Estudos sobre traços anômalos observados em emulsões nucleares carregadas com urânio

4

Candidato: Julio Cesar Hadler Neto Orientador: Prof. Dr. Cesare M.G. Lattes

A Sissi e ao Alfredo

•

·

.

-.

.

,

AGRADECIMENTOS

A todo o pessoal do nosso departamento não sõ pelo empenho a que se prestaram nas valiosissimas criticas e sugestões ao nosso trabalho como também apoio humano que sempre nos dedicaram.

Ao Cesar, nosso orientador, pelo clima construtivo que soube criar neste departamento, pelas críticas precisas, pelas apostas perdidas, e pelos ensinamentos (que não estão nos livros).

A Maria Divanilde, que analisou ao microscópio a ma<u>i</u> or parte dos dados desta tese, pela sua disponibilidade e eficiência. Uma colaboradora excepcional.

A Marilena pela sua paciencia e presteza com que se<u>m</u> pre nos ajudou e pelo excelente trabalho de datilografia.

Ao Sr. Juvenal e todo o pessoal da oficina mecânica e ao Sr. Cicero e todo o pessoal da vidraria pