes. A ocorrência de um fenômeno desta natureza poderia ter características semelhantes à fissão nuclear espontânea, porém com uma alta assimetria de massa. Como se sabe, na fissão espontânea do U^{238} a assimetria de massa (razão entre

as massas dos fragmentos) varia de 1,13 a 2,00, enquanto que num processo como o acima proposto, a assimetria de massa poderia variar, aproximadamente, de 2,5 a 12.

1.3 - Emissão Espontânea de Íons Pesados pelo U^{238}

A hipótese de que os traços mais curtos observados nas chapas carregadas com urânio natural são o resultado de uma desintegração espontânea do U^{238} por fragmentos de massa intermediária na região do neônio ao níquel é compatível com a capacidade de registro de tais fragmentos pela emulsão. Energeticamente, este modo de desintegração é perfeitamente possível para uma grande variedade de núclídeos no intervalo de massa considerado.

Embora nas condições da presente experiência não seja possível identificar a carga e a massa dos íons registrados, os alcances medidos estão em bom acordo com os alcances calculados em emulsão para um grande número de íons prováveis de serem emitidos espontaneamente pelo U^{238} . Além disso, as ionizações calculadas indicam que tais íons são em média menos ionizantes que os fragmentos de fissão por apenas um fator 2 ou 3 e, portanto, têm carga, massa e energia adequados para serem registrados com a presente técnica experimental de discriminação de partículas em emulsão nuclear.

O propósito dos parágrafos que se seguem é discutir em bases quantitativas as grandezas físicas envolvidas na detecção deste novo modo de desintegração espontânea do U^{238} .

1.3.1 - Energética do Processo

Suponhamos que um núcleo de U^{238} se desintegre espontaneamente dando como produtos o fragmento ${}_Z X^A$ e o núcleo de recuo ${}_{92-Z} Y^{238-A}$, isto é:



onde Q é a energia total de desintegração. Do balanço energético e da conservação da quantidade de movimento, resultam

$$Q \left[\text{MeV} \right] = \left[M_U - (M_X + M_Y) \right] \times 931,4812 \quad (1.3.1.2)$$

e

$$E_X = \frac{Q}{1 + \frac{M_X}{M_Y}} \quad (1.3.1.3)$$

sendo M as massas nucleares expressas em unidades de massa atômica e E_X a energia cinética do fragmento emitido.

É possível ainda que os produtos X e Y possam estar excitados. Denotando por um asterisco a desintegração no caso de haver excitação dos fragmentos, podemos escrever:



sendo Q^* a energia cinética dos fragmentos excitados. Como a energia de excitação é positiva, resulta $Q^* < Q$, e podemos considerar, como no caso da fissão espontânea, a energia cinética dos fragmentos X e Y ligeiramente menor que a energia total liberada no processo. A fração desta que se manifesta como ener -

gia cinética foi um parâmetro a ser ajustado de tal modo que os alcances calculados para os fragmentos X_1^* com energia cinética $E_{X_1^*}$ em emulsão concordassem com aqueles obtidos experimentalmente. Este parâmetro foi admitido constante ao longo do cálculo da energética dos diferentes modos de emissão, e o melhor acordo foi encontrado quando ~85% da energia total é tomada como energia cinética dos fragmentos. Para o cálculo numérico foram considerados produtos de desintegração para os quais $A < 70$. As massas nucleares M_U e M_X foram obtidas da compilação de Wapstra e Gove⁽⁵⁰⁾ e M_Y foi calculada a partir da fórmula semi-empírica de massa de Wing e Fong⁽⁵¹⁾. Cerca de 260 diferentes modos de desintegração (o fragmento X variando do Li ao Ni) foram analisados, e alguns resultados podem ser vistos na Fig. 1.3.1.1. O comportamento geral é de que a energia total de desintegração, Q , decresce com a assimetria de massa (razão entre as massas dos fragmentos), o mesmo acontecendo com a energia cinética total, Q^* , no caso dos fragmentos serem produzidos com energia de excitação (Eq. (1.3.1.4)). O cálculo sistemático como acima descrito mostra que a emissão de Li^{10} , Li^{11} , Be^{13} , C^{10} , N^{11} , N^{12} e O^{13} não é energeticamente possível.

1.3.2 - Perda de Energia por Ionização e Alcance em Emulsão Nuclear

Calculadas as energias cinéticas dos produtos de desintegração, é possível estudar a perda de energia por ionização e determinar os correspondentes alcances para os diversos íons em emulsão nuclear.

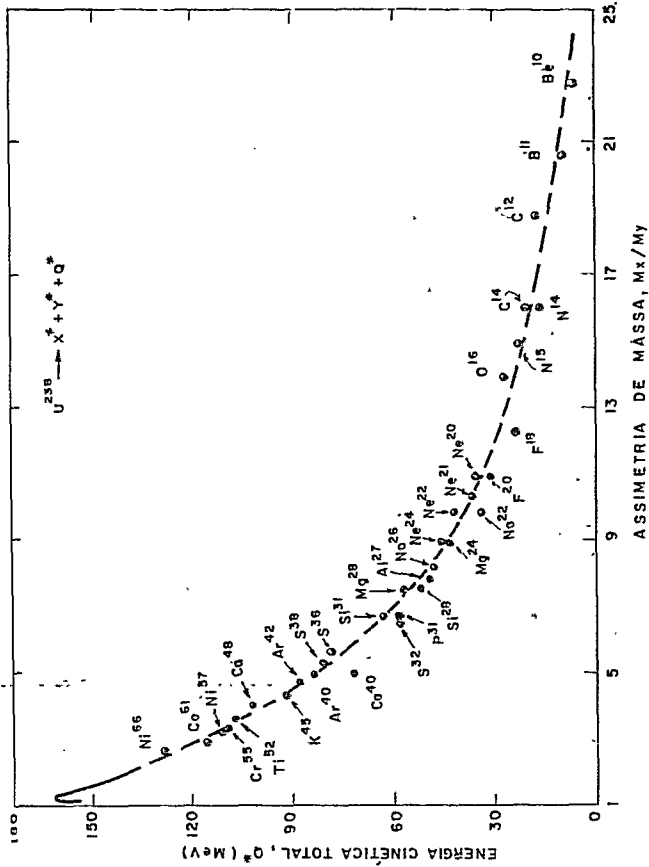


FIGURA 1.3.1.1 - Energética da desintegração espontânea do U^{238} em fragmentos com alta assimetria de massa. Ilustra-se a variação de energia cinética total dos fragmentos com a assimetria de massa, no caso em que 15% da energia total de desintegração é gasta como energia de excitação dos fragmentos. Os pontos representam o resultado do cálculo para alguns modos de desintegração, como descrito no texto. A linha tracejada representa apenas o andamento de Q^* com M_x/M_y . Para efeito de comparação, está também representada a energia cinética total mais provável dos fragmentos da fissão do U^{235} por neutrons térmicos (curva contínua) segundo Brunton e Hanna (Ref. (52)).

Da conservação da quantidade de movimento linear resulta que, numa desintegração nuclear espontânea, a energia cinética total se distribui proporcionalmente aos inversos das massas dos fragmentos, isto é,

$$E_X M_X = E_Y M_Y \quad (1.3.2.1)$$

Se Q^* representa a energia cinética total, as energias cinéticas do íon emitido, E_X , e do núcleo de recuo, E_Y , serão dadas por

$$E_X = \frac{Q^* M_Y}{M_X + M_Y}, \quad E_Y = \frac{Q^* M_X}{M_X + M_Y} \quad (1.3.2.2)$$

1.3.2.1 - Ionização

Os principais mecanismos pelos quais uma partícula carregada pesada perde energia ao se mover através um meio são por ionização (colisões com elétrons atômicos) e por colisões elásticas com núcleos atômicos (espalhamento de Rutherford). Este último não é pouco provável, até que a partícula se aproxima do final de sua trajetória, quando então as colisões nucleares tornam-se competitivas com a ionização.

Fixadas as condições de revelação de uma emulsão nuclear de sensibilidade conhecida, a densidade linear de grãos de brometo de prata revelados (que constitui o traço da partícula na emulsão) depende essencialmente da quantidade de ionização produzida pela passagem da partícula carregada. Por outro lado, colisões "nucleares" com os constituintes da emulsão eventualmente

podem dar indicações dos limiares de detecção em condições experimentais pré-estabelecidas (por exemplo, a análise dos traços da partícula espalhada e do núcleo de recuo pode indicar se traços de ionização tão baixa quanto a de C^{12} são revelados). É importante, pois, analisar com certo detalhe ambos os mecanismos (ionização e colisões nucleares) de perda de energia de íons de massa intermediária em emulsão nuclear.

Íons de carga z , massa m e velocidade $\beta = v/c$ perdem energia por unidade de comprimento de trajetória, por colisões com os átomos constituintes da emulsão, à razão

$$-\frac{dE}{dx}(\beta) \Big|_{\text{colisão}} = 8,4 \times 10^{-9} \frac{z^2 \rho \left[\frac{g}{cm^3} \right]}{\beta^2} \sum_{i=1}^n \frac{p_i Z_i^2}{A_i M_i \left[\text{amu} \right]} \times$$

$$\times \ln \left[4,8 \times 10^7 \frac{\beta^2 \mu_i \left[\text{amu} \right]}{z Z_i^{4/3}} \right] \quad (\text{MeV/um}) \quad , \quad (1.3.2.1.1)$$

sendo $\mu_i = \frac{m M_i}{m + M_i}$ a massa reduzida do sistema, ρ a densidade ($\approx 3,83 \text{ g/cm}^3$ para emulsões nucleares Ilford) e Z_i, A_i, M_i e p_i o número atômico, o número de massa, a massa atômica e o percentual em peso dos diferentes componentes da emulsão (47,5% de Ag; 35% de Br; 0,3% de I; 7,2% de C; 1,4% de H; 6,5% de O; 1,9% de N e 0,2% de S). Como estamos interessados em fragmentos da desintegração espontânea do urânio, as energias podem ser obtidas das expressões (1.3.2.2) e, conseqüentemente, a velocidade β vem dada por

$$\beta = 0,0463 \sqrt{\frac{E \left[\text{MeV} \right]}{m \left[\text{amu} \right]}} \quad . \quad (1.3.2.1.2)$$

As condições de validade da fórmula (1.3.2.1.1) acima são as seguintes (α é a constante de estrutura fina):

$$\frac{2\alpha z Z}{\beta} \gg 1 \quad \text{e} \quad 18,6 \frac{\beta m [\text{amu}]}{Z^{1/3}} \gg 1 \quad , \quad (1.3.2.1.3)$$

o que correspondem a íons de massa intermediária e baixa energia (para detalhes, ver Apêndice A). Com efeito, as condições (1.3.2.1.3) são preenchidas por íons de carga, massa e energia maiores que aproximadamente 0^{16} de 2 MeV (incluindo fragmentos de fissão e recuos nucleares).

De outra parte, a perda de energia por ionização está relacionada à "*carga efetiva*" da partícula (que depende unicamente de sua velocidade β) e à ionização de um próton de mesma velocidade que a da partícula. A relação é a seguinte

$$-\frac{dE}{dx}(\beta)_{\text{ion}} \Big|_{\text{ionização}} = [z^*(\beta)]^2 \left(-\frac{dE}{dx}(\beta)_{\text{próton}} \right) \quad , \quad (1.3.2.1.4)$$

a qual define a "*carga efetiva*" z^* da partícula. Heckman e colaboradores (53), estudando a perda de energia por ionização de vários íons em emulsões Ilford (e utilizando também dados experimentais de diversos íons no ar e no neônio), verificaram que a grandeza z^*/z necessária para produzir a quantidade de ionização observada experimentalmente é unicamente função da velocidade reduzida, $\beta/z^{2/3}$, e não depende do meio onde a partícula se desloca. O conjunto de dados experimentais compilados por Heckman obedece a uma "*curva universal*", cuja equação se escreve

$$z^* = z \left[1 - e^{-125\beta/z^{2/3}} \right] \quad , \quad (1.3.2.1.5)$$

a qual tem sido comumente usada para se calcular a carga efetiva de diferentes íons à velocidade β . A ionização de um próton em emulsão pode ser obtida mediante as relações (*)

$$\left\{ \begin{array}{ll} -\frac{dE}{dx} \left[\text{MeV}/\mu\text{m} \right] = 30\beta e^{-82\beta} & \beta \leq 0,0335 \\ -\frac{dE}{dx} \left[\text{MeV}/\mu\text{m} \right] = 8,4\beta e^{-44\beta} & 0,0335 < \beta \leq 0,0653 \end{array} \right. \quad (1.3.2.1.6)$$

As Figs. 1.3.2.1.1 e 1.3.2.1.2 mostram, como varia com a energia, a ionização de diversos íons em emulsão nuclear. As energias indicadas são as energias iniciais que cada íon teria nos possíveis modos de desintegração espontânea do U^{238} (cf. Fig. 1.3.1.1). Para comparação, são mostrados também o fragmento leve típico de fissão ($\sim Sr^{96}$ de ~ 100 MeV) e o fragmento pesado ($\sim Xe^{140}$ de ~ 70 MeV). A ionização de alguns recuos nucleares pode ser vista na Fig. 1.3.2.1.2. Para íons abaixo do Ni^{66} de 79 MeV (Fig. 1.3.2.1.1), a ionização passa primeiro por um máximo para depois decrescer e, para íons mais pesados que o acima especificado (Kr^{84} , fragmentos de fissão e recuos nucleares), a ionização sempre decresce com o decréscimo da energia. O conjunto das curvas de ionização reflete principalmente o efeito da "carga efetiva" dos diferentes íons. Na Fig. 1.3.2.1.3 são mostrados dois exemplos de comparação (em emulsão) entre a perda de energia por ionização e colisão "nuclear". Como se pode ver claramente, colisões "nucleares" predominam unicamente no final do percurso da partícula, tornando-se ainda

(*) Veja Apêndice B.

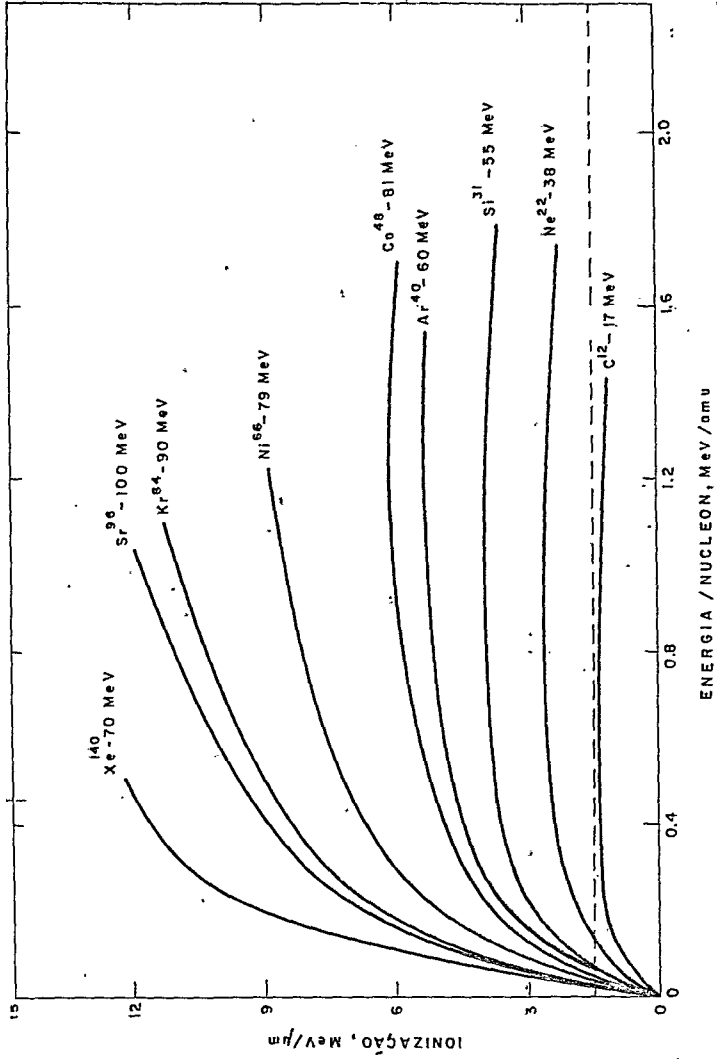


FIGURA 1.3.2.1.1 - Perda de energia por ionização de diversos íons em emulsão nuclear Ilford. Sr⁹⁶ e Xe¹⁴⁰ podem ser considerados fragmentos típicos de fissão.

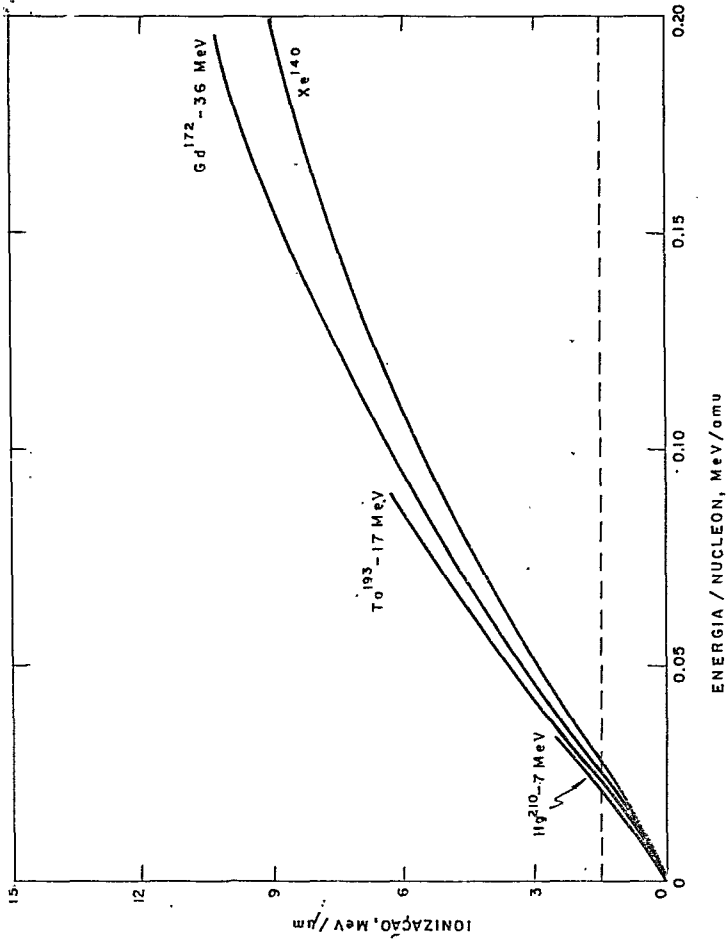


FIGURA 1.3.2.1.2 - Perda de energia por ionização de alguns recuos nucleares em emulsão Ilford.

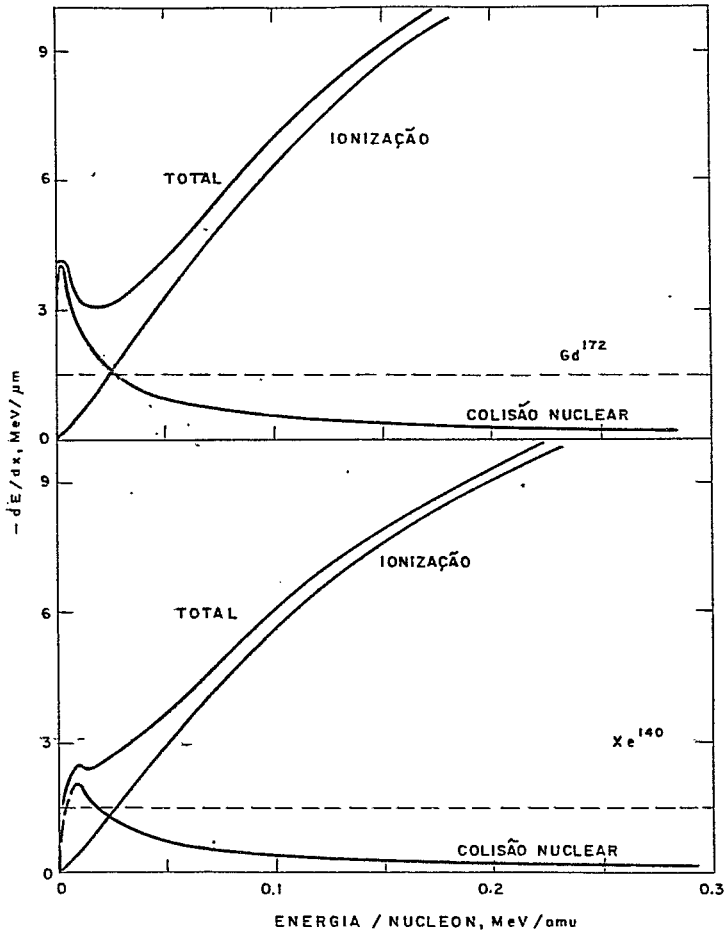


FIGURA 1.3.2.1.3 - Perda de energia por ionização e colisão de Gd^{172} e Xe^{140} em emulsão Ilford.

mais prováveis no caso de recuos nucleares, pois estes possuem baixa energia e carga $z \geq 60$.

Nas chapas analisadas na presente experiência não foram observados eventos atribuíveis a colisões nucleares, os quais poderiam ter sido revelados, principalmente as colisões entre fragmentos de fissão e os constituintes leves da emulsão (C, N, O). Este fato é indicativo da existência de um limiar de detecção, que é próprio do tipo de emulsão usada (Ilford-KO) e das condições de revelação (revelador fraco de amidol). Com efeito, o alcance total dos fragmentos observado num evento de fissão é de 2 a 3 μm inferior ao que se observa quando se usa reveladores mais fortes (isto é, revelação sem corte). Isto significa que parte do final do percurso de ambos os fragmentos não foi revelado nas condições da presente experiência, reduzindo portanto o alcance total.

O limiar de detecção pode ser facilmente encontrado, desde que se estabeleça a variação da ionização com a posição da partícula carregada ao longo de sua trajetória. Utilizando as curvas de ionização (Fig. 1.3.2.1.1) para os fragmentos mais prováveis da fissão (Xe^{140} e Sr^{96}), pode-se mostrar que, nas proximidades do final de seus percursos, a ionização I [$\text{MeV}/\mu\text{m}$] está relacionada à posição x [μm] de acordo com

$$\left\{ \begin{array}{l} x_L \approx 105 - 91I^{0,026} \\ x_P \approx \frac{77}{I^{0,05}} - 67 \end{array} \right. , \quad 1\text{MeV}/\mu\text{m} < I < 6\text{MeV}/\mu\text{m} \quad (1.3.2.1.7)$$

onde os índices L e P referem-se aos fragmentos leve e pesado,

respectivamente. Verifica-se que uma ionização de aproximadamente 1,5 MeV/ μm dá para a soma $x_L + x_P$ o valor $\sim 22\mu\text{m}$ o qual corresponde ao comprimento médio total dos traços de fragmentos de fissão medidos nas condições da presente experiência (cf. Fig. 1.2.1). Este limiar de detecção está indicado nas Figs. 1.3.2.1.1, 1.3.2.1.2 e 1.3.2.1.3 por uma linha tracejada. O limiar de 1,5 MeV/ μm explica por que elétrons, prótons de recuo, partículas α e íons mais pesados até aproximadamente o ^{16}O não são revelados. A conclusão final é a de que o método experimental utilizado no tratamento das chapas carregadas com urânio, o qual conduz à uma revelação de corte em torno a 1,5 MeV/ μm , permite registrar íons de carga maior ou igual a 10, havendo naturalmente uma redução de seus alcances à causa da ionização limiar.

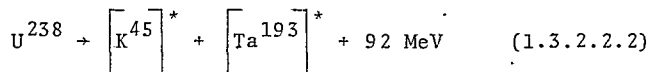
1.3.2.2 - Alcances

O comprimento do traço de uma partícula carregada em emulsão (alcance em emulsão) pode ser obtido diretamente a partir das correspondentes curvas de ionização mediante a integração numérica de

$$R = \int_{E'}^{E_0} \frac{dE}{\left(-\frac{dE}{dx}\right)}, \quad (1.3.2.2.1)$$

onde E_0 é a energia inicial e E' a energia correspondente à ionização limiar. Na hipótese de haver uma desintegração espontânea do U^{238} com assimetria de massa variando de $\sim 2,5$ a $\sim 5,5$, ambos

os fragmentos contribuem para o comprimento total do traço. Por exemplo, um caso de fissão altamente assimétrica como



(o asterisco significa que os fragmentos nascentes possuem energia de excitação) daria aproximadamente 75 MeV de energia cinética para o produto K^{45} e 17 MeV para o recuo Ta^{193} . Tomando para $(-dE/dx)_{\text{ionização}}$ as curvas construídas no parágrafo anterior e calculando os alcances de ambos os fragmentos mediante a expressão acima, verifica-se que, com as energias cinéticas indicadas, K^{45} teria um alcance de $\sim 17 \mu\text{m}$ e Ta^{193} de $\sim 4 \mu\text{m}$. Assim, este modo de desintegração daria origem a um traço de comprimento total $\sim 21 \mu\text{m}$ (ã parte as flutuações estatísticas dos alcances individuais) e, portanto, confundível com os traços de fragmentos da fissão ordinária. Desse modo, é possível que o pico centrado em $\sim 22 \mu\text{m}$ nas distribuições de alcance (Fig. 1.2.1) possa conter uma mistura de fragmentos de fissão espontânea ordinária, como também eventos atribuíveis a uma desintegração de alta assimetria de massa. De fato, os cálculos teóricos de Săndulescu e colaboradores (35) indicam para a fissão espontânea do U^{238} a possibilidade de formação de produtos com números de massa entre 60 e 75 (os fragmentos complementares com massas entre 163 e 178) com um rendimento médio aproximadamente 3 vezes menor que o da fissão ordinária. Este resultado está em bom acordo com o valor 6×10^{15} anos encontrado para a meia-vida de fissão espontânea do U^{238} com a presente técnica de emulsão nuclear, o qual é inferior por um fator 3/4 ao obtido por outros métodos experimentais ($\sim 8 \times 10^{15}$ anos).

Por outro lado, para assimetrias de massa superiores a $\sim 5,5$, os recuos nucleares (que teriam números de massa maiores que ~ 200 e energias cinéticas inferiores a ~ 12 MeV) não deixariam traço mensurável em emulsão. Neste caso, torna-se necessário estimar apenas os alcances de íons de massa intermediária do Ne ao Ar, com energias cinéticas obtidas da energia de cada modo de desintegração (eq. (1.3.2.2)), e confrontar os resultados com os alcances observados nas condições da presente experiência.

Heckman e colaboradores⁽⁵³⁾ fizeram um minucioso estudo da perda de energia e alcances de íons em emulsão Ilford, irradiando diferentes placas com íons de carbono, nitrogênio, oxigênio, neônio e argônio no intervalo de energia 0,22-10MeV/nucleon. Da análise sistemática dos resultados experimentais em tão obtidos, foi possível estabelecer uma fórmula geral que reproduzisse, com suficiente grau de precisão, os alcances medidos em emulsão. Por esta razão, fomos levados a utilizar o procedimento de Heckman para estimar os alcances de íons de Ne a Ar, cuja fórmula alcance-energia assim se escreve:

$$R = \frac{m}{z} \lambda(\beta) + mz^{2/3} C_z(\beta/z) \quad , \quad (1.3.2.2.3)$$

onde m , z e β são, respectivamente, a massa (expressa em unidades da massa do próton), a carga nuclear (em unidades da carga do elétron) e a velocidade ($\beta = v/c$) do íon; $\lambda(\beta)$ é o alcance do próton à velocidade β e $C_z(\beta/z)$ é o valor da função C_z para o argumento β/z . A velocidade β se relaciona à energia cinética do íon (caso não relativístico) de acordo com

$$\beta = 0,0462 \sqrt{\frac{E \text{ [MeV]}}{m \text{ [amu]}}} \quad (1.3.2.2.4)$$

$C_z(\beta/z)$ é uma "função universal" (inclui também alcances de fragmentos de fissão) derivada empiricamente e que está representada na Fig. 5 do trabalho de Heckman e colaboradores (53).

A Tab. 1.3.2.2.1 mostra o resultado das estimativas de alcances para diversos íons segundo a fórmula (1.3.2.2.3), bem como outros dados pertinentes ao cálculo. A última coluna relaciona os alcances corrigidos para o limiar de detecção (correspondente a uma ionização de 1,5 MeV/ μm) que resulta da sensibilização e das condições de revelação da emulsão na presente experiência. Confrontando os alcances estimados para os íons e correspondentes energias relacionadas na Tabela com aqueles que se observam experimentalmente (traços mais curtos nas distribuições de alcance na Fig. 1.2.1) verifica-se que são compatíveis uns com os outros. Este resultado nos permite concluir que muito provavelmente os traços de comprimento menor que $\sim 16 \mu\text{m}$ observados nas chapas carregadas com urânio são o resultado de uma possível emissão espontânea pelo U^{238} de íons de massa intermediária na região do Ne ao Ar.

TABELA 1.3.2.2.1 - Energias cinéticas e alcances em emulsão nuclear para al - guns possíveis modos de emissão espontânea de íons de massa intermediária pelo U²³⁸.

Íon Emitido	Energia de Desintegração (a) (MeV)	Energia Cinética (b) (MeV)	Alcance (c) (µm)	Alcance Corrigido (d) (µm)
Ne ²⁰	41,5	32,3	14,3	13
Ne ²¹	43,0	33,3	14,8	14
Ne ²²	49,5	38,2	16,9	15
Ne ²⁴	54,1	41,3	18,3	17
Na ²²	39,6	30,6	12,2	11
Mg ²⁴	50,8	38,9	14,0	13
Mg ²⁸	67,3	50,5	18,1	16
Al ²⁷	58,4	44,0	14,5	13
Al ³⁰	68,8	51,1	16,8	15
Si ²⁸	60,8	45,6	13,8	12
Si ³¹	74,7	55,2	16,6	14
P ³⁰	59,5	44,2	12,9	11
P ³¹	69,1	51,1	14,6	13
S ³²	68,6	50,5	13,8	11
S ³⁶	93,4	67,4	17,8	15
S ³⁸	95,2	68,0	18,0	15
Ar ³⁶	77,2	55,6	13,8	11
Ar ³⁸	92,3	65,9	16,0	13
Ar ⁴⁰	99,4	70,1	17,0	14

(a) Valores calculados como descrito no parágrafo 1.3.1.

(b) Valores calculados pela eq. (1.3.2.2), admitindo em cada caso 15% da energia de desintegração como energia de excitação dos fragmentos.

(c) Valores calculados segundo o formalismo de Heckman e colaboradores(53).

(d) Valores estimados considerando-se a ionização limiar de 1,5 MeV/µm.

CAPÍTULO II

OUTRAS EVIDÊNCIAS EXPERIMENTAIS DE EMISSÃO DE ÍONS PESADOS PELO URÂNIO

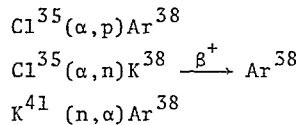
2.1 - Excesso de Isótopos de Neônio e Argônio em Minerais Radioativos e Gases Naturais

Uma outra evidência experimental que fortemente sustenta a hipótese de desintegração espontânea do U^{238} (e possivelmente também do Th^{232}) por íons de massa intermediária é a observação sistemática de um excesso de alguns isótopos de neônio e argônio encontrado em minerais que contêm urânio e tório e em gases naturais de alta concentração de hélio. De fato, uma abundância isotópica de Ne^{21} considerada altamente anormal em relação à atmosfera foi observada por Emerson e colaboradores ⁽⁵⁴⁾ em gases naturais de várias fontes. Enquanto que as razões isotópicas para o neônio atmosférico são $Ne^{20}/Ne^{21} = 340$ e $Ne^{20}/Ne^{22} = 10$, em certas amostras analisadas por Emerson esses números variam de 52 a 200 e 9 a 10, respectivamente. O fato da razão Ne^{20}/Ne^{21} ser menor que a correspondente no neônio atmosférico é indicativo de um excesso de Ne^{21} , uma vez que a razão Ne^{20}/Ne^{22} praticamente não se altera. Numa outra série de medidas Emerson e colaboradores ⁽⁵⁵⁾ confirmaram essa anomalia de excesso de Ne^{21} em gases naturais de alto teor de hélio.

As variações isotópicas de neônio e argônio em mine -

rais radioativos evidenciam também um excesso de isótopos Ne^{22} , Ne^{21} e Ar^{38} em relação às percentagens normais na atmosfera. Wetherill⁽¹⁵⁾, por exemplo, encontrou no caso da euxenita uma abundância de Ne^{22} cerca de 50 vezes maior que a normal e uma razão isotópica $\text{Ne}^{21}/\text{Ne}^{20}$ cerca de 370 vezes o normal. Uma outra observação experimental é a de Sharif-Zade e colaboradores⁽¹⁷⁾, que encontraram em monazita um conteúdo 15 vezes maior de Ne^{21} que o normal atmosférico, e em betafita um conteúdo de Ne^{22} duas vezes o normal.

Segundo Wetherill⁽¹⁵⁾, os processos mais prováveis para a explicação do excesso de Ar^{38} observado nos minerais radioativos seriam reações do tipo



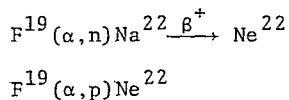
No entanto, as duas primeiras reações necessitam da presença de uma quantidade significativa de cloro na região de alcance das partículas alfa. Além disso, o rendimento da reação (α, n) é baixo em virtude do alto limiar; a maioria das partículas alfa teria energia abaixo do limiar e, mesmo para aquelas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

O acúmulo de Ne^{21} , por outro lado, tem sido explicado mediante a reação $\text{O}^{18}(\alpha, n)\text{Ne}^{21}$. Com efeito, as estimativas de

Wetherill ⁽¹⁵⁾ para o excesso de Ne²¹ com base na reação acima concordam aproximadamente com o obtido nas análises experimentais. Posteriormente, Sharif-Zade e colaboradores ⁽¹⁷⁾ concluíram também ser o rendimento da reação $O^{18}(\alpha,n)Ne^{21}$ a possível fonte de Ne²¹ nos minerais radioativos.

A possibilidade dos isótopos de neônio e argônio em excesso serem gerados nos minerais radioativos pela ação da radiação cósmica foi considerada por Takagi ⁽¹⁸⁾, e os cálculos indicam que seria necessário um fluxo de mésons da ordem de $10^{16}/cm^2$. Porém, como observaram Sharif-Zade e colaboradores ⁽¹⁷⁾, alguns fatos ficariam sem explicação se admitida esta hipótese, como por exemplo a variedade de proporções encontradas na razão de excesso de Ne²² para Ne²¹. (que deveria ser sempre 3 no caso da suposição de intensos fluxos de mésons).

Finalmente, uma explicação para o excesso de Ne²² observado nos minerais radioativos com base em reações nucleares que ocorressem no interior do mineral não é satisfatória. As mais prováveis poderiam ser



No entanto, como mostraram Sharif-Zade e colaboradores ⁽¹⁷⁾, as concentrações de fluor não são suficientes para produzir o excesso de Ne²² observado.

A origem do excesso de isótopos de neônio e argônio observado em materiais que contêm urânio e tório ainda não está satisfatoriamente esclarecida. É possível que uma emissão espon

tânea de Ne^{21} , Ne^{22} e Ar^{38} pelo U^{238} possa contribuir para o excesso observado de tais isótopos. Admitindo este mecanismo de desintegração como provável, a meia-vida para emissão de isótopos de neônio e argônio pelo U^{238} pode ser facilmente estimada a partir dos dados da literatura. Para os minerais radioativos, com efeito, supondo que o excesso de Ne^{21} , Ne^{22} e Ar^{38} resulta de uma emissão espontânea de tais isótopos pelo U^{238} durante o tempo geológico; e considerando que a idade dos minerais analisados é cerca de 10 vezes menor que a meia-vida de desintegração alfa do U^{238} , a meia-vida dos diferentes modos de emissão pode ser estimada de acordo com

$$T_{1/2}[\text{ano}] \approx 6,5 \times 10^{14} \frac{C_U t}{\Delta V}, \quad (2.1.1)$$

onde C_U é o conteúdo percentual de urânio na amostra, t é a idade do mineral (em milhões de anos) e ΔV é o excesso, em relação a seu conteúdo na atmosfera, do isótopo de gás raro observado (em unidades de $10^{-9} \text{ cm}^3/\text{g}$).

Na Tab. 2.1.1 estão reunidos os dados referentes às amostras estudadas por Wetherill⁽¹⁵⁾ e Sharif-Zade⁽¹⁷⁾. A conclusão é que as meias-vidas estimadas pelo mecanismo acima descrito são consistentes, dentro dos limites dos erros envolvidos, com a frequência e o comprimento dos traços mais curtos observados nas chapas de emulsão nuclear. A compatibilidade entre a observação em emulsão de íons de carga $10 \leq Z \leq 18$ e o excesso de isótopos de neônio e argônio encontrado nos minerais radioativos (e também nos gases naturais que contêm muito hélio) é uma forte evidência de que muito provavelmente Ne^{21} , Ne^{22} e

TABELA 2.1.1 - Meias-vidas estimadas para a produção de isótopos de gases raros em excesso observados em minerais que contêm urânio (*)

Amostra	Idade t [10 ⁶ ano]	Conteúdo de Urânio [%]	Excesso de Gás ΔV [10 ⁻⁹ cm ³ /g.]	Isó- topo	Meia-Vida T _{1/2} [ano]
Samarskite ^(a)	330	5,48	47	Ne ²¹	2,5×10 ¹⁶
			400	Ne ²²	3,0×10 ¹⁵
Betafite ^(a)	293	9,39	125	Ne ²¹	1,4×10 ¹⁶
			2700	Ne ²²	6,5×10 ¹⁴
Hatchettolite ^(a)	293	2,39	57	Ne ²¹	8,0×10 ¹⁵
			2500	Ne ²²	2,0×10 ¹⁴
Pitchblende ^(a)	230	69	2130	Ne ²¹	4,8×10 ¹⁵
			4700	Ne ²²	2,2×10 ¹⁵
Pitchblende ^(a)	230	18,8	1270	Ne ²¹	2,2×10 ¹⁵
			1000	Ne ²²	2,8×10 ¹⁵
Monazite ^(a)	1950	0,146	732	Ne ²¹	2,5×10 ¹⁴
			440	Ne ²²	4,2×10 ¹⁴
Pitchblende ^(b)	215	44	136	Ne ²¹	4,5×10 ¹⁶
	650				1,4×10 ¹⁷
Monazite ^(b)	460	0,2	8,7	Ne ²¹	7,0×10 ¹⁵
Euxenite ^(b)	60	6	8	Ne ²¹	2,9×10 ¹⁶
	600				2,9×10 ¹⁷
Pitchblende ^(b)	215	44	20	Ar ³⁸	3,0×10 ¹⁷
	650				0,9×10 ¹⁸
Euxenite ^(b)	60	6	0,095	Ar ³⁸	2,5×10 ¹⁸
	600				2,5×10 ¹⁹
Monazite ^(b)	535	0,3	0,6	Ar ³⁸	1,7×10 ¹⁷

(*) As meias-vidas relacionadas nesta tabela foram calculadas na hipótese de que o excesso de isótopos de gases raros origina-se de uma emissão espontânea do U²³⁸ (eq.(2.1.1)).

(^a) Dados experimentais segundo Sharif-Zade e colaboradores (17).

(^b) Dados experimentais segundo Wetherill (15).

Ar^{38} são o resultado de um mecanismo de emissão espontânea de íons de massa intermediária a partir do U^{238} (e possivelmente também do Th^{232}).

2.2 - Emissão de Íons Pesados pelo U^{238} Induzida por Fótons de Baixa Energia

A primeira observação de traços mais curtos em emulsão atribuíveis a fragmentos nucleares de massa inferior a de fragmentos de fissão nos levou a reexaminar antigas chapas que tinham sido carregadas com urânio e utilizadas em experiências de fotofissão à baixa energia⁽⁴⁾. Foram observadas sistematicamente distribuições de alcance com o mesmo pico relacionado a traços de menor comprimento que os traços de fragmentos de fissão (ver Fig. 2.2.1-a). Esta observação nos pareceu indicar também uma possível emissão de íons pesados pelo urânio induzida por fótons de baixa energia. Para obter uma confirmação de um tal processo, fomos levados a conduzir uma série de experiências que passamos a descrever, como também os resultados obtidos.

Emulsões nucleares carregadas com urânio foram expostas a feixes de fótons de baixa energia obtidos no reator "Saphir" do EIR (Würenlingen, Suíça). Os alvos de emulsão foram preparados de acordo com a técnica usual como descrita anteriormente⁽¹⁰⁾. Os feixes de fótons monoenergéticos de 8,86 MeV foram produzidos de reações de captura de neutrons por um alvo de níquel colocado próximo ao caroço do reator de tal modo a se obter feixes colimados e de grande intensidade⁽¹¹⁾. As chapas assim irradiadas foram submetidas à mesma técnica de revelação an

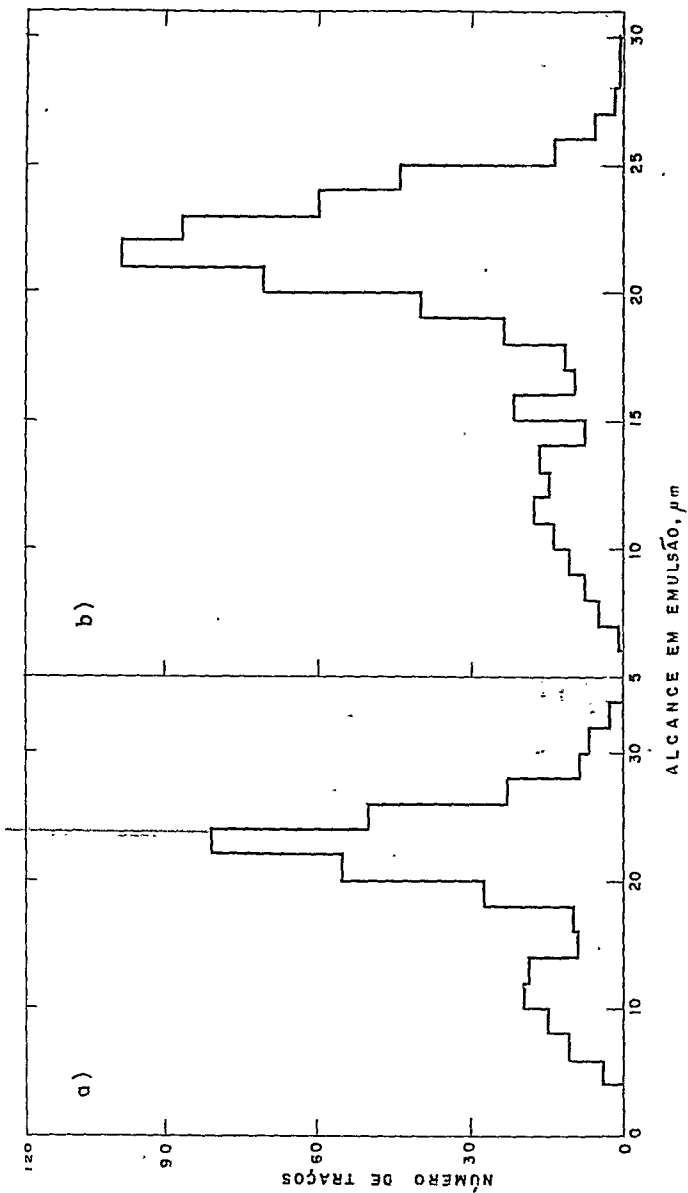


FIGURA 2.2.1.1 - Distribuição de alcance em emulsão de fragmentos da fissão do U^{238} induzida por fótons de 8,86MeV. a) resultado obtido em experiências anteriores (Ref. (4)); b) resultado de experiências recentes como descrito no texto (emulsões carregadas com $\sim 10^{19}$ átomos de U/cm^2 expostas à dose total de 10^{11} fótons/cm²).

teriormente usada nas experiências de fissão espontânea do urânio⁽⁸⁾. Desse modo, foram observados traços bem legíveis de fragmentos nucleares pesados, ao mesmo tempo que nem partículas alfa nem elétrons foram revelados. O trabalho ao microscópio (aumento total de 1300X) consistiu em tomar as medidas de todos os traços observados numa determinada área. Os alcances calculados resultam ser de melhor precisão quando se consideram apenas os traços de pequenos ângulos de profundidade. Nestas condições, a distribuição de alcance obtida é a mostrada na Fig. 2.2.1-b. Além do pico mais pronunciado em torno a 22 μ m correspondente aos traços de fragmentos de fissão, são observados novamente traços mais curtos cujos comprimentos estão compreendidos entre 6 e 16 μ m. Se não levarmos em conta alguma possível distribuição angular, a percentagem dos traços mais curtos atinge, em média, a 30% do número total de traços medidos, o que corresponde aproximadamente à uma seção de choque total de (10 ± 3) mb para a produção de íons pesados pelo U^{238} induzida por fótons de 8,86 MeV:

Resultado semelhante seria obtido numa experiência que permitisse individualizar os fragmentos emitidos a partir de uma origem comum. Numa experiência desta natureza, os eventos de fissão seriam claramente diferenciados da emissão de um único fragmento pela observação dos dois traços colineares que resultam do movimento dos fragmentos de fissão em direções opostas. Para este propósito, a técnica de sandwiche de mica é perfeitamente adequada⁽⁵⁶⁾. Com este procedimento, um evento devido à fissão binária é visualizado como uma coincidência especial de traços emparelhados, um em cada uma das superfícies adjacentes das micas.

Folhas de mica muscovita sem impurezas ($4\text{cm} \times 4\text{cm} \times 0,01\text{ cm}$) foram selecionadas e pré-atacadas em ácido fluorídrico a 49% durante 3 horas à temperatura ambiente com a finalidade de revelar os traços fósseis com forma losangular bem larga de tal modo a distinguí-los posteriormente dos traços produzidos após irradiação (a densidade de traços fósseis foi cerca de $380/\text{cm}^2$). Para fazer um sandwiche, uma das folhas de mica foi recoberta numa das superfícies com uma finíssima camada de óxido de urânio ($\sim 20\ \mu\text{g U}/\text{cm}^2$) mediante a técnica de preparação de filmes com soluções de colódio como descrita por Yagoda⁽⁵⁷⁾. Este método fornece filmes finos de urânio bastante uniformes e ao mesmo tempo, durante o prolongado estágio de aquecimento a aproximadamente 600°C , produz "fading" total de qualquer traço latente no interior da mica. Além disso, a espessura do filme é tal que efeitos de auto-absorção de fragmentos nucleares podem ser considerados desprezíveis. Uma outra folha de mica é mantida firmemente em contato com a primeira mediante encapsulamento a vácuo do conjunto com plástico transparente de 1 mm de espessura selável a quente. Para garantir um perfeito alinhamento dos traços após a revelação, as folhas de mica foram previamente presas uma à outra com um par de grampos junto a um dos bordos.

Um conjunto de seis sandwiches assim preparado foi exposto ortogonalmente a um fluxo intenso de raios gama monoenergéticos de 8,86 MeV (dose total de 10^{12} fótons/ cm^2) obtido por reações (n, γ) num alvo de níquel no reator "Saphir". Após a irradiação, as folhas de mica foram ligeiramente separadas e parcialmente imersas numa solução diluída de ácido nítrico com a finalidade de remover a camada de óxido de urânio. A revelação dos tra-

ços procedeu de forma usual com ácido fluorídrico a 49% e à temperatura ambiente durante intervalos de tempo diferentes variando de 12 a 50 min. A análise dos traços ao microscópio foi feita por dois observadores utilizando ampliação ótica total de 400X. Nas condições da presente experiência, a densidade de traços foi suficientemente baixa para não permitir a possibilidade de superposição de traços originados de eventos diferentes. Colinearidade, igual ângulo de profundidade e localização em cada folha de mica, foram os critérios adotados para identificação de pares de traços de fragmentos de fissão binária.

Além da grande população de traços emparelhados (cerca de $10^4/\text{cm}^2$), foram também observados traços desemparelhados. Da análise dos resultados como apresentados na Tab. 2.2.1, concluímos que os traços desemparelhados podem ter sua origem em um mecanismo de emissão de um único fragmento nuclear por parte do U^{238} foto-excitado. A menor percentagem de traços desemparelhados (4-10%) quando comparada à frequência de traços de menor comprimento observada em emulsões carregadas com urânio ($\sim 30\%$) pode ser explicada por uma série de causas. Primeiro, a mica tem um limiar de detecção de partículas carregadas que está acima do limiar de detecção oferecido pela técnica de emulsão nuclear, como discutido na Seção 1.3.2.1. Assim, íons com número de massa menor que ~ 30 não seriam registrados⁽⁵⁸⁾. A variação da eficiência de detecção de praticamente 0 a 100% na "faixa" de ionização limiar (12 a 14 $\text{MeV}\cdot\text{cm}^2/\text{mg}$) de partículas carregadas em mica é que contribui para o aparecimento de um pequeno número de traços desemparelhados. Para ionização superior a 15 $\text{MeV}\cdot\text{cm}^2/\text{mg}$, o que corresponde a aproximadamente íons de cloro de 55-60 MeV, ambos

TABELA 2.2.1 - Número de traços emparelhados (coincidentes) e desemparelhados (isglados) observados em sanduiches de mica de filmes finos de urânio ($\sim 20 \mu\text{g U/cm}^2$) expostos a um fluxo intenso de fótons monoenergéticos de 8,86 MeV.

Sand. Nº	Tempo de Ataque (*) (min)	Área de Observação (mm ²)	Número total de traços emparelhados (**)	
			Observador 1	Observador 2
8	12	9	852 (99%)	816 (97%)
2	12	8	952 (100%)	948 (99%)
2	42	8	979 (100%)	978 (100%)
1	30	10	975 (100%)	970 (99%)
3	15	10	822 (100%)	803 (98%)
3	30	10	1024 (99%)	1034 (100%)
4	50	10	1117 (100%)	1105 (99%)
5	12	8	1109 (98%)	1130 (100%)
5	30	8	1221 (100%)	1195 (98%)

Sand. Nº	Número de traços desemparelhados					
	Sobre a superfície da mica sem filme de U		Sobre a superfície da mica com filme de U		Total	
	Obs. 1	Obs. 2	Obs. 1	Obs. 2	Obs. 1	Obs. 2
8	29	23	18	-12	47(98%)	35(73%)
2	13	10	35	29	48(100%)	39(81%)
2	12	11	43	41	55(100%)	52(95%)
1	31	30	21	20	52(100%)	50(96%)
3	37	33	6	6	43(94%)	39(75%)
3	30	36	8	8	38(86%)	44(100%)
4	65	70	51	51	116(95%)	121(99%)
5	56	64	5	6	61(87%)	70(100%)
5	56	54	1	1	57(100%)	55(97%)

(*) Ataque em ácido fluorídrico 49% à temperatura ambiente.

(**) As porcentagens entre parêntesis são as eficiências de observação individuais.

os fragmentos serão registrados (traços emparelhados) havendo, no entanto, uma probabilidade do núcleo de recuo ($A \lesssim 200$) não vir a ser revelado por possuir ionização ainda situada na faixa de ionização limiar. Em segundo lugar, a eficiência de detecção de sandwiches de mica, à causa do ângulo crítico de incidência e da geometria do traço, é ligeiramente menor que a de emulsões carregadas pois, neste caso, os fragmentos são registrados em todo o volume.

Concluindo este parágrafo, queremos enfatizar que os resultados de ambas as experiências acima descritas são indicativos de evidências físicas da emissão de íons de massa intermediária por núcleos de U^{238} excitados por fótons de 8,86 MeV.

2.3 - Alta Assimetria de Massa na Fissão do U^{238} Induzida por Neutrons Rápidos

Nos últimos oito anos, um grupo de radioquímicos do "Bhabha Atomic Research Centre" (Bombaim, Índia) vem investigando rendimentos de produtos de fissão para cadeias de massa com $A < 70$ e $A > 160$. No caso da fissão do U^{238} por neutrons de reator ($E \geq 1$ MeV), foram acumulados uma série de resultados experimentais para os rendimentos correspondentes aos números de massa $65 < A < 78$ de um lado, e $160 < A < 200$ de outro (31,32) (*). A grande quantidade de dados acumulados nestas experiências, permitiu obter a distribuição de massa a qual mostrou claramente, e pela primeira vez, "ombros" na região de alta assimetria de mas-

(*) R.H. Iyer, Comunicação Particular a H.G. de Carvalho (1978).

sa (ver Fig. 2.3.1). As linhas contínuas representam uma extrapolação da função gaussiana

$$Y(\%) = \frac{F}{\sigma\sqrt{2\pi}} e^{-(A-\bar{A})^2/2\sigma^2} \quad (2.3.1)$$

ajustada à distribuição de massa da fissão construída com os rendimentos dos produtos de $A \geq 70$ e $A \leq 160$ disponíveis na literatura. O melhor ajuste foi obtido para $\sigma = 7,3$ e $\bar{A} = 118,18$, admitindo-se um número de neutrons prontos emitidos na fissão igual a 2,64 (F é um fator de normalização). A parte tracejada foi traçada obedecendo os novos pontos experimentais. Observa-se que os rendimentos em torno aos números de massa 66-67 do lado "leve" e 172-177 do lado "pesado" são cerca de 2 a 4 ordens de grandeza maiores que as calculadas admitindo a distribuição gaussiana de massa dada pela Eq. 2.3.1. Observa-se que a tendência dos rendimentos em aumentar, particularmente no lado "pesado" onde existe um maior número de dados, não continua acima de $A = 177$, como se torna evidente pelos limites superiores para os rendimentos do Lu^{179} , Ta^{185} e Au^{199} . Assim, um exame das caudas da curva de massa mostra primeiro um decréscimo suave, depois um ligeiro aumento nas regiões de $A \sim 66-67$ e $A \sim 172-177$ e, novamente, uma tendência a decrescer. Esta observação é que levou Rao e colaboradores (31,32) a admitirem a existência de "ombros" na curva de distribuição de massa.

Estes resultados têm sido interpretados em termos de cálculos baseados no potencial de fragmentação recentemente apresentados por Săndulescu e colaboradores (34,35) (*) (veja Capítulo

(*) A. Săndulescu e W. Greiner, Comunicação Particular a H. G. de Carvalho (1978).

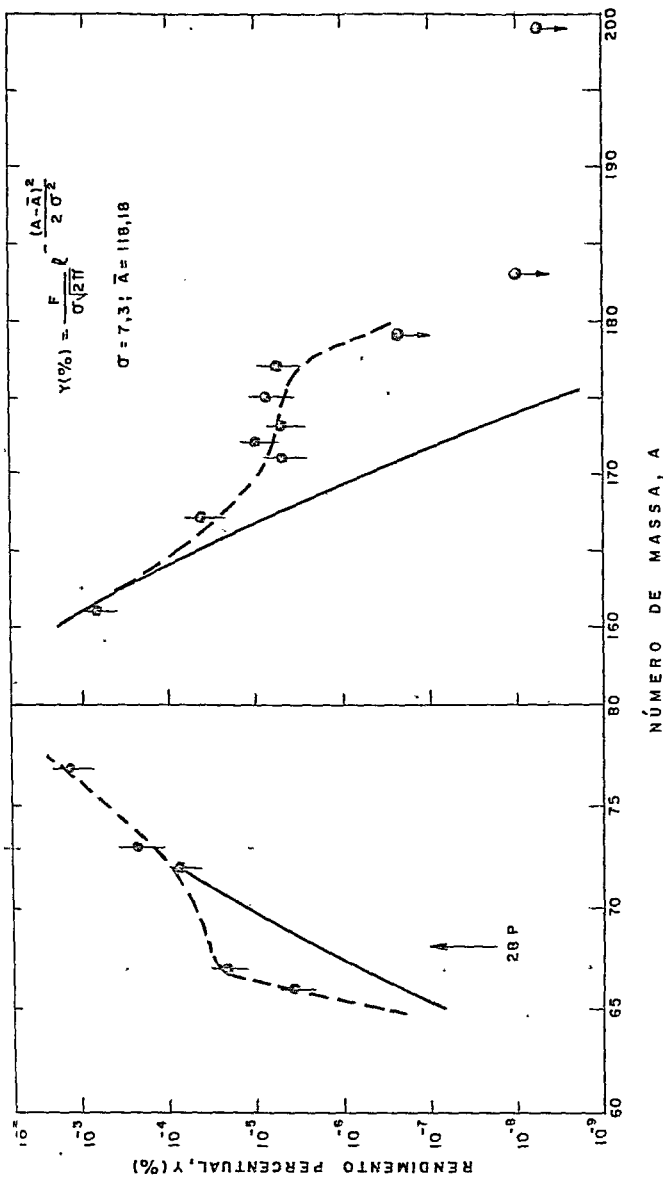


FIGURA 2.3.1 - Partes da distribuição de massa nas regiões de alta assimetria para a fissão do U^{238} induzida por neutrons de reator. As linhas contínuas são extrapolações a partir de uma distribuição gaussiana como especificado; as linhas tracejadas são traçadas obedecendo os pontos experimentais (reproduzido de Rao e colaboradores (Ref. (32))).

IV). A presença desses novos "ombros" na região de alta assimetria de massa na fissão do U^{238} por neutrons rápidos foi atribuída por Rao e colaboradores⁽³²⁾ à ocorrência de um novo vale de energia potencial devido à influência do efeito da camada de 28 prótons. As previsões teóricas de Săndulescu e colaboradores⁽³⁵⁾ fornecem, no entanto, apenas as posições dos "ombros radioquímicos" e não suas intensidades, as quais diferem das estimativas por várias ordens de grandeza. Segundo estes autores, este fato é provavelmente devido a que os dados obtidos pelos radioquímicos para a construção da distribuição de massa da fissão do U^{238} por neutrons de reator contêm tanto a primeira como a segunda chance de fissão, e que somente a segunda chance de fissão, a qual ocorre em energias de excitação muito baixas, está contribuindo para o aparecimento dos "ombros". Este não é o caso, por exemplo, da distribuição de massa da primeira chance de fissão do Np^{236} com baixa energia de excitação ($\sim 4,5$ MeV) obtida muito recentemente por Epperson⁽³³⁾ (veja Fig. 2.3.2). Os dados experimentais de Epperson mostram também claramente uma evidência preliminar de um favorecimento de rendimentos de produtos de fissão na região de massa em torno a $A \approx 78$.

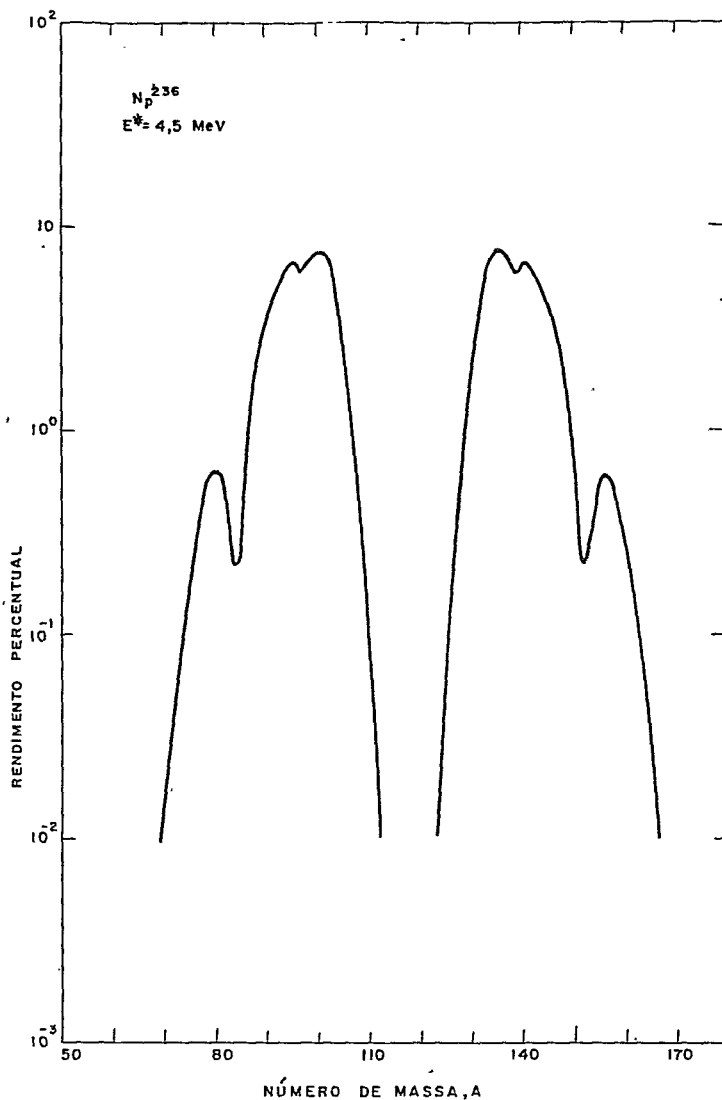


FIGURA 2.3.2 - Distribuição de massa da fissão do Np^{236} com energia de excitação de 4,5 MeV obtida experimentalmente por Epperson (Ref. (33))(reproduzido de Săndulescu e colaboradores (Ref. (35))).

CAPÍTULO III

RESULTADOS OBTIDOS UTILIZANDO VIDRO COMO DETECTOR DE PARTÍCULAS CARREGADAS

3.1 - Vidros Artificiais de Urânio

Uma nova classe de detectores "*visuais*" para o registro de partículas carregadas vem sendo largamente utilizada durante os últimos 15 anos, com aplicações as mais variadas em Física Nuclear, Geocronologia, Arqueologia, Astrofísica, Materiais Extra-terrestres, Dosimetria de Radiações e em muitos outros ramos da Ciência e Tecnologia ⁽⁵⁹⁾. Nesta categoria de detectores, conhecidos como "*detectores sólidos de traços*" (*Solid State Nuclear Track Detectors - SSNTD*), incluem-se os vidros em geral, tanto os naturais como os artificiais.

O mecanismo de registro de partículas carregadas em sólidos inorgânicos amorfos e não condutores, como os vidros, é basicamente o seguinte. Partículas carregadas quando atravessam o material alteram localmente a sua estrutura, seja por ionização ou por colisões atômicas, deslocando os átomos de suas posições próprias ao longo da trajetória da partícula ⁽⁶⁰⁾. Posteriormente, essas regiões "*daniñicadas*" por efeito da radiação, podem ser convenientemente ampliadas (no caso dos vidros por ataque com ácido fluorídrico em condições apropriadas) de tal forma a tornarem-se visíveis ao microscópio ótico ⁽⁶¹⁾. Os traços assim "*revelados*"

se apresentam sob a forma de cones que, a depender das características da partícula (carga, massa e energia), das condições de ataque químico (concentração da solução, temperatura e tempo de ataque) e a da geometria de irradiação, podem tomar formas as mais variadas. As medidas de diâmetro da base (no caso de incidência normal à superfície do vidro), ângulo do cone e outras grandezas geométricas do "traço" podem ser relacionadas às propriedades nucleares da partícula detetada⁽⁶²⁻⁶⁷⁾.

Com o aprimoramento desta técnica de detecção, tem-se mostrado que, em certas condições experimentais, os vidros se revelaram excelentes detetores de íons de massa intermediária (principalmente fragmentos de fissão), competindo mesmo, tanto em eficiência quanto em resolução, com os bem conhecidos detetores de barreira de superfície⁽⁶⁷⁾.

Recentemente, Thiel e Herr⁽²²⁾ utilizaram vidros artificiais de urânio, que haviam sido preparados nos meados do século passado (a data da fusão dos vidros foi considerada 1844 ± 5), para uma redeterminação da constante de desintegração do U^{238} por fissão espontânea. Irradiando algumas amostras com intensos fluxos de nêutrons térmicos, foi possível estimar em 0,3% o teor de urânio nos vidros, o que corresponde a um acúmulo de traços de fragmentos da fissão espontânea do U^{238} da ordem de $220/\text{cm}^2$ durante 126 anos.

Nesses vidros de urânio analisados por Thiele Herr⁽²²⁾, observa-se também dois picos nas distribuições de diâmetro dos traços, muito semelhantes aos picos observados nas distribuições de alcance de traços obtidos pelo método de registro de fragmentos em emulsões nucleares carregadas com urânio (ver Fig.3.1.1).

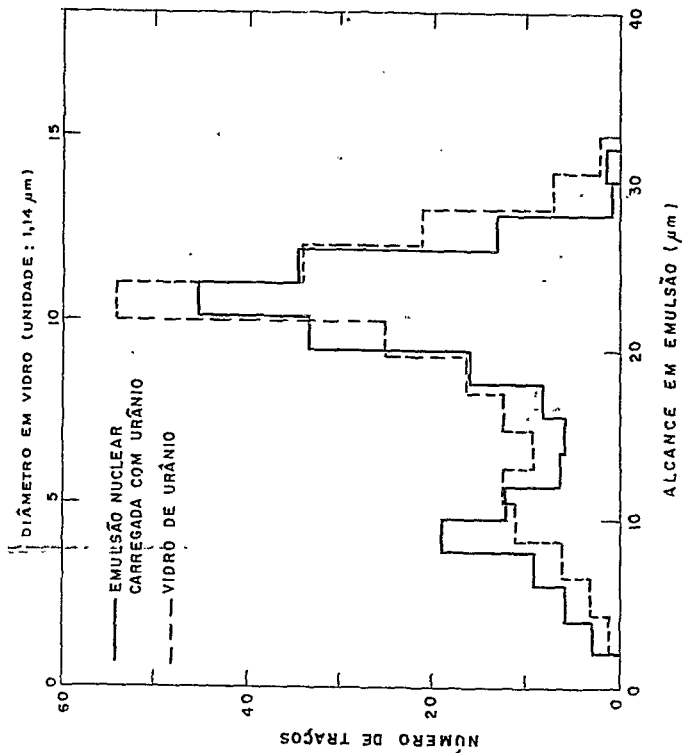


FIGURA 3.1.1 - Comparação entre distribuições de diâmetro em vidro (escala superior, Ref. (22)) e alcance em emulsão (escala inferior, Refs. (12) e (13)) obtidas em experiências de fissão espontânea do U238. Os histogramas foram construídos de tal modo que a origem e a abscissa dos picos mais proeminentes coincidissem. Ambos os histogramas estão normalizados ao mesmo número de eventos.

Um estudo do efeito de "annealing" sobre o diâmetro dos traços foi conduzido minuciosamente, e a conclusão chegada por Thiel e Herr foi a de que os vidros de urânio nunca tinham sido aquecidos acima de 50 °C por um longo período de tempo. Consequentemente, nenhuma correção devido a "fading" de origem térmica (o que acarretaria numa diminuição dos diâmetros dos traços) teve de ser aplicada.

A despeito das regiões de densidade linear de defeitos (traço latente) criadas pela passagem dos fragmentos possam existir em diferentes faces internas do vidro, é possível que os diâmetros mais curtos observados sejam o resultado de uma emissão espontânea pelo U^{238} de íons de massa inferior a 40. De fato, trabalhos experimentais de identificação de traços de partículas carregadas em vidro ^(63,64,67) tem mostrado que, em condições fixas de revelação, os diâmetros dos traços diminuem com o decréscimo de massa e energia das partículas. Embora os vidros artificiais de urânio possam ter propriedades de registro de partículas carregadas ligeiramente diferentes dos vidros que comumente se usam em laboratório (vidros soda-lime), os diâmetros menores observados por Thiel e Herr ⁽²²⁾ (2-8 μ m) podem indicar também tratar-se de um mecanismo nuclear de emissão espontânea de íons pelo U^{238} , porém de massa inferior aos fragmentos da fissão ordinária.

3.2 - Análise de Traços de Fragmentos Nucleares em Vidro

No decorrer dos meses de junho e julho de 1962, foram preparados, no Instituto de Química Geral e Inorgânica da Uni -

versidade de Roma, filmes finos de urânio sobre lâminas de vidro comum^(*) (composição aproximada à do vidro soda-líme). Esses filmes seriam usados em experiências de distribuição angular na fotofissão do U^{238} a baixa energia, mediante a técnica de sanduíches com placas de emulsão nuclear, como parte de um intenso programa de colaboração entre aquela Universidade e o Centro Brasileiro de Pesquisas Físicas. No entanto, tais experiências não foram levadas a efeito e, decorridos 16 anos, esses filmes de urânio sobre vidro foram então utilizados em nosso laboratório para uma redeterminação da meia-vida de fissão espontânea do U^{238} pela análise de traços registrados no vidro. As boas condições de preparação e armazenamento dos filmes (ausência de reticulados; grande estabilidade, uniformidade e perfeita aderência do óxido de urânio ao vidro; não ocorrência da "fading" de origem térmica), acrescidas de uma exposição total cerca de 1000 mg.d de U/cm^2 (o que equivale, no vidro, a um total de aproximadamente 250 traços de fragmentos de fissão/ cm^2) nos permitiram obter um resultado para a meia-vida com um erro máximo de 15%. Nos parágrafos que se seguem discutiremos os resultados de tais experiências.

3.2.1 - Preparação dos Filmes de Urânio

Películas finíssimas (espessura $\leq 0,5\mu m$) de óxidos de urânio, tório, lantanídeos e outros actinídeos, podem ser obtidas com forte aderência sobre lâminas de vidro, mica e outros

(*) F.Salvetti, Comunicação Particular a H.G. de Carvalho (1962).

materiais, por métodos químicos de deposição como o descrito por Yagoda (57). No caso dos filmes de urânio utilizados na presente experiência, partiu-se de uma quantidade de óxido de urânio puro o qual foi convertido em nitrato de uranila e dissolvido com igual massa de colódio em uma solução de volumes iguais de álcool e éter, de tal modo a se obter uma solução final de aproximadamente 1% de urânio. Um volume da solução foi derramado no centro de uma lâmina de vidro (8cm x 15 cm) mantida horizontalmente por flutuação num banho de mercúrio e, em seguida, os solventes foram evaporados lentamente pelo ajuste da distância ao vidro de uma lâmpada de infra-vermelho. Esse procedimento permitiu obter uma camada bastante uniforme de nitrato-nitrocelulose de uranila (a solução de colódio inibe migrações acentuadas do nitrato de uranila em direção aos bordos da lâmina de vidro). Após completa secagem, a placa de vidro foi colocada horizontalmente num forno inicialmente frio e a temperatura foi gradualmente elevada até cerca de 600 °C, permanecendo assim o tempo suficiente (algumas horas) para a formação do óxido de urânio (a dureza do vidro utilizado foi suficiente para não alterar sua forma plana). O colódio é um composto particular de nitrato de celulose que, quando aquecido, não calcina com violência explosiva e nem deixa cinzas. Finalmente, após lento esfriamento, obteve-se um filme fino de urânio, uniforme e sem reticulados, cuja coloração amarelada era indicativa da formação do tri-óxido de urânio (UO₃).

3.2.2 - Determinação da Densidade Superficial de Urânio no Vidro

3.2.2 - Determinação da Densidade Superficial de Urânio no Vidro

O método utilizado para a determinação da quantidade de urânio depositado no vidro por unidade de área consistiu em medir a atividade alfa total, mediante contagem de traços de partículas alfa emitidas pelos isótopos do urânio detetadas numa placa de emulsão nuclear. Duas amostras de 2,5 cm × 6,5 cm foram selecionadas de uma mesma lâmina de vidro para as medidas definitivas e as restantes foram utilizadas numa série de testes preliminares com o objetivo de garantir êxito na sequência de operações que o método exige (tempo de exposição adequado que permitisse alta densidade de traços ao mesmo tempo que rapidez e conforto nas medidas ao microscópio; procura das melhores condições de revelação que evitassem distorções dos traços, etc).

Paralelamente, o método da simples pesagem foi também utilizado numa determinação aproximada do conteúdo de urânio nas amostras, com a finalidade de se estudar previamente o efeito de uma possível atenuação em energia das partículas alfa no próprio filme de urânio e, ao mesmo tempo, confrontar os resultados com aqueles obtidos pela técnica de contagem de traços em emulsão.

O filme de urânio (UO_3) foi removido da superfície do vidro mediante uma solução de ácido nítrico a 10% à temperatura de 60 °C. Testes preliminares mostraram que ~ 30 min foram suficientes para retirar completamente a camada de urânio. Sendo ΔM (expressa em gramas) a massa de UO_3 removida e S a área da superfície do vidro, o número de átomos de urânio por unidade de área, N , vem dado por:

$$N = \frac{N_0 \Delta M}{M_0 S} = 2,1 \times 10^{21} \frac{\Delta M}{S} , \quad (3.2.2.1)$$

onde N_0 é o número de Avogadro e M_0 é uma molécula-gramo de tri-óxido de urânio. A medida de ΔM foi feita com uma microbalança. Como as lâminas de vidro possuíam espessura uniforme e faces laterais planas e paralelas, o método de Arquimedes foi perfeitamente adequado para a determinação da área S . Assim,

$$S = \frac{m_i - m_f}{e_L \rho_\ell} , \quad (3.2.2.2)$$

sendo m_i a massa do vidro no ar, m_f a massa quando imerso num líquido de densidade ρ_ℓ e e_L a espessura da lâmina. O líquido utilizado foi a água, cuja densidade foi medida com um densímetro correto a 0,1%; as massas foram determinadas com uma balança analítica e a espessura por meio de um micrômetro com incerteza máxima de 2 μ m. O fio de sustentação do vidro contribuiu com uma parcela de apenas -0,2% na determinação da área do vidro. Finalmente, a espessura do filme de urânio pôde ser também determinada mediante

$$e_U = \frac{\Delta M}{S} p_U , \quad (3.2.2.3)$$

onde p_U é o conteúdo de urânio no UO_3 . Os resultados das medidas podem ser vistos nas Tabs. 3.2.2.1 e 3.2.2.2. A diferença nas espessuras obtidas para as duas amostras (cerca de 10%) pode ser atribuída à propagação de erros sistemáticos nas medidas. De qualquer maneira, filmes de urânio tão finos como os do presente trabalho, permitem uma melhor determinação de suas espessuras pela técnica de detecção de partículas alfa em emulsão nuclear.

TABELA 3.2.2.1 - Grandezas relativas à determinação do número de átomos de urânio por centímetro quadrado para duas amostras de filme de urânio sobre lâminas de vidro.

Amostra	Densidade da Água ρ_L [g/cm ³]	Espessura da Lâmina e_L (cm)	Massa do Vidro no Ar m_i [g]	Massa do Vidro na Água m_f [g]
A	1,000	0,1939	7,4493	4,5390
B	0,999	0,1940	7,6232	4,6065

Amostra	Área do Vidro S [cm ²]	Massa de UO ₃ Remo-vida, ΔM [mg]
A	14,99	2,971
B	15,53	3,439

TABELA 3.2.2.2 - Espessura dos filmes de urânio.

Amostra	ESPESURA, e_U		
	Átomos de U/cm ²	mg de U/cm ²	μm (*)
A	$4,17 \times 10^{17}$	0,165	0,27
B	$4,66 \times 10^{17}$	0,184	0,30

(*) A densidade do tri-óxido de urânio é 7,29 g/cm³.

Antes de remover o óxido de urânio da lâmina de vidro, uma placa de emulsão Ilford-L4 (2,5 cm × 7,0 cm × 0,01 cm), de fabricação recente, foi exposta a um dos filmes de urânio (a amostra B foi a escolhida) com geometria 2π durante 430 min. A revelação seguiu o procedimento usual como descrito, por exemplo, por Barkas (68) (uma outra placa de emulsão do mesmo lote e não irradiada foi também revelada para posterior subtração do *background*).

A procura de traços ao microscópio foi feita com oculares de aumento 10X e objetiva 53X, e para uma melhor determinação do alcance das partículas alfa utilizou-se oculares de aumento 25X e objetiva 100X. Uma rede de referência colada à superfície da emulsão permitiu um perfeito controle do "scan" bem como a determinação da eficiência de observação de traços pelo método estatístico da dupla coincidência⁽⁶⁹⁾.

Na procura de traços ao microscópio, as perdas de eventos por parte do observador são maiores tanto para as partículas alfa que penetram na emulsão em ângulos muito razantes ($\leq 10^\circ$) quanto para aquelas que incidem próximo à vertical. Além disso, verifica-se que para ângulos de incidência superiores a aproximadamente 30° , as medidas de alcance ficam sujeitas a maiores incertezas. De outra parte, tratando-se de uma emissão isotrópica de partículas alfa, tanto a resolução quanto a eficiência serão máximas para pequenos ângulos de incidência. Assim, fomos levados a considerar apenas os traços que apresentavam ângulos de profundidade β (medidos a partir da superfície da emulsão) situados entre dois valores β_1 e β_2 escolhidos de tal modo a fornecer a máxima eficiência de observação. Neste caso, o número de átomos de urânio por unidade de área, N , relaciona-se ao número de traços de partículas alfa observado por unidade de área, ρ_α , e que penetraram a superfície da emulsão entre os ângulos de profundidade β_1 e β_2 , da seguinte maneira

$$N = \frac{2\rho_\alpha}{\left[\sum_i \lambda_i C_i \right] t \epsilon_\alpha \left[\text{sen}\beta_1 - \text{sen}\beta_2 \right]}, \quad (3.2.2.4)$$

onde

$$\sum_i \lambda_i C_i = \lambda_{\alpha}^{234} C^{234} + \lambda_{\alpha}^{235} C^{235} + \lambda_{\alpha}^{238} C^{238} = 6 \times 10^{-16} \text{ min}^{-1}$$

(λ_i são as constantes de desintegração alfa dos isótopos naturais do urânio e C_i são as correspondentes concentrações isotópicas), ϵ_{α} é a eficiência de observação, t o tempo de exposição (geometria 2π) e $(\text{sen}\beta_1 - \text{sen}\beta_2)/2$ é a razão entre o ângulo sólido subtendido pelos ângulos β_1 e β_2 e o espaço inteiro.

Como o filme de urânio era suficientemente fino (espessura $\approx 0,3\mu\text{m}$), os efeitos de borda na avaliação da área observada puderam ser considerados desprezíveis, mesmo considerando partículas alfa com ângulos de incidência pequenos. Também, a atenuação em energia nesta situação é pequena. Com efeito, no início de sua trajetória, a perda de energia por ionização de uma partícula alfa no tri-óxido de urânio pode ser descrita com boa aproximação mediante uma expressão do tipo

$$-\frac{dE}{dx} = a - bE \quad , \quad (3.2.2.5)$$

onde $a = 0,249 \text{ MeV}/\mu\text{m}$, $b = 0,0083 \mu\text{m}^{-1}$ e $3,5\text{MeV} \leq E \leq 5,0\text{MeV}$ (esses valores resultam da aplicação da fórmula de Bethe a um meio composto como descrito no Apêndice B e da variação da carga efetiva da partícula alfa com a velocidade de acordo com a Eq.(1.3.2.1.5)). Daí, segue-se que uma partícula alfa após atravessar uma espessura x no óxido de urânio, teria uma energia E dada por

$$E = \frac{a}{b} + (E_0 - \frac{a}{b}) e^{bx} \quad , \quad (3.2.2.6)$$

sendo E_0 a energia inicial. Para partículas α do U^{238} ($E_0 = 4,20\text{MeV}$) e U^{234} ($E_0 = 4,77 \text{ MeV}$) com ângulos de incidência de 10° e proveni

entes da camada mais externa do filme de urânio (que corresponde à situação extrema), teríamos

$$x \approx \frac{0,3\mu\text{m}}{\text{sen } 10^\circ} \approx 1,8 \mu\text{m} \quad (3.2.2.7)$$

o que conduziria pela Eq. (3.2.2,1) ao resultado $E_0 - E \approx 0,5\text{MeV}$. A conclusão final é que haverá apenas uma pequena distorção no espectro de energia (e portanto na distribuição de alcance) das partículas alfa.

Inicialmente, de uma distribuição de β construída com 2572 eventos examinados em $7,88 \text{ mm}^2$ uniformemente distribuídos sobre a superfície da emulsão coberta pelo filme de urânio, verificou-se que a máxima eficiência de observação foi conseguida com 551 traços observados em ângulos de profundidade compreendidos entre 10° e 15° . Com tais eventos, foi construída a distribuição de alcance (ver Fig. 3.2.2.1) da qual foram selecionados 361 ± 10 traços correspondentes às partículas alfa emitidas pelos isótopos do urânio (sabe-se que as flutuações de alcance permitem considerar traços de até $22\mu\text{m}$ como atribuíveis a partículas alfa mais energéticas emitidas pelo isótopo U^{234}). A área de observação foi determinada mediante uma escala adaptada à ocular do microscópio e calibrada com precisão de décimo do micron. Deste modo, obteve-se para ρ_α o valor $(4,58 \pm 0,13) \times 10^3$. A eficiência de observação foi avaliada em 89%. Substituindo estes dados na Eq. (3.2.2.4) obtêm-se, finalmente, $N = (4,68 \pm 0,13) \times 10^{17}$ átomos de urânio por centímetro quadrado, o que corresponde a uma espessura de $(0,185 \pm 0,005) \text{ mg/cm}^2$, que por sua vez equivale a um filme de urânio de espessura $(0,305 \pm 0,015) \mu\text{m}$. Esses resultados estão em excelente acordo com os obtidos pelo método da sim

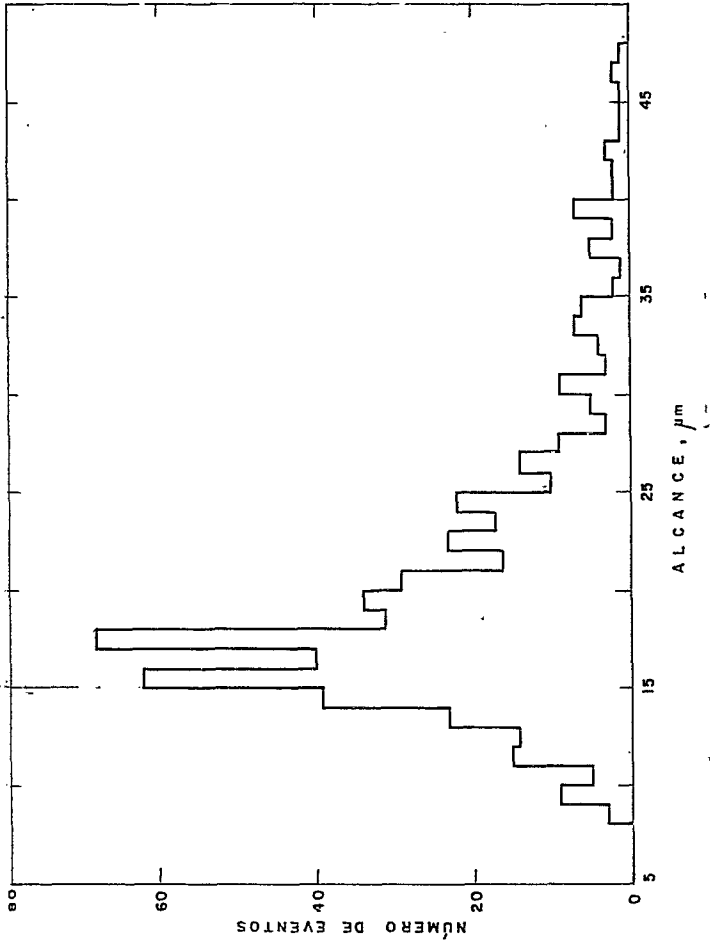


FIGURA 3.2.2.1 - Distribuição de alcance de partículas alfa detetadas em emulsão Ilford-L4 exposta com geometria 2π a um filme de urânio ($\sim 0,3 \mu\text{m}$ de espessura) preparado há 16 anos. São considerados apenas traços com ângulos de profundidade $10^\circ \leq \beta < 15^\circ$. Para detalhes ver texto.

ples pesagem (ver Tab. 3.2.2.2, amostra B).

3.2.3 - Observação de Traços em Vidro

Traços latentes de partículas carregadas (íons pesados e fragmentos de fissão) em vidros comuns podem ser revelados mediante ataque com ácido fluorídrico ⁽⁶¹⁾, de tal modo a se obter as melhores condições de observação ao microscópio ótico (diâmetro dos traços mensurável, forma cônica dos buracos, fácil discriminação contra defeitos espúrios do próprio vidro, etc). As regiões do vidro com densidade linear de "danos" resultantes da ionização produzida pelas partículas carregadas tornam-se mais ativas à ação do solvente do que as regiões não danificadas. Assim, o número de traços revelados, bem como as formas que poderão adquirir, serão o resultado de uma competitividade entre a velocidade de ataque ao longo da trajetória da partícula, v_T , e a velocidade de ataque geral no vidro, v_G . Se ϕ for o ângulo entre a direção de incidência da partícula e a superfície do vidro, somente os traços latentes que satisfizerem à condição $\text{sen}\phi > v_G/v_T$ serão revelados (veja Fig: 3.2.3.1-a). Consequentemente, apenas a fração $1 - \text{sen}\theta$ dos traços que interceptarem isotropicamente a superfície serão revelados, definindo-se θ como o ângulo crítico de revelação, isto é, $\phi_c = \theta$ (veja, por exemplo, Ref. (59)).

Por outro lado, considerações geométricas permitem relacionar as condições de ataque químico com as características do traço, que por sua vez dependem da carga, massa e energia da partícula incidente. Sendo a e b os eixos maior e menor da se

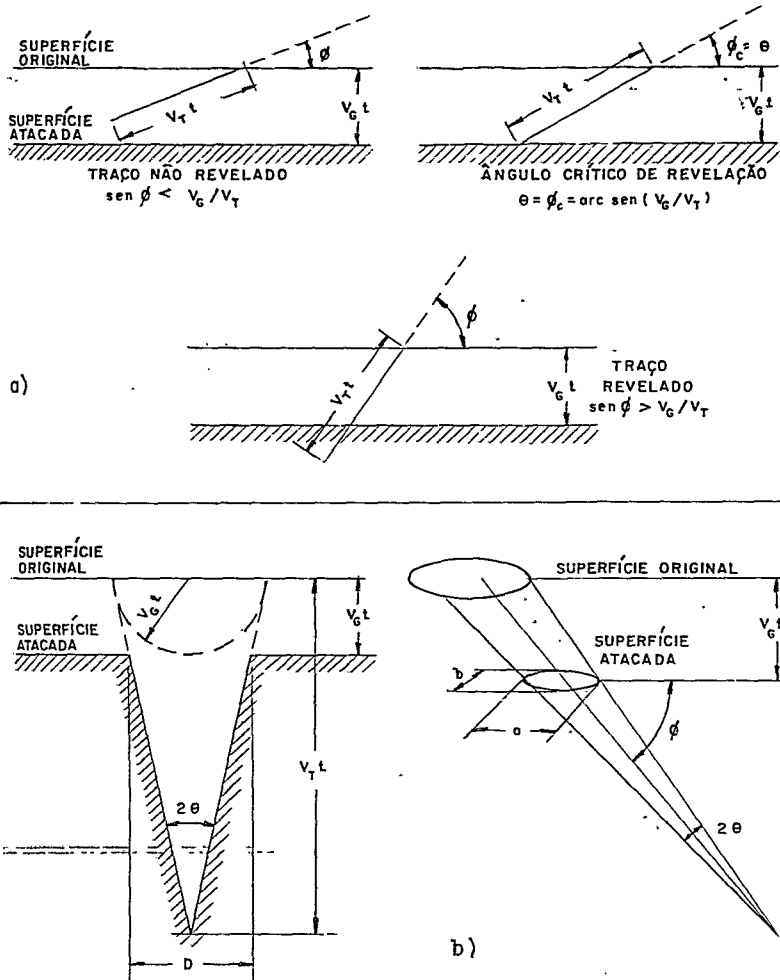


FIGURA 3.2.3.1 - Representação esquemática de detecção de partículas carregadas em vidro. Em a) ilustra-se a geometria de registro de traços; em b) são mostradas as formas geométricas adquiridas pelos traços após a revelação, segundo a incidência da partícula for normal ou oblíqua à superfície (supõe-se v_G e v_T constantes).

ção elíptica apresentada pelos traços após a revelação (Fig. 3.2.3.1-b), para pequenos tempos de ataque químico, t , a superfície do traço evoluirá ⁽⁶²⁾ de acordo com

$$a = 2v_{Gt} \frac{\cos\theta}{\text{sen}\phi + \text{sen}\theta} \quad (3.2.3.1)$$

$$b = 2v_{Gt} \sqrt{\frac{\text{sen}\phi - \text{sen}\theta}{\text{sen}\phi + \text{sen}\theta}} \quad (3.2.3.2)$$

Para incidência normal ($\phi = 90^\circ$) o traço tomará uma forma muito próxima à de um cone reto, cujo diâmetro da base está relacionado ao tempo de ataque mediante

$$D = 2v_{Gt} \sqrt{\frac{1 - \text{sen}\theta}{1 + \text{sen}\theta}} \quad (3.2.3.3)$$

Do ponto de vista experimental, quando se tem um filme fino de urânio cobrindo uma das superfícies do vidro e se deseja estudar a emissão isotrópica de fragmentos nucleares como na fissão espontânea do U^{238} , a probabilidade de incidência de fragmentos próximo à normal à superfície ($\phi \approx 90^\circ$) é muito pequena. No entanto, à medida que a trajetória dos fragmentos se afasta da normal, a probabilidade de incidência aumenta. Porém, para ângulos de incidência ϕ próximos a $\phi_c = \theta$, os traços revelados, que nesta situação se apresentam sob a forma de elipses bem alongadas e pouco profundos, tornam-se de difícil visualização, acarretando em perdas sérias por parte do observador. Além disso, os efeitos de atenuação em energia dos fragmentos de fissão no próprio filme de urânio (que são muito maiores que no caso de partículas alfa) são minimizados quando se consideram fragmentos nu -

cleares com ângulos de incidência próximos a 90° . Mas, neste caso, todos os traços terão forma circular, o que se constitui numa grande vantagem, pois assim um único parâmetro geométrico do traço — o diâmetro, de medida relativamente fácil — responderá pelas características da partícula incidente (carga, massa e energia). Das considerações acima, resulta vantajoso analisar apenas os traços circulares, mesmo que com este procedimento estejamos numa faixa de baixa eficiência de detecção, porém possível de ser determinada experimentalmente. Evidentemente, para um fluxo de partículas carregadas pesadas que incidirem isotropicamente na superfície do vidro, a observação de um maior ou menor número de traços circulares dependerá tanto das condições de revelação quanto da resolução do sistema ótico de observação. Assim, somos levados a definir um ângulo crítico de revelação de traços circulares, ϕ_0 , como sendo o menor ângulo de incidência de partículas carregadas para o qual os traços revelados ainda serão vistos com forma "circular". A eficiência de detecção neste caso será dada por

$$\epsilon_0 = 1 - \text{sen}\phi_0 \quad . \quad (3.2.3.4)$$

As lâminas de vidro utilizadas no presente trabalho foram reveladas com ácido fluorídrico a 4,9% e à temperatura de $(26 \pm 0,5)^\circ\text{C}$. Durante o período de imersão, uma ligeira agitação das lâminas permitiu a remoção contínua dos produtos de reação da superfície, de forma a manter a velocidade de ataque praticamente constante. A revelação foi interrompida com um banho de amônia a 20% por alguns minutos e em seguida as lâminas foram lavadas em água corrente e postas a secar. A evolução dos diâmetros

dos traços com o tempo de ataque foi previamente estudada para um conjunto de diâmetros maiores com a finalidade de se determinar o tempo de revelação correspondente à melhor situação para observação de traços, respeitados os limites de validade da Eq. (3.2.3.3). As variações de espessura com o tempo foram também medidas para subsequente determinação de v_G . Os resultados podem ser vistos na Fig. 3.2.3.2. Nas condições experimentais acima descritas, o tempo de revelação ideal para uma melhor observação dos traços foi de 15 min, e a velocidade geral de ataque do ácido fluorídrico no vidro foi $v_G = 0,965 \mu\text{m}/\text{min}$.

Um método proposto por de Carvalho^(*) permitiu a determinação do ângulo crítico de revelação de traços circulares, ϕ_0 , e conseqüentemente a eficiência de detecção. Esta experiência auxiliar (esquemáticamente mostrada na Fig. 3.2.3.3-a) consistiu em irradiar, no vácuo, uma amostra do mesmo vidro com fragmentos de fissão de uma fonte puntiforme obtida por coleta de uma microquantidade de Cf^{252} na extremidade de uma agulha. Sete horas de irradiação foi o tempo necessário para produzir a densidade superficial de traços ($\approx 10^5/\text{cm}^2$ na região mais próxima à fonte) capaz de garantir uma boa determinação de ϕ_0 . Após a revelação da amostra nas mesmas condições de ataque químico utilizadas nas amostras de vidro que continham urânio, os traços foram observados a um microscópio com resolução ótica de $1,06 \mu\text{m}$ (oculares de aumento 25X e objetiva 40X). Nestas condições, feitos o mapeamento dos traços, foram observadas duas regiões distintas limitadas por circunferências concêntricas (Fig.3.2.3.3-c).

(*)

H.G. de Carvalho, Comunicação Particular (1978).

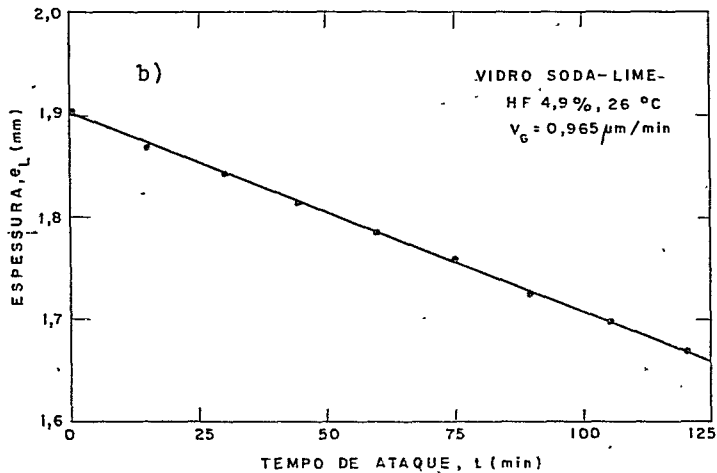
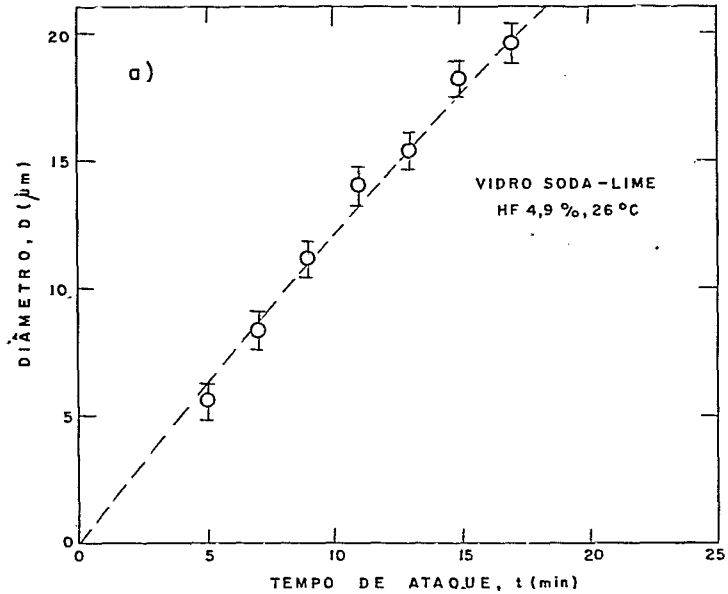


FIGURA 3.2.3.2 - Condições de revelação utilizadas no presente trabalho.

a) variação do diâmetro dos traços, e

b) variação da espessura da lâmina de vidro com o tempo de ataque.

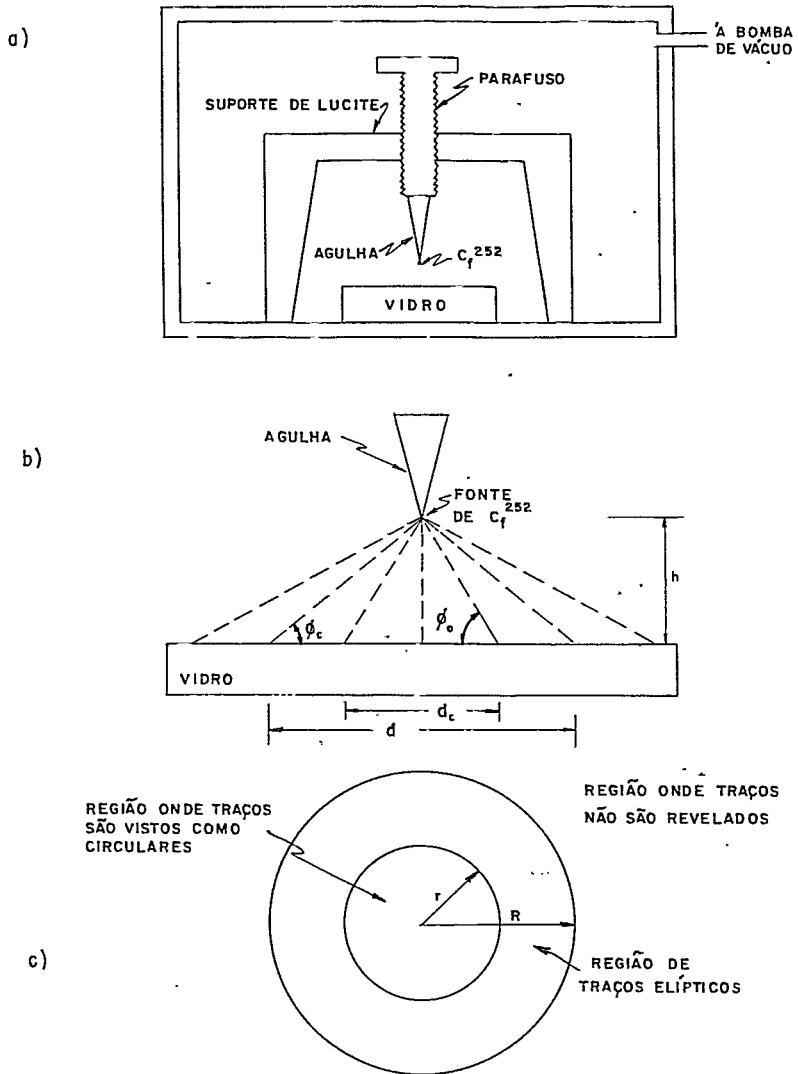


FIGURA 3.2.3.3 - Determinação experimental da eficiência de detecção de traços circulares; a) arranjo experimental; b) ângulos críticos de detecção; c) superfície do vidro onde traços são observados como elípticos e circulares.

A região mais interna, de maior população de traços, contém apenas os traços cuja forma é vista como circular permitida pela resolução ótica, e a outra, com densidade de traços decrescendo radialmente, contém somente os traços elípticos. Medindo-se a distância h da fonte à superfície do vidro e os raios r e R das circunferências é possível determinar os ângulos críticos de revelação de traços mediante as relações

$$\phi_c = \text{arc tg } \frac{h}{R} \quad (3.2.3.5)$$

$$\phi_o = \text{arc tg } \frac{h}{r} .$$

De uma série de medidas de h , r e R , obtivemos os seguintes resultados: $\phi_o = 58^\circ \pm 2^\circ$ e $\phi_c = 33^\circ \pm 1^\circ$. Portanto, a eficiência de detecção referida à observação de traços "circulares", ϵ_o , nas condições experimentais acima especificadas pôde ser considerada igual a $(15,2 \pm 1,8)\%$.

3.2.4 - Fissão Espontânea do U^{238}

Para a determinação da meia-vida de fissão espontânea do U^{238} torna-se necessário obter o número de traços circulares observados por unidade de área. Destes, devem ser subtraídos o "background" e os traços de fragmentos de fissão devido a neutrons da radiação cósmica e a neutrons de laboratório (fonte de Cf^{252} ; reflexão de neutrons rápidos). De N_f eventos de fissão que ocorreram no filme de urânio com N átomos de urânio natural por unidade de área são observados $N_f \epsilon_o$ traços circulares por

unidade de área, sendo ϵ a eficiência de observação. Assim, a densidade total de traços circulares observada será

$$\rho = N_f \epsilon_0 \epsilon + \rho_i \quad (3.2.4.1)$$

onde ρ_i é a densidade de traços circulares devido ao "background". ρ_i é facilmente determinada contando-se os traços circulares na face do vidro que não tinha sido recoberta com urânio; ϵ pôde ser estimada com base no método estatístico da dupla coincidência⁽⁶⁹⁾; N_f é dado pela soma

$$N_f = \lambda_f^{238} NC^{238} t_f + N_R + N_n \quad , \quad (3.2.4.2)$$

onde a primeira parcela representa o número de fissões espontâneas do U^{238} que ocorreram durante o tempo de exposição $t_f^{(*)}$, N_R e N_n são as contribuições devido às fissões induzidas por neutrons da radiação cômica e por neutrons de laboratório, respectivamente, e C^{238} é a concentração isotópica do U^{238} no urânio natural. Combinando as duas equações precedentes, resulta a seguinte fórmula final para a constante de desintegração por fissão-espontânea do U^{238} , λ_f^{238} :

$$\lambda_f^{238} = \frac{1}{NC^{238} t_f} \left[\frac{\rho - \rho_i}{\epsilon \epsilon_0} - (N_R + N_n) \right] \quad (3.2.4.3)$$

Uma estimativa das fissões induzidas nos isótopos U^{234} , U^{235} e U^{238} por neutrons lentos e rápidos da radiação cômica e por

(*) Com os dados disponíveis na literatura, verifica-se que as contribuições do U^{235} e U^{234} à fissão espontânea podem ser consideradas desprezíveis.

neutrons rápidos de laboratório durante o tempo de exposição t_f forneceu os seguintes resultados: $N_T \lesssim 2$ fissões/mg e $N_n \lesssim 100$ fissões/mg; como a espessura do filme de urânio era de $0,185 \text{ mg/cm}^2$, resulta

$$N_T \lesssim 0,4 \text{ fissões/cm}^2 \quad \text{e} \quad N_n \lesssim 18 \text{ fissões/cm}^2. \quad (3.2.4.4)$$

A eficiência de observação foi estimada em 74%; o "background" foi avaliado em 28 traços circulares/ cm^2 e o valor correto do tempo de exposição foi 15,8 anos. Finalmente, em $3,175 \text{ cm}^2$ distribuídos uniformemente pela superfície do vidro foram observados 354 traços circulares, com o que se obteve $\rho = (111 \pm 1)/\text{cm}^2$. Substituindo estes dados na fórmula acima e lembrando que $C^{238} = 99,28\%$, $N = (4,68 \pm 0,13) \times 10^{17}$ átomos/ cm^2 e $\epsilon_0 = (15,2 \pm 1,8)\%$, resulta

$$\lambda_f^{238} = (9,8 \pm 1,6) \times 10^{-17} \text{ ano}^{-1},$$

e que equivale a uma meia-vida

$$T_{1/2} = (7 \pm 1) \times 10^{15} \text{ anos}.$$

Considerando a grande margem de erros inerentes em medidas desta natureza, este resultado é consistente com o valor $(6,0 \pm 0,4) \times 10^{15}$ anos obtido pela técnica de emulsão nuclear (cf. parág. 1.2). Também, um bom acordo é verificado com a mais recente medida da meia-vida de fissão espontânea do U^{238} realizada por Rizzo⁽³⁸⁾, que utilizou um cintilador líquido com U_3O_8 em suspensão, tendo obtido o resultado $(6,77 \pm 0,15) \times 10^{15}$ anos.

A Fig. 3.2.4.1 mostra a distribuição de diâmetro dos

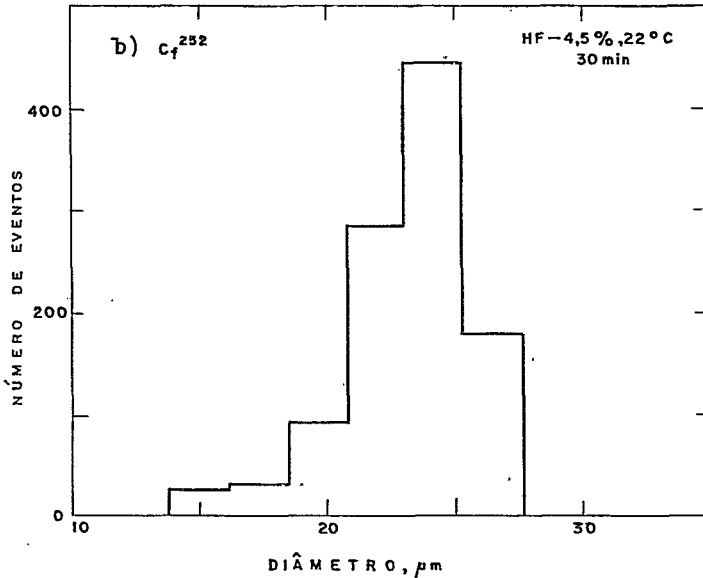
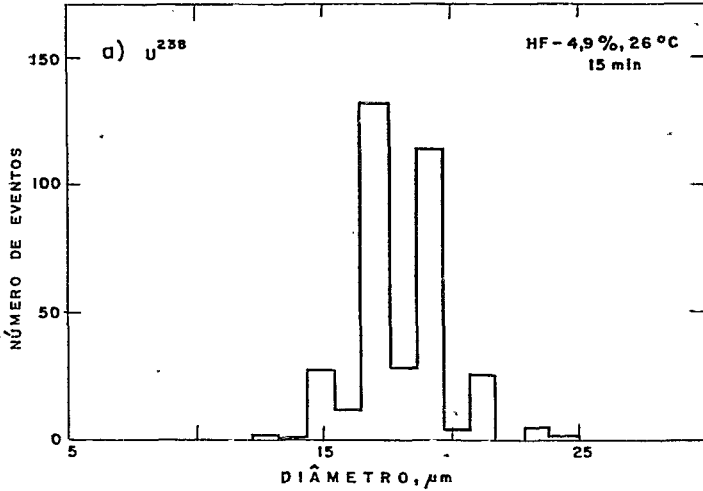


FIGURA 3.2.4.1 - Distribuição de diâmetro de traços de fragmentos de fissão espontânea em vidro soda-lime. a) U^{238} ; b) Cf^{252} . Indicam-se em cada caso as condições de revelação.

traços obtida nas condições da presente experiência. Para comparação é também mostrada a distribuição de diâmetro dos traços de fragmentos da fissão espontânea do Cf^{252} detetados numa amostra de vidro irradiada no vácuo. Neste caso, com estatística consideravelmente melhor, o tempo de revelação foi aumentado com a finalidade de se observar alguma possível estrutura na distribuição de diâmetro dos traços. Nestas condições, verifica-se que a mistura de fragmentos da fissão espontânea do Cf^{252} fornece traços cujos diâmetros se distribuem aproximadamente de forma normal em torno do valor médio $23\mu\text{m}$, o que está de acordo com as medidas de Höppner e colaboradores ⁽⁶⁷⁾ e com os resultados mais recentes de Bellini e colaboradores ⁽⁷⁰⁾. No caso do U^{238} , a baixa estatística nas medidas não nos permite tirar conclusões seguras a partir da distribuição de diâmetro dos traços. Lecerf e Pétter ⁽⁶⁴⁾ estudando experimentalmente a influência da massa e da energia de partículas carregadas sobre o diâmetro dos traços em vidros soda-lime em condições de revelação semelhantes às do presente trabalho, mostraram que íons de níquel $\approx 70 \text{ MeV}$ fornecem diâmetros em torno a $15\mu\text{m}$. Este fato não exclui a possibilidade de que uma parte dos traços com $15\mu\text{m}$ na distribuição de diâmetro correspondente à fissão espontânea do U^{238} possa ser atribuída a fragmentos nucleares de massa inferior à de fragmentos de fissão. Porém, em virtude da baixa estatística de contagem de traços, e principalmente de ser grande a incerteza na eficiência de detecção de traços circulares, a atribuição de, por exemplo, 7% do total dos traços observados a íons de níquel estaria neste caso completamente encoberta pela faixa de erro resultante para a constante de desintegração por fissão espontânea. Para se obter

um resultado concludente, seria necessário examinar uma área pelo menos dez vezes maior, o que por razões várias não foi possível ser feito nesta experiência preliminar.

Concluindo este estudo de traços de partículas carregadas em vidro, é importante salientar que a ionização de fragmentos de número de massa compreendidos entre 20 e 70 e com energia cinética $E \leq 1,7$ MeV/nucleon é inferior à ionização de fragmentos de fissão de um fator 1,5 a 4 e, conseqüentemente, a velocidade de ataque ao longo do traço latente v_T para aqueles fragmentos no vidro é menor que no caso de fragmentos de fissão. Resulta que, em condições de ataque pré-fixadas (v_G constante), o ângulo de cone θ será maior (pelo menos de um fator 2) e, portanto, a eficiência de detecção $(1 - \sin\theta)$ de íons variando do neônio ao níquel será da ordem de 4 vezes menor que a de fragmentos de fissão. No caso de vidros artificiais de urânio como os analisados por Thiel e Herr⁽²²⁾ (cf. Fig. 3.1.1), os fragmentos são originados uniformemente no volume do vidro e, neste caso, a eficiência de detecção ($\approx \cos^2\theta$) é maior do que quando se dispõe de um filme fino de urânio cobrindo a superfície do vidro⁽⁵⁹⁾. Portanto, nas condições experimentais do presente trabalho, o vidro não se mostrou ser um detetor adequado para a investigação de um possível modo de desintegração de núcleos pesados em fragmentos de massa menor que a dos fragmentos da fissão ordinária.

CAPÍTULO IV

CONSIDERAÇÕES TEÓRICAS E CONCLUSÕES

4.1 - *Introdução*

No presente trabalho não é nossa intenção discutir modelos que venham a explicar uma possível emissão espontânea pelo U^{238} de fragmentos de número de massa $20 < A < 70$. Mostraremos apenas os resultados de um cálculo baseado na teoria de penetração de barreira de potencial, o qual fornece os rendimentos de alguns possíveis modos de emissão de fragmentos nucleares. Admitindo a prévia existência de grandes aglomerados de nucleons (*heavy-nucleon-clusters*) no interior do núcleo, um cálculo simples e sistemático de penetração através uma barreira de potencial para tais agregados de nucleons mostrou a possibilidade de alguns modos de emissão com números de massa compreendidos entre 20 e 70 e com rendimentos de mesma ordem de grandeza que os rendimentos dos produtos da fissão espontânea.

4.2 - *Emissão de Íons Pesados por Penetração de Barreira de Potencial*

Nessas estimativas, o formalismo de desintegração alfa⁽⁷¹⁾ foi estendido para o caso de emissão de "clusters" mais complexos. Assim, cada particular modo de emissão é descrito an

logamente como na teoria de desintegração alfa. A constante de desintegração total para todos os modos possíveis de emissão de íons pesados é dada por

$$\lambda = \sum_i \lambda_i \quad (4.2.1)$$

onde λ_i é a constante de desintegração através da emissão de um particular nuclídeo X_i . De acordo com a teoria de penetração de barreira de potencial, λ_i é calculado mediante

$$\lambda_i = \lambda_{oi} e^{-G_i} \quad (4.2.2)$$

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

$$\lambda_{oi} [\text{ano}^{-1}] \approx \frac{2,2 \times 10^{29}}{R - R_{X_i}} \sqrt{\frac{0,85 Q_i}{m_i}} \quad (4.2.3)$$

sendo R e R_{X_i} os raios nucleares (expressos em fm) do núcleo pai (U^{238}) e do nuclídeo X_i emitido, respectivamente; $0,85 Q_i$ é a soma das energias cinéticas (expressas em MeV) do fragmento X_i e do núcleo produto Y_i , e m_i é a massa reduzida do sistema (expressa em amu). O fator de Gamow pode ser escrito como

$$G_i = 0,525 P_i \sqrt{Z_{X_i} Z_{Y_i} m_i b_i} \quad (4.2.4)$$

Z_{X_i} e Z_{Y_i} são as cargas dos nuclídeos produzidos, b_i é a distância entre os fragmentos (expressa em fm) para a qual a energia

potencial iguala a energia de desintegração e P_i é o fator de penetabilidade da barreira de potencial. Essas duas últimas grandezas são dadas por

$$b_i \text{ [fm]} = \frac{1,44 Z_{X_i} Z_{Y_i}}{0,85 Q_i} \quad (4.2.5)$$

$$P_i = \text{arc cos} \sqrt{R_i/b_i} - \sqrt{R_i/b_i - (R_i/b_i)^2} \quad , \quad (4.2.6)$$

onde R_i representa a soma dos raios nucleares (expressa em fm) dos núclídeos X_i e Y_i , isto é,

$$R_i = R_{X_i} + R_{Y_i} \quad (4.2.7)$$

Os raios nucleares foram calculados a partir da expressão geral $r_0 A^{1/3}$, onde A é o número de massa e r_0 é o parâmetro do raio nuclear que foi ajustado de tal modo a coincídiçem a constante de desintegração total calculada pelo formalismo acima descrito com o valor atribuído experimentalmente. O melhor ajuste foi conseguido com $r_0 = 1,32$ fm. A energia total de desintegração Q_i , bem como as massas nucleares em

$$m_i = \frac{M_{X_i} M_{Y_i}}{M_{X_i} + M_{Y_i}} \quad , \quad (4.2.8)$$

foram calculadas como se acha descrito na Seção 1.3.1. Procedendo desta maneira, o cálculo dá como resultado para alguns modos de emissão de fragmentos compreendidos entre o neônio e o níquel fatores de Gamow que variam de 104 a 125 e para λ_0 o intervalo

de valores $(2-4) \times 10^{21} \text{s}^{-1}$. Embora este resultado tenha sido obtido mediante uma fórmula aproximada para λ_0 (Eq.(4.2.3)), está em bom acordo com a frequência de colisão para a emissão de partículas alfa e com a frequência de oscilação nuclear no modelo da gota líquida para a fissão espontânea.

A Eq. (4.2.2) ainda pode ser transformada para dar a meia-vida de um particular modo de emissão de íons pesados, dando o seguinte resultado:

$$T_{1/2}[\text{ano}] \approx 3,2(R-R_{X_i}) \sqrt{\frac{m_i}{0,85Q_i}} \cdot 10^{\left[\frac{G_i}{Zn10} - 30 \right]} . \quad (4.2.9)$$

Cerca de 260 diferentes modos de emissão foram analisados mediante este modelo simplificado. Alguns resultados podem ser vistos na Tabela 4.2.1. Os valores das constantes de desintegração parciais, λ_i , são fortemente afetados pelo parâmetro do raio nuclear, r_0 , e pelas massas nucleares dos núclídeos produzidos, M_{X_i} e M_{Y_i} . Por exemplo, um acréscimo de 2% em r_0 acarreta num decréscimo de até 5 ordens de grandeza na meia-vida; por outro lado, uma variação de 1 MeV no valor de Q (uma consequência das flutuações das massas nucleares) resulta numa variação de duas ordens de grandeza na meia-vida. Portanto, as meias-vidas calculadas mediante o procedimento acima descrito estão sujeitas à flutuação de várias ordens de grandeza e, por isso, devem ser interpretadas como sendo apenas indicativas da possibilidade de alguns modos de emissão de íons pesados. Dentro dos referidos limites de incertezas, a análise sistemática feita com o simples formalismo aqui apresentado pode ser resumida como segue:

a) as meias-vidas calculadas para alguns modos de emissão espon-

TABELA 4.2.1 - Resultado dos cálculos para alguns possíveis modos de emissão espontânea de tons pesados pelo U²³⁸

Nuclídeo Emitido	Núcleo Produto	Barreira de Coulomb [MeV]	Energia de Desintegração: 0,85Q [MeV]	λ [10 ²¹ s ⁻¹]	Fator de Gamow	Constante de Desintegração [ano ⁻¹]	Meia-Vida [ano]
Ne ²⁴	Pb ²¹⁴	101	46	2,3	117	0,8×10 ⁻²²	0,9×10 ²²
Na ²⁷	Tl ²¹¹	109	51	2,4	122	0,6×10 ⁻²⁴	1,2×10 ²⁴
Mg ²⁸	Hg ²¹⁰	117	57	2,5	117	0,9×10 ⁻²²	0,8×10 ²²
Si ³²	Pt ²⁰⁶	131	69	2,7	112	1,7×10 ⁻²⁰	4,0×10 ¹⁹
S ³⁶	Os ²⁰²	145	79	2,9	114	4,2×10 ⁻²¹	1,6×10 ²⁰
S ³⁷	Os ²⁰¹	144	78	3,0	119	1,8×10 ⁻²³	4,0×10 ²²
S ³⁸	Os ²⁰⁰	144	81	3,0	109	3,0×10 ⁻¹⁹	2,3×10 ¹⁸
Ar ⁴²	W ¹⁹⁶	156	88	3,1	119	2,2×10 ⁻²³	3,2×10 ²²
K ⁴⁵	Ta ¹⁹³	162	92	3,1	123	3,5×10 ⁻²⁵	2,0×10 ²⁴
K ⁴⁶	Ta ¹⁹²	162	92	3,2	122	1,2×10 ⁻²⁴	0,6×10 ²⁴
K ⁴⁷	Ta ¹⁹¹	162	95	3,3	111	4,0×10 ⁻²⁰	1,7×10 ¹⁹
Ca ⁴⁶	Hf ¹⁹²	168	96	3,2	123	3,1×10 ⁻²⁵	2,2×10 ²⁴
Ca ⁴⁷	Hf ¹⁹¹	168	97	3,3	120	0,7×10 ⁻²³	1,0×10 ²³

(continua)

TABELA 4.2.1 - (continuação)

Ca ⁴⁸	Hf ¹⁹⁰	167	102	3,4	105	$2,8 \times 10^{-17}$	$2,5 \times 10^{16}$
Ca ⁴⁹	Hf ¹⁸⁹	167	101	3,2	108	$1,0 \times 10^{-18}$	$0,7 \times 10^{18}$
Ca ⁵⁰	Hf ¹⁸⁸	167	102	3,4	104	$0,9 \times 10^{-16}$	$0,8 \times 10^{16}$
Sc ⁴⁹	Lu ¹⁸⁹	173	101	3,4	121	$2,1 \times 10^{-24}$	$3,3 \times 10^{23}$
Sc ⁵⁰	Lu ¹⁸⁸	173	101	3,4	121	$1,8 \times 10^{-24}$	$3,9 \times 10^{23}$
Sc ⁵¹	Lu ¹⁸⁷	173	103	3,5	115	$1,3 \times 10^{-21}$	$0,5 \times 10^{21}$
Tl ⁵²	Yb ¹⁸⁶	178	107	3,5	115	$1,2 \times 10^{-21}$	$0,6 \times 10^{21}$
Cr ⁵⁶	Er ¹⁸²	188	113	3,6	122	$0,7 \times 10^{-24}$	$1,0 \times 10^{24}$
Ni ⁶⁶	Gd ¹⁷²	204	128	4,0	118	$0,8 \times 10^{-22}$	$0,9 \times 10^{22}$

tânea de íons pesados pelo U^{238} são compatíveis com a observação em emulsão de traços de fragmentos nucleares de comprimento variando de 10 a 18 μm ;

b) dos processos de emissão espontânea energeticamente possíveis, 22 tem meia-vida inferior a 10^{24} anos;

c) destes, 11 envolvem núclídeos com número mágico de nucleons: Pb^{214} , Ca^{46} , Ca^{47} , Ca^{49} , Ca^{50} , Ni^{66} , S^{36} , Os^{202} , K^{47} e Sc^{49} ; o núclídeo duplamente mágico Ca^{48} seria emitido com meia-vida da ordem de 10^{16} anos.

Na Fig. 4.2.1 estes resultados estão mostrados em comparação com a distribuição de massa na fissão espontânea do U^{238} obtida experimentalmente por Rao e Kuroda ⁽⁷²⁾ com a técnica radioquímica. Os rendimentos percentuais p_i foram obtidos mediante

$$p_i = 100 \frac{\lambda_i}{\lambda_t} \quad , \dots \quad (4.2.10)$$

onde λ_i é a constante de desintegração de um particular modo de fissão ou de íons pesados correspondente ao número de massa A e $\lambda_t = \lambda_{\text{fissão}} + \lambda_{\text{íons pesados}}$. De acordo com os resultados experimentais discutidos nos Capítulos anteriores, admitimos para o cálculo de p_i ser $\lambda_{\text{fissão}} \approx \lambda_{\text{íons pesados}} \approx 10^{-16} \text{ano}^{-1}$. Limites superiores dos rendimentos de Mg^{28} , S^{35} , Ar^{37} , Ar^{39} , Ar^{41} , Ca^{45} , Co^{56} , Fe^{59} , Ni^{66} e Cu^{67} analisados na fissão do U^{235} por neutrons térmicos ⁽⁷³⁻⁷⁶⁾ e de Mg^{28} , K^{43} e Ni^{66} na fissão espontânea do Cf^{252} ⁽⁷⁷⁾ são também mostrados para comparação.

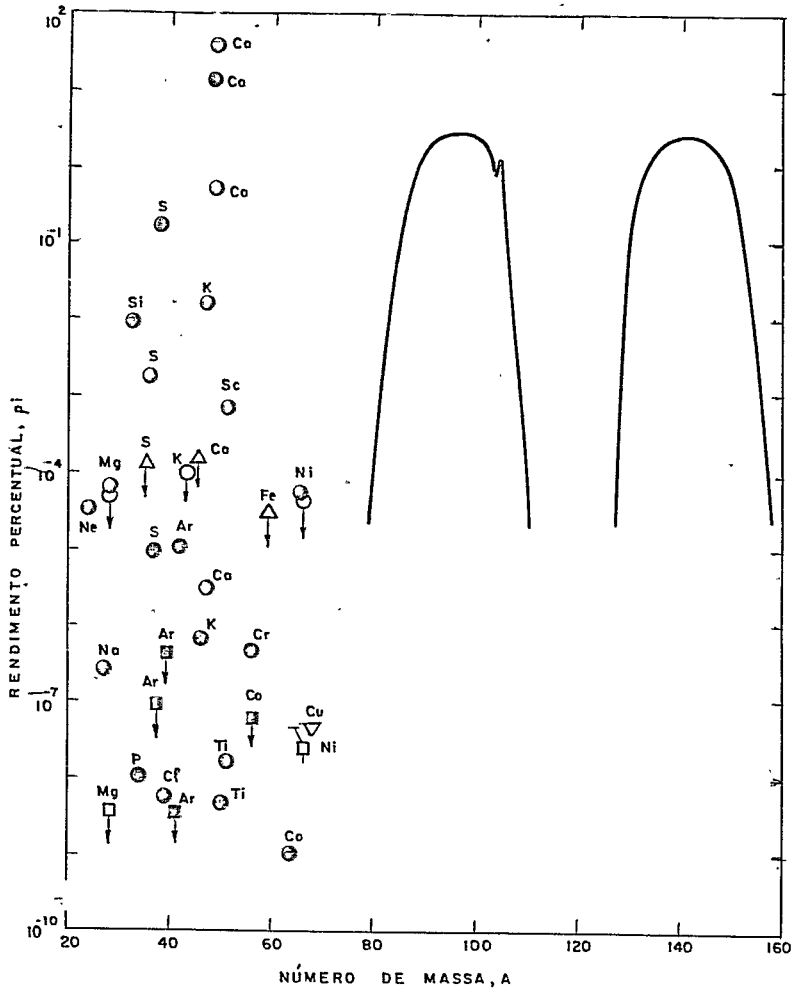


FIGURA 4.2.1 - Distribuição de massa dos produtos de desintegração espontânea do U^{238} . Os círculos negros representam os resultados do cálculo para alguns modos de desintegração por íons pesados, como descrito no texto. As curvas representam a distribuição de massa da fissão espontânea do U^{238} obtida experimentalmente por Rao e Kuroda (72). Estão representados também os limites superiores dos rendimentos de alguns nuclídeos leves na fissão do U^{235} por neutrons térmicos (Δ (73); \square (75); \blacksquare (74); ∇ (76)) e na fissão espontânea do Cf^{252} (\circ (77)).

4.3 - Alta Assimetria de Massa na Fissão Espontânea de Núcleos Pesados

Um outro mecanismo que possivelmente venha a explicar os rendimentos dos produtos da desintegração espontânea do U^{238} com massas inferiores a dos fragmentos da fissão ordinária é a influência dos efeitos de camadas na distribuição de massa na fissão espontânea de núcleos pesados. Este estudo, que está baseado no que se denominou "*teoria de fragmentação*"⁽⁷⁸⁻⁸¹⁾, vem sendo recentemente desenvolvido por um grupo do Instituto de Física Teórica da Universidade de Frankfurt.

Segundo esta teoria, Săndulescu e Greiner⁽³⁴⁾ mostraram que os vales de assimetria de massa que aparecem no potencial de fragmentação devido a efeitos de camadas dos fragmentos são responsáveis pela assimetria de massa na fissão, e que tais efeitos de camadas devem não só aparecer em torno do produto duplo mágico Sn^{132} mas também em outros núclídeos-duplamente mágicos como Ni^{78} , Pb^{208} ou podendo ser também o Ni^{56} . Cálculos feitos para o caso da fissão espontânea do U^{238} e No^{252} ⁽³⁵⁾ mostraram que novos vales de assimetria de massa aparecem no potencial de fragmentação, $V(\ell, \eta)$, como uma função da elongação ℓ do núcleo e da coordenada de assimetria de massa, $\eta = (A_1 - A_2) / (A_1 + A_2)$, onde A_1 e A_2 representam os números de massa dos fragmentos. Esses novos vales têm sido considerados por Săndulescu e colaboradores⁽³⁵⁾ como o resultado de um tratamento exato das correções de camadas tal que, para fragmentos separados, essas correções igualam a soma das correções de camadas dos fragmentos individuais. O resultado é que os novos mínimos no potencial de fragmentação podem ser atribuídos às correções de camadas para o menor frag -

mento com $N = 50$ e $Z = 28$ ou $N = 28$ e $Z = 28$. A Fig. 4.3.1 mostra as distribuições de massa que resultam para a fissão espontânea do U^{238} e No^{252} . São evidenciadas novas estruturas nas distribuições em torno aos números de massa 56 para o No^{252} e 68 para o U^{238} . No caso do U^{238} , os rendimentos dos produtos de desintegração com $55 < A < 75$ somam aproximadamente 20% da totalidade dos modos de fissão. Este resultado é compatível com as nossas observações experimentais.

Concluindo, queremos ainda mencionar que um tratamento teórico semelhante à desintegração alfa para esta forma altamente assimétrica de ruptura nuclear ⁽³⁶⁾, tem mostrado que as penetrabilidades de barreira de potencial são competitivas, e até mesmo maiores para alguns modos de emissão de íons pesados, com a emissão da partícula alfa, o que está de acordo com o resultado dos nossos cálculos apresentados na Seção 4.2. Deste modo, podemos dizer que, para núcleos pesados, é possível haver uma nova forma de desintegração que pode ser interpretada ou como uma fissão nuclear altamente assimétrica ou uma emissão de "clusters" nucleares.

4.4 - Conclusões

No desenvolvimento do presente trabalho, apresentamos e discutimos uma série de resultados experimentais e teóricos que nos levam a admitir a existência de um novo modo de desintegração de núcleos pesados, tanto espontânea como induzida, em fragmentos com alta assimetria de massa.

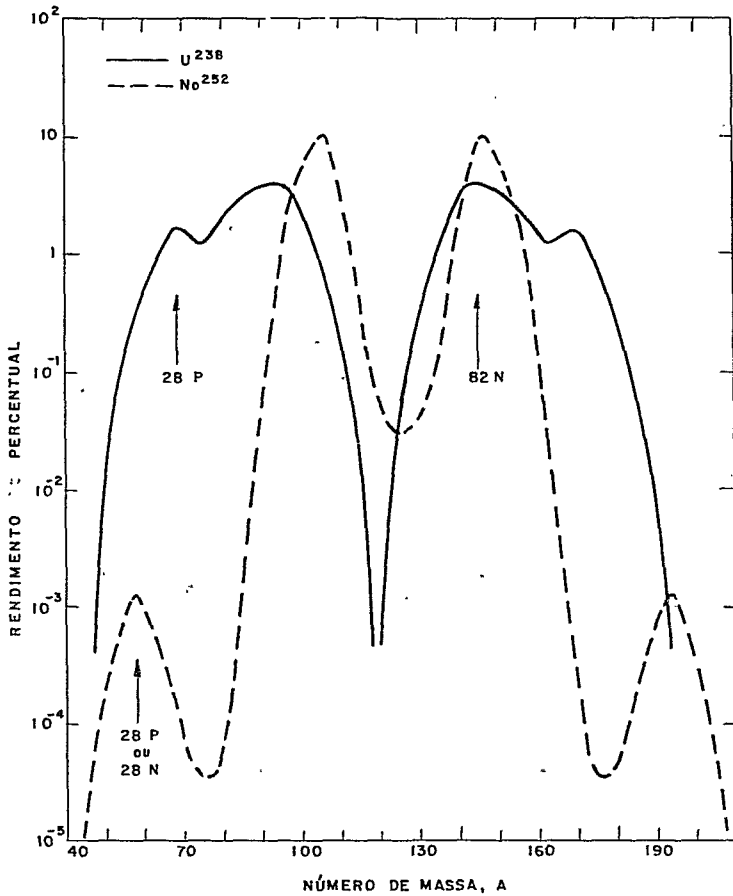


FIGURA 4.3.1 - Distribuições de massa teóricas (normalizadas a 200%) para a fissão espontânea do U^{238} e No^{252} . As curvas são reproduzidas de Săndulescu e colaboradores (a ser publicado). É também indicada uma possível influência de números mágicos nas distribuições de massa.

Inicialmente, esta hipótese provocou grande ceticismo. Porém, à medida que novas evidências experimentais foram sendo acumuladas, tornou-se cada vez mais claro a possibilidade de alguns núcleos pesados virem a emitir íons de massa intermediária ($20 \leq A \leq 70$), seja espontaneamente ou por processos induzidos. A observação de um fenômeno desta natureza de forma espontânea no U^{238} , feita em experiências de longo tempo de exposição conduzidas em nosso laboratório, nos motivou a procurar pela mesma sorte de eventos em núcleos com baixa energia de excitação. Paralelamente, foram obtidos por outros pesquisadores resultados experimentais e teóricos pertinentes a este novo modo de desintegração nuclear.

Os resultados podem ser sintetizados como segue:

- i) traços de menor comprimento que os atribuíveis a fragmentos de fissão foram observados em placas de emulsão nuclear carregadas com urânio natural e que tinham sido utilizadas em experiências de fissão espontânea e de fotofissão à baixa energia;
- ii) um estudo minucioso de ionização e alcance mostrou que tais "traços" podem ser atribuídos a fragmentos nucleares de menor massa que a dos fragmentos de fissão; os alcances observados são compatíveis com a energética de um mecanismo de emissão de íons pesados pelo U^{238} ;
- iii) a observação de traços desemparelhados em sanduíches de mica utilizados em experiências de fissão do U^{238} induzida por fótons monoenergéticos (8,86MeV), indicando a emissão de fragmentos com alta assimetria de massa pelo U^{238} foto-excitado;
- iv) um excesso de isótopos de neônio e argônio de gases natu-

rais e minerais radioativos compatível com um mecanismo de emissão espontânea de tais isótopos pelo urânio;

v) a recente observação de "ombros radioquímicos" na região de alta assimetria de massa ($A \leq 70$, $A \geq 160$) na fissão do U^{238} induzida por neutrons de reator;

vi) a observação de dois picos na distribuição de diâmetro de traços em vidros de urânio preparados no século passado, e que muito provavelmente é também indicativa de uma emissão espontânea pelo U^{238} de íons com número de massa $A \leq 70$;

vii) a compatibilidade entre as estimativas de meia-vida para alguns modos de emissão de íons pelo U^{238} por penetração de barreira de potencial e a frequência de traços de curto alcance observados em emulsão;

viii) cálculos recentes baseados em efeitos de camada dos fragmentos com alta assimetria de massa na fissão espontânea do U^{238} , indicando rendimentos dos produtos de $55 < A < 75$, em bom acordo com nossas observações experimentais.

Embora pequeno o conjunto de dados de que dispomos até o momento, os resultados acima relacionados permitem concluir que - núcleos de U^{238} podem também desintegrar-se em fragmentos de massa bem diferente ($A \leq 70$ e $A \geq 170$) que a dos fragmentos da fissão ordinária;

- a alta assimetria de massa na fissão (uma consequência dos efeitos de camadas dos fragmentos) e a emissão de "clusters" nucleares por penetração de barreira de potencial são mecanismos capazes de explicar este novo modo de ruptura nuclear.

Esperamos que trabalhos futuros nesta linha de pesquisa, de grupos experimentais e teóricos, forneçam dados adicionais que possam confirmar com maior evidência os resultados ora apresentados.

APÊNDICE A

PERDA DE ENERGIA POR COLISÕES ATÔMICAS DE PARTÍCULAS CARREGADAS NUM MEIO COMPOSTO

O decréscimo de energia que uma partícula carregada sofre por colisões com os átomos de um material torna-se apreciável apenas próximo ao final de seu percurso no meio, quando excitações eletrônicas e colisões com elétrons (ionização) são pouco prováveis. As colisões de uma partícula de carga z , massa m e velocidade $\beta = v/c$ com átomos do material de número atômico Z e massa M podem ser tratadas classicamente⁽⁸²⁾ como um espalhamento coulombiano desde que a mínima distância de aproximação numa colisão frontal, b , seja muitíssimo maior que o comprimento de onda de Broglie, λ , da partícula, isto é,

$$\frac{b}{\lambda} = \frac{2\alpha z Z}{\beta} \gg 1, \quad (\text{A.1})$$

onde α é a constante de estrutura fina.

Nestas condições, a maneira mais simples de descrever colisões entre dois íons pesados é mediante o formalismo clássico de Rutherford. Porém, este tratamento supõe partículas puntiformes de carga e massa com campos coulombianos de forças centrais. A situação real (colisões de íons com átomos) pode ser aproximada considerando o efeito de blindagem dos elétrons pela

substituição do potencial simples de Coulomb por um outro da forma ⁽⁸³⁾

$$V(r) = \frac{zZe^2}{r} \exp(-r/a) \quad , \quad (A.2)$$

onde a é um parâmetro de blindagem (raio atômico). Para se manter válida a aproximação clássica de colisões entre dois corpos, como no caso de um íon de massa intermediária (fragmentos de fissão, por exemplo) movendo-se num meio, a condição (A.1) deve ser adicionada a condição de que $\lambda \ll a$. Tomando para o raio atômico a expressão $a \approx 1,4 a_0 Z^{-1/3}$ ($a_0 = 0,53 \text{ \AA}$ é o raio do átomo de hidrogênio na Teoria de Bohr), esta última se escreve

$$1,4Z^{-1/3} \beta \alpha \frac{m}{m_0} \gg 1 \quad (m_0 = \text{massa de repouso do elétron}) \quad (A.3)$$

que ainda pode ser colocada sob a forma

$$18,6 \frac{\beta m [\text{amu}]}{Z^{1/3}} \gg 1 \quad . \quad (A.4)$$

Satisfeitas as condições (A.1) e (A.4), a perda de energia de uma partícula carregada por colisões com os átomos de um meio pode ser expressa como ⁽⁸⁴⁾

$$-\frac{dE}{dx}(\beta) = \frac{2\pi z^2 Z^2 e^4 N}{Mc^2 \beta^2} \ln \left[\frac{amc^2 \beta^2}{zZe^2} \left(\frac{M}{M+m} \right) \right] \quad , \quad (A.5)$$

onde: e = carga do elétron;

a = parâmetro de blindagem (raio atômico);

z, m, β = carga, massa atômica e velocidade ($\beta = v/c$) da partícula, respectivamente;

Z, M = número atômico e massa atômica dos átomos do meio, respectivamente;

N = número de átomos por unidade de volume;

c = velocidade da luz no vácuo.

Expressando as massas atômicas em unidades de energia e substituindo o parâmetro de blindagem pelo seu valor, tem-se:

$$-\frac{dE}{dx}(\beta) = \frac{2\pi z^2 Z^2 e^4 N}{M\beta^2} \ln \left[\frac{1,4 a_0 \beta^2 \mu}{z Z^{4/3} e^2} \right], \quad (A.6)$$

sendo $\mu = \frac{mM}{m+M}$ a massa reduzida e a_0 o raio clássico do átomo de hidrogênio. Se o meio onde a partícula se move (considerado de densidade constante ρ) for constituído de n espécies atômicas diferentes de número atômico Z_i , peso atômico A_i e percentagem em peso p_i , cada espécie atômica contribuirá de modo diferente para a perda total de energia por colisão. Neste caso, temos:

$$-\frac{dE}{dx}(\beta) = \frac{2\pi z^2 e^4 N_0 \rho}{\beta^2} \sum_{i=1}^n \frac{p_i Z_i^2}{M_i A_i} \ln \left[\frac{1,4 a_0 \beta^2 \mu_i}{z Z_i^{4/3} e^2} \right], \quad (A.7)$$

sendo N_0 o número de Avogadro. Substituindo os valores das constantes e tomando o MeV/ μm para unidade de $-dE/dx$, resulta a fórmula final

$$-\frac{dE}{dx}(\beta) = 8,43 \times 10^{-9} \frac{z^2 \rho \left[\text{g/cm}^3 \right]}{\beta^2} \sum_{i=1}^n \frac{p_i Z_i^2}{A_i M_i \left[\text{amu} \right]} \times$$

$$\times \ln \left[4,8 \times 10^7 \frac{\beta^2 \nu_i [\text{amu}]}{z Z_i^{4/3}} \right], \text{ MeV}/\mu\text{m} . \quad (\text{A.8})$$

APÊNDICE B

PERDA DE ENERGIA POR IONIZAÇÃO E ALCANCE DE PRÓTONS EM EMULSÃO NUCLEAR

A perda de energia por ionização de partículas carregadas em emulsão nuclear depende fundamentalmente da carga "efetiva" da partícula (que é unicamente função de sua velocidade) e da quantidade de ionização produzida por um próton à mesma velocidade que a partícula. É importante, pois, obter fórmulas que forneçam, com boa aproximação, a perda de energia por ionização de um próton em emulsão nuclear. De acordo com o contexto do parágrafo 1.3.2.1, nos limitaremos a prótons não relativísticos de energia $E < 2\text{MeV}$.

O tratamento quântico (não relativístico) baseado na aproximação de Born para a ionização de uma partícula de carga unitária num meio homogêneo e constituído de átomos de um mesmo elemento conduz à bem conhecida "fórmula de Bethe" ⁽⁸⁵⁾

$$-\frac{dE}{dx}(\beta) = \frac{4\pi e^4 ZN}{m_0 c^2 \beta^2} \left[\ln \left(\frac{2m_0 c^2 \beta^2}{I} \right) - \frac{C_K}{Z} \right] \quad (\text{B.1})$$

onde: e = carga do elétron;

Z = número atômico dos átomos do material;

N = número de átomos por cm^3 ;

$m_0 c^2 = 0,511 \text{ MeV}$ = energia de repouso do elétron;

$\beta = v/c$ = velocidade da partícula (c é a velocidade da luz no vácuo);

I = potencial médio de ionização;

C_K = termo corretivo que leva em conta a não participação dos elétrons da camada mais interna K no mecanismo da perda de energia.

Para prótons de energia $E < 2\text{MeV}$, tem-se $E = mc^2\beta^2/2$ e, conseqüentemente, a velocidade vem dada por

$$\beta = 0,0462 \sqrt{E [\text{MeV}]} . \quad (\text{B.2})$$

O potencial médio de ionização pode ser obtido com boa aproximação mediante a expressão ⁽⁸⁶⁾

$$I [\text{eV}] = 13,4Z^{0,93} \quad (\text{B.3})$$

O termo corretivo C_K depende da velocidade da partícula e do número atômico Z . Contudo a influência de Z nos valores de C_K é pequena ⁽⁸⁵⁾. Uma função que reproduz com boa aproximação os valores teóricos de C_K é a seguinte:

$$C_K = \frac{3\alpha^2(Z-0,3)^2}{\beta^2} e^{-\frac{1,119\alpha^2(Z-0,3)^2}{\beta^2}} \quad (\text{B.4})$$

sendo $\alpha = 1/137$ a constante de estrutura fina.

A Eq. (B.4) pode ser ainda escrita sob a forma:

$$C_K = \frac{1,6 \times 10^{-4} (Z-0,3)^2}{\beta^2} e^{-\frac{6 \times 10^{-5} (Z-0,3)^2}{\beta^2}} \quad (B.5)$$

Introduzindo a expressão do potencial médio de ionização (Eq. (B.3)) na fórmula de Bethe inicial, e escolhendo o MeV/ μ m para unidade de ionização, a Eq. (B.1) se transforma para

$$-\frac{dE}{dx}(\beta) = 5,1 \times 10^{-29} \frac{ZN}{\beta^2} \left[\ln \left(\frac{7,62 \times 10^4 \beta^2}{Z^{0,93}} \right) - \frac{C_K}{Z} \right] \text{ MeV}/\mu\text{m} \quad (B.6)$$

A fórmula acima aplica-se no caso de se ter um meio homogêneo com N átomos/ cm^3 de uma mesma espécie Z .

Suponhamos agora um meio constituído de n diferentes elementos e com densidade ρ constante. Sejam Z_i , A_i , e p_i o número atômico, o peso atômico e o percentual em peso dos diferentes elementos do meio. O número de átomos/ cm^3 , N_i , de cada constituinte do material composto será dado por

$$N_i = \rho N_0 p_i / A_i \quad (B.7)$$

Sendo N_0 o número de Avogadro. Neste caso, as diferentes espécies atômicas contribuem com parcelas para a ionização total. Assim, a perda de energia de um próton num meio composto vem dada por

$$-\frac{dE}{dx}(\beta) = 3,07 \times 10^{-5} \frac{\rho [\text{g}/\text{cm}^3]}{\beta^2} \sum_{i=1}^n \frac{Z_i p_i}{A_i} \left[\ln \left(\frac{7,62 \times 10^4 \beta^2}{Z_i^{0,93}} \right) - \frac{C_K(Z_i, \beta)}{Z_i} \right] \text{ MeV}/\mu\text{m} \quad (B.8)$$

Para emulsão nuclear Ilford (séries G, K, L), $\rho = 3,827 \text{ g/cm}^3$, e a composição percentual média em peso dos diversos constituintes pode ser vista na Tabela B.1.

TABELA B.1 - Composição média de emulsões nucleares Ilford^(*).

Elemento	Z_i	A_i	g/cm^3	$P_i(\%)$
Prata	47	107,88	1,817	47,5
Bromo	35	79,916	1,338	35,0
Iodo	53	126,93	0,012	0,3
Carbono	6	12	0,277	7,2
Hidrogênio	1	1,008	0,0534	1,4
Oxigênio	8	16	0,249	6,5
Nitrogênio	7	14,008	0,074	1,9
Enxofre	16	32,06	0,007	0,2

(*) Séries G,K,L, composição normal (1 x gelatina) a 58% de umidade relativa.

Os dados da Tabela acima e a fórmula (B.8) podem ser usados para calcular a ionização de prótons em emulsões nucleares Ilford em condições normais.

É importante observar, entretanto, que para energias do próton inferiores a aproximadamente 130 KeV, a fórmula de Bethe dá valores negativos para a ionização (o que é uma falha intrínseca da teoria). Além disso, os alcances de prótons, R , calculados mediante

$$R(E_0) = \int_0^{E_0} \frac{dE}{\left(-\frac{dE}{dX}\right)}, \quad (\text{B.9})$$

quando se usa para $-dE/dx$ os valores obtidos pela Eq.(B.8), não reproduzem os alcances medidos em emulsão. Este fato é devido a que a fórmula de Bethe aplicada a um meio composto como a emulsão nuclear fornece valores para a ionização de prótons de energia $E \leq 0,6$ MeV muito inferiores aos que se obtém da análise de curvas experimentais de alcance-energia. Portanto, a Eq. (B.8) só deve ser aplicada para energias do próton superiores a 0,6 MeV (ou, alternativamente, para $\beta \geq 0,036$). Para energias inferiores a $\sim 0,6$ MeV a ionização de prótons em emulsão tem sido obtida a partir de dados empíricos do poder frenador de prótons de baixa energia em vários elementos⁽⁸⁷⁾, como também a partir de relações experimentais de alcance-energia⁽⁸⁸⁾. A Tabela B.2 resume os valores de ionização de prótons em emulsão, tanto os obtidos pela fórmula de Bethe (Eq. (B.8)), quanto os interpolados de dados experimentais⁽⁸⁹⁾. Para tornar clara a discussão, os dados da Tabela B.2 acham-se também representados sob forma gráfica na Fig. B.1.

Com o intuito de obter uma expressão para $-dE/dx$ facilmente utilizável nos cálculos, os valores de ionização de prótons em emulsão nuclear segundo Barkas⁽⁸⁹⁾ foram ajustados a uma função do tipo

$$- \frac{dE}{dx} = a\beta e^{-b\beta} , \quad (B.10)$$

o que conduziu ao seguinte resultado:

$$\begin{aligned} - \frac{dE}{dx} \left[\text{MeV}/\mu\text{m} \right] &= 30\beta e^{-82\beta} , \quad \beta \leq 0,0335 \\ - \frac{dE}{dx} \left[\text{MeV}/\mu\text{m} \right] &= 8,4\beta e^{-44\beta} , \quad 0,0335 \leq \beta \leq 0,0653 . \end{aligned} \quad (B.11)$$

TABELA B.2 - Ionização de prótons em emulsão nuclear normal (*)

Energia (MeV)	Velocidade ($\beta=v/c$)	Ionização, $-dE/dx$ [MeV/ μm]		
		Fórmula (B.8)	Barkas ⁽⁸⁹⁾	Fórmulas (B.11)
0,02	0,0065	- 2,431		0,114
0,04	0,0092	- 0,774		0,129
0,06	0,0113	- 0,343		0,134
0,08	0,0131	- 0,160		0,134
0,10	0,0146	- 0,076	0,150	0,132
0,20	0,0207	0,051	0,113	0,113
0,30	0,0253	0,067	0,095	0,096
0,40	0,0292	0,068	0,082	0,080
0,50	0,0327	0,065	0,072	0,068
0,60	0,0358	0,062	0,065	0,062
0,70	0,0387	0,059	0,060	0,059
0,80	0,0413	0,056	0,056	0,056
0,90	0,0438	0,053	0,052	0,054
1,00	0,0462	0,050	0,049	0,051
1,20	0,0506	0,045	0,044	0,046
1,40	0,0547	0,041	0,040	0,041
1,60	0,0584	0,038	0,037	0,038
1,80	0,0620	0,036	0,034	0,034
2,00	0,0653	0,034	0,032	0,031

(*) Emulsões Ilford (G,K,L) de composição padrão (1 x gelatina) a 58% de umidade relativa.

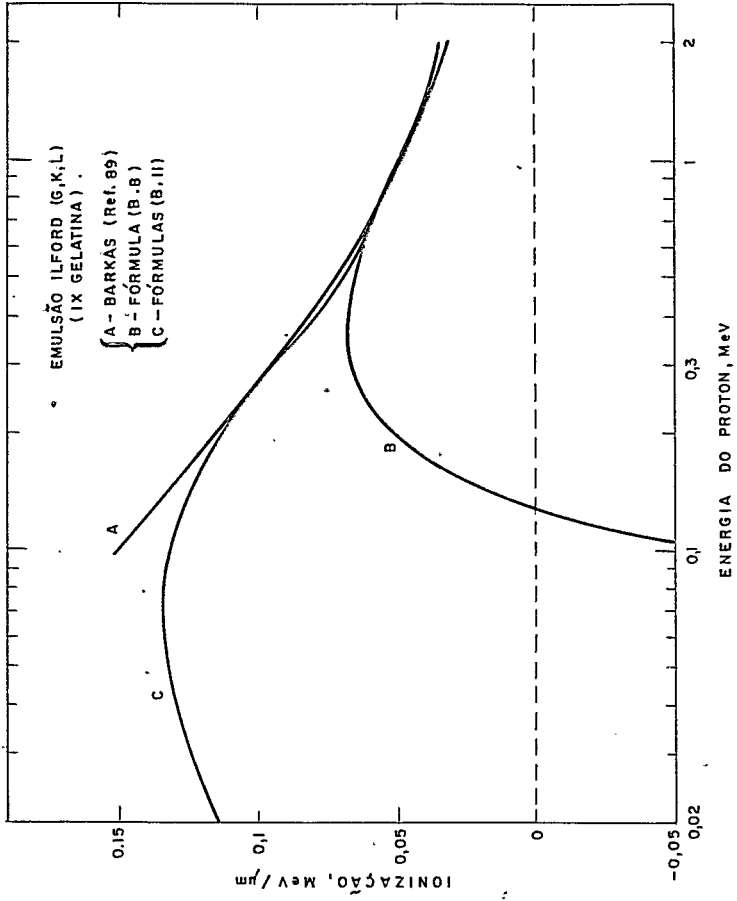


FIGURA B.1 - Ionização de prótons em emulsão nuclear Ilford.

Verifica-se que um bom acordo é obtido entre a ionização calculada pelas fórmulas (B.11) e aquelas dadas por Barkas⁽⁸⁹⁾ (com efeito, para energias do próton maiores que 0,15 MeV, o desvio médio é inferior a 3%). As Equações (B.11) permitem também extrapolar a ionização para energias do próton abaixo de 0,1 MeV (alguns valores acham-se na Tabela B.2; veja também Fig. B.1). Consequentemente, a integral que dá o alcance de prótons em emulsão (Eq. (B.9)) pode ser facilmente calculada, dando como resultado o seguinte:

$$R[\mu\text{m}] = 0,38(e^{3,8\sqrt{E[\text{MeV}]} - 1}), \quad E \leq 0,526 \text{ MeV} \tag{B.12}$$

$$R[\mu\text{m}] = 5,5(0,46e^{2,03\sqrt{E[\text{MeV}]} - 1}), \quad 0,526\text{MeV} < E \leq 2\text{MeV}.$$

Na Tab. B.3 pode-se fazer um confronto entre os alcances de prótons em emulsão calculados pelas fórmulas-acima e os atualmente recomendados em experiências que usam emulsão nuclear Ilford segundo Barkas⁽⁸⁹⁾.

TABELA B.3 - Alcances de prótons em emulsão nuclear Ilford.

Energia	Alcances, $R[\mu\text{m}]$	
	Fórmulas (B.12)	Barkas ⁽⁸⁹⁾
0,1	0,88	0,99
0,2	1,70	1,78
0,4	3,82	3,91
0,6	6,69	6,69
0,8	10,05	10,06
1,0	13,76	13,92
1,4	22,44	23,06
1,8	33,04	33,94
2,0	39,16	40,00

A boa concordância entre os resultados (a diferença entre um e outro é em média menor que 3%) nos permite concluir que as fórmulas (B.11) são adequadas para se obter a perda de energia por ionização de prótons em emulsões nucleares Ilford usadas em condições normais. O grau de aproximação obtido é suficiente para a discussão que tem lugar no Capítulo I (Seção 1.3.2.1).

BIBLIOGRAFIA

- (1) - H.G. de Carvalho, A.G. da Silva e J. Goldemberg, Angular Distribution of Photofission Fragments from Uranium, *Nuovo Cimento*, 19 (1961), 1131.
- (2) - H.G. de Carvalho, A. Manfredini, M. Muchnik, H. Bösch, J. Lang, R. Müller e W. Wölfli, Th-232 and U-238 Fission Induced by Low Energy Monochromatic Gamma-Rays. Part I - Cross-Sections at 6.61 MeV, *Nuovo Cimento*, 25 (1962), 534.
- (3) - H.G. de Carvalho, A. Manfredini, M. Muchnik, M. Severi, R. Bösch e W. Wölfli, Th-232 and U-238 Fission Induced by Low Energy Monoenergetic Gamma-Rays. Part II - Angular Distributions at 6.61 MeV, *Nuovo Cimento*, 29 (1963), 463.
- (4) - A. Manfredini, M. Muchnik, L. Fiore, C. Ramorino, H.G. de Carvalho, R. Bösch e W. Wölfli, ^{238}U Fission Induced by Low-Energy Monochromatic γ -Rays. Cross Sections Between 5 and 9 MeV, *Nuovo Cimento*, 44 (1966), 218.
- (5) - A. Manfredini, L. Fiore, C. Ramorino, H.G. de Carvalho e W. Wölfli, Angular Distribution of ^{238}U Photofission Fragments for 12 Different Monoenergetic γ -Rays, *Nucl. Phys.* A123 (1969), 664.
- (6) - H.G. de Carvalho, A. Celano e R. Rinzivillo, Tecnica per lo Studio delle Tracce di Fissione Mediante L'Uso di Emulsioni Nucleari, *Nuovo Cimento*, 19 (1961), 311.
- (7) - H.G. de Carvalho e A.G. da Silva, Nuclear Emulsion Techniques for Fission Studies, *Korpuskularphotographie* IV (1963), 654.
- (8) - H.G. de Carvalho e A.G. da Silva, Discrimination of Tracks of Photofission Fragments with Very High Background of

- Alpha-Particles and Electrons in Nuclear Emulsions, *Nuovo Cimento*, 19 (1961), 24; publicado também, em russo, pela Academia de Ciências da União Soviética em Proceedings of the Third International Conference on Cosmic-ray Photography (Moscou, 1962), 297.
- (9) - H.G. de Carvalho, A. Cèlano, M. Muchnik, G. Potenza e R. Rinzivillo, The Use of Nuclear Emulsions. Some New Techniques, Report Laboratori Nazionali di Frascati del Comitato Nazionale per l'Energia Nucleare, INFN/TC-63 (1963).
- (10) - H.G. de Carvalho, The Processing and Loading of Nuclear Emulsions, em Progress in Nuclear Techniques and Instrumentation (Vol. 1), North-Holland, Amsterdam, (1965), 247.
- (11) - H.G. de Carvalho, Fotofissão do Urânio (Resultados a Baixas Energias), Tese para Concurso de Catedrático da Universidade do Brasil (1964).
- (12) - I.O. de Souza, Meia-Vida de Fissão Espontânea do Urânio-238 e uma Provável Nova Forma de Radioatividade, Tese de Mestrado 03/75, Centro Brasileiro de Pesquisas Físicas (1975).
- (13) - 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 (1976), 205.
- (14) - W.H. Fleming e H.G. Thode, Argon-38 in Pitchblende Minerals and Nuclear Processes in Nature, *Phys. Rev.*, 90 (1953), 857.
- (15) - G.W. Wetherill, Variations in the Isotopic Abundances of Neon and Argon Extracted from Radioactive Minerals, *Phys. Rev.*, 96 (1954), 679.
- (16) - Yu. A. Shukolyukov, G. Sh. Ashkinadze e V.B. Sharif-Zade. Determination of Stable Neon Isotopes in Radioactive Minerals and Natural Gases, *Atomnaya energiya*, 34 (1973), 461.

- (17) - V. B. Sharif-Zade, Yu. A. Shukolyukov, E.K. Gerling e G. Sh. Ashkinadze, Neon Isotopes in Radioactive Minerals , *Geokhimiya*, 3 (1972), 314.
- (18) - J. Takagi, Rare Gas Anomalies and Intense Muon Fluxes in the Past, *Nature*, 227 (1970), 362.
- (19) - D. Storzer, Spaltspuren des ^{238}U -Urans und ihre Bedeutung für die geologische Geschichte natürlicher Gläser, Thesis, Universität Heidelberg (1970).
- (20) - G.A. Wagner, G.M. Reimer, 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.
- (21) - K. Thiel, Neuere Anwendungen der Methode der Teilchenspuren (Particle Tracks) in Kristallen und Gläsern. Thesis, Universität zu Köln (1973).
- (22) - K. Thiel e W. Herr, The ^{238}U -spontaneous fission decay constant re-determined by fission tracks, *Earth Planet. Sci. Lett.*, 30 (1976), 50.
- (23) - H.G. de Carvalho, J.B. Martins e O.A.P. Tavares, Experimental Evidences of Spontaneous and Low-Energy Induced Emission of Heavy Ions from Even-Even Heavy Nuclei, Report A0025/77, Centro Brasileiro de Pesquisas Físicas , Rio de Janeiro (Junho, 1977).
- (24) - R. Brandt, F. Carbonara, E. Cieslak, M. Dakowski, CH.Gfel ler, H. Piekarcz, J. Piekarcz, W. Riezler, R. Rinzivillo , E. Sassi, M. Sowinski e J. Zakrzewski, Studies of High-Energy Nuclear Fission by Means of Mica Detectors, *Nucl. Phys.*, A90 (1967), 177.
- (25) - M. Debeauvais, R. Stein, J. Ralarosy e P. Cüer, Spallation and Fission Fragments of Heavy Nuclei Induced by ^{18}GeV Protons Registered by Means of Solid Plastic Detectors , *Nucl. Phys.*, A90 (1967), 186.

- (26) - J. Hudis e S. Katcoff, High-Energy-Proton Fission Cross Sections of U, Bi, Au and Ag, Measured with Mica Track Detectors, *Phys.Rev.*, 180 (1969), 1122.
- (27) - L. Husain e S. Katcoff, Antiproton- and Pion-Induced Fission at 2.5 GeV/c, *Phys. Rev.*, C4 (1971), 263.
- (28) - S. Katcoff e J. Hudis, Fission of U, Bi, Au and Ag Induced by 29 GeV ^{14}N ions, *Phys. Rev. Letters*, 28(1972),1066.
- (29) - R.H. Iyer e J.W. Cobble, Ternary Fission of U^{238} Induced by Intermediate-Energy Helium Ions, *Phys.Rev.*, 172(1968), 1186.
- (30) - K.W. MacMurdo e J.W. Cobble, Binary and Ternary Fission of U^{238} Induced by Intermediate-Energy He^3 Ions, *Phys. Rev.*, 182 (1969), 1303.
- (31) - V.K. Rao, V.K. Bhargava, S.G. Marathe, S.M. Sahakundu e R.H. Iyer, Search for low-yield products in the neutron-induced highly asymmetric fission of uranium, *Phys.Rev.* C9 (1974), 1506.
- (32) - V.K. Rao, V.K. Bar̄gava, S.G. Marathe, S.M. Sahakundu e R.H. Iyer, Shoulders in the Reactor Neutron Induced Fission Mass Distribution of U^{238} , a ser publicado (1978).
- (33) - D.H. Epperson, Ph-Thesis, Duke-University (1978).
- (34) - A. Săndulescu e W. Greiner, Mass asymmetry in fission, fission and mass transfer due to the fragmentation in valleys, *J. Phys.*, 63 (1977), L189.
- (35) - A. Săndulescu, H.J. Lustig, J. Hahn e W. Greiner, High Mass-Asymmetry Distributions of Fissioning Nuclei, a ser publicado (1978).
- (36) - A.Săndulescu, M.Popa e W. Greiner, a ser publicado(1978).
- (37) - 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, Session VII (São Paulo, 4 a 8 de novembro, 1963), 1.

- (38) - D.M.C. Rizzo, Fissão Espontânea do ^{238}U e Medida da sua Constante de Desintegração, *An. Acad. brasil. Ciênc.*, 50 (1978), 303.
- (39) - Hoff Lu e Hsuan-Ling Tsao, Spontaneous Fission of Uranium, *Acta sci. sinica*, 1 (1952), 77.
- (40) - D. Galliker, E. Hugentobler e B. Hahn, Spontane Kernspaltung von ^{238}U und ^{241}Am , *Helv. Phys. Acta*, 43 (1970), 593.
- (41) - P. Demers, Ionographie (Les Émulsions Nucléaires), Les Presses Universitaires de Montréal (Ottawa, 1955), 341.
- (42) - V.M. Davis, A Photographic Study of Fission Fragments Employing a New Method of Critical Development, Ms. Thesis, Physics Department, Faculty of the North Carolina State College (1953).
- (43) - P.K. Kuroda e R.R. Edwards, Radiochemical Measurements of the Natural Fission Rate of Uranium, *Journ. Chem. Phys.* 22 (1954), 1940.
- (44) - P.K. Kuroda e R.R. Edwards, Radiochemical Measurements of the Natural Fission Rate of Uranium and the Natural Occurrence of Ba^{140} , *Journ. Inorg. Nucl. Chem.*, 3 (1957), 345.
- (45) - 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, *Radio khimiya*, 1 (1959), 223.
- (46) - Yu. A. Shukölyukov, G. Sh. Ashkinadze, O.A. Levchenkov e G.V. Ovchinnikova (título em russo), *Geokhimiya*, 3 (1968), 265.
- (47) - B.D. Kuz'Minov, L.S. Kutsaeva, V.G. Nesterov, L.I. Prokhrova e G.P. Smirenkin, Some Features of Spontaneous Fission of U^{238} , *Soviet Phys. JETP*, 10 (1960), 290.

- (48) - E.P. George e J. Evans, Observations of Cosmic-Ray Events in Nuclear Emulsions Exposed below Ground, *Proc.Phys.Soc. A63* (1950), 1248.
- (49) - P.B. Price e R.M. Walker, Fossil Tracks of Charged Particles in Mica and the Age of Minerals, *J. Geophys. Res. 68* (1963), 4847.
- (50) - A.H. Wapstra e N.B. Gove, Atomic Mass Table, *Nuclear Data Tables, 9* (1971), 265.
- (51) - J. Wing e P. Fong, Semi-empirical Nuclidic Mass Equation, *Phys. Rev., 136* (1964), B923.
- (52) - D.C. Brunton e G.C. Hanna, Energy Distribution of Fission Fragments from U^{235} and U^{233} , *Can. J. Res., 28A* (1950), 190.
- (53) - H.H. Heckman, B.L. Perkins, W.G. Simon, F.M. Smith e W. H. Barkas, Ranges and Energy-Loss Processes of Heavy Ions in Emulsion, *Phys. Rev., 117* (1960), 544.
- (54) - D.E. Emerson, L. Stroud e T.O. Meyer, The isotopic abundance of neon from helium-bearing natural gases, *Geoch. Cosm. Acta, 30* (1966), 847.
- (55) - D.E. Emerson, E.T. Suttle e C.A. Hoffman, The separation of neon from high-helium-content natural gases and the atmosphere for isotopic analysis, *J. Mass Spectrometry and Ion Physics, 1* (1968), 105.
- (56) - E. Cieslak, J. Piekarczyk, J. Zakrzewski, M. Dakowski, H. Piekarczyk e M. Sowinski, Observation of Fission Events in Mica Sandwiches, *Nucl. Instr. Methods, 39* (1966), 224.
- (57) - H. Yagoda, Radioactive Measurements with Nuclear Emulsions, John Wiley (N.York, 1949), 53; veja também H.G. de Carvalho e A.G. da Silva, Nuclear Emulsion Techniques for Fission Studies, *Korpuscularphotographie IV* (1963), 654.

- (58) - R.L. Fleischer, P.B. Price, R.M. Walker e E.L. Hubbard, Track Registration in Various Solid-State Nuclear Track Detectors, *Phys. Rev.*, 133 (1964), A 1443.
- (59) - R.L. Fleischer, P.B. Price e R.M. Walker, Nuclear Tracks in Solids, University of California Press (1975).
- (60) - 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.
- (61) - R.L. Fleischer e P.B. Price, Charged Particle Tracks in Glass, *J. Appl. Phys.*, 34 (1963), 2903.
- (62) - R.P. Henke e E.V. Benton, On Geometry of Tracks in Dielectric Nuclear Track Detectors, *Nucl. Instr. Methods*, 97 (1971), 483.
- (63) - R.L. Fleischer, P.B. Price e R.T. Woods, Nuclear Particle Track Identification in Inorganic Solids, *Phys. Rev.*, 188 (1969), 563.
- (64) - M. Lecerf e J. Pêter, Détecteurs en Verre: Influence de la Masse et de l'Énergie des Particules sur le Diamètre des Traces, *Nucl. Instr. Methods*, 104 (1972), 189.
- (65) - G. Somogyi e S.A. Szalay, Track-Diameter Kinetics in Dielectric Track Detectors, *Nucl. Instr. Methods*, 109 (1973), 211.
- (66) - J. Aschenbach, G. Fiedler, H. Schreck-Küllner e G. Siegert, Special Glasses as Energy Detectors for Fission Fragments, *Nucl. Instr. Methods*, 116 (1974), 389.
- (67) - V. 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. Methods*, 74 (1969), 285.

- (68) - W.H. Barkas, Nuclear Research Emulsions (Vol. 1), Academic Press (N.Y. 1963), Cap. 5.
- (69) - E. Geiger e A. Werner, Die Zahl der von Radium ausgesandten α -Teilchen. I- Teil, Szintillationszählungen, *Zeit. f. Phys.*, 21 (1924), 187. Veja também S.N. Sokolov e K. D. Tolstov, Control of Scanning Efficiency and Estimation of the True Number of Events, *Korpuskularphotographie IV* (1963), 468.
- (70) - V. Bellini, V. Emma, S. Lo Nigro, C. Milone e G.S. Pappalardo, Fission Fragment Spectra Measured by Means of Glass Detectors, *Lettere al Nuovo Cimento*, 22 (1978), 539.
- (71) - Veja, por exemplo, P. Marmier e E. Sheldon, Physics of Nuclei and Particles (vol. 1), Academic Press (1969) , Cap. 7.
- (72) - M.N. Rao e P.K. Kuroda, Decay Constant and Mass-Yield Curve for the Spontaneous Fission of Uranium-238, *Phys.Rev.*, 147 (1966), 884.
- (73) - P.P. Metcalf, J.A. Seiler, E.P. Steinberg e L. Winsberg, citado em C.D. Coryell e N. Sugarman, Radiochemical Studies: the fission products, MacGraw-Hill (N.Y. 1951) , "papers 47-51".
- (74) - R.W. Stoenner e M. Hillman, Search for Radiochemical Evidence for Ternary Fission of ^{235}U by Thermal Neutrons , *Phys. Rev.*, 142 (1966), 716.
- (75) - J.C. Roy, On the Production of Be^7 , Mg^{28} , and Ni^{66} in the Slow Neutron Fission of U^{235} , *Can. Journ. Phys.*, 39(1961), 315.
- (76) - R. Muenze e O. Hladik, Radiochemical Studies on Uranium Multiple Fission. 4-Fission Yield of Cu^{67} , *Kernenergie*, 6 (1963), 225.
- (77) - W.E. Nervik, Spontaneous Fission Yields of Cf^{252} , *Phys. Rev.*, 119 (1960), 1685.

- (78) - A. Săndulescu, R.K. Gupta, W. Scheid e W. Greiner, Synthesis of New Elements within the Fragmentation Theory: Application to $Z=104$ and 106 Elements, *Phys. Lett.*, 60B(1976), 225.
- (79) - J. Maruhn e W. Greiner, Theory of Fission-Mass Distributions Demonstrated for ^{226}Ra , ^{236}U , ^{258}Fm , *Phys. Rev. Letters*, 32 (1974), 548.
- (80) - R.K. Gupta, W. Scheid e W. Greiner, Theory of Charge Dispersion in Nuclear Fission, *Phys. Rev. Letters*, 35(1975), 353.
- (81) - R.K. Gupta, Theory of Mass-Yield Distribution in "Quasi-Fission" Reactions, *Z. Phys.*, A281 (1977), 159.
- (82) - N. Bohr, The Penetration of Atomic Particles Through Matter, *Mat. Fys. Medd. Dan. Vid. Selsk.*, 18 (1948), 8.
- (83) - J.D. Jackson, Classical Electrodynamics, John Wiley (5a. ed., 1966), 451.
- (84) - L.T. Chadderton e I. McC. Torrens, Fission Damage in Crystals, Methuen (London, 1969).
- (85) - H.A. Bethe e J. Ashkin, Passage of Radiations Through Matter, em *Experimental Nuclear Physics* (E.Segré ed.) (Vol. 1), John Wiley (N.Y., 1953), 166.
- (86) - M.G. Mano, The Retardation of α Rays. A Comparison Between Theory and Experiment, *C.R. Acad. Sci.*, 197(1933) ; 319; Absorption of α rays, *Ann. de Physique*, 1 (1934) , 407.
- (87) - W. Whaling, The Energy Loss of Charged Particles in Matter, em *Handbuch der Physik* (Springer), Vol. 34 (Berlin, 1958), 193.
- (88) - M. Bogaardt e L. Vigneron, Calcul, Entre $0,1$ MeV et 8 MeV, de la Relation Énergie-Parcours des Protons, en Fonction

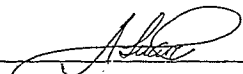
de la Composition Chimique d'une Emulsion Photographique. Calcul Correspondant pour les Deuterons, les Tritons, les Particules α . Comparaison avec les Mesures Expérimentales dans le Cas de l'Emulsion Ilford C₂, *J. Phys. Radium* 11 (1950), 652.

(89) - W.H. Barkas, Nuclear Research Emulsions (Vol. 1), Academic Press (N.Y. 1963), Capítulos 9 e 10.

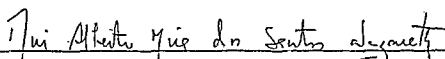
Tese Apresentada ao Centro Brasileiro de Pesquisas Físicas
do Conselho Nacional de Desenvolvimento Científico e Tec-
nológico, fazendo parte da Banca Examinadora os seguintes
professores:



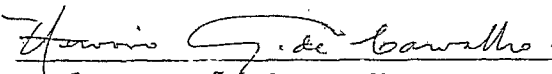
Jader Benuzzi Martins Presidente



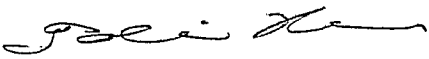
Achilles Suarez



Rui Alberto Mira dos Santos Nazareth



Hervásio Guimarães de Carvalho



Takeshi Kodama

Rio de Janeiro, 14 de dezembro de 1978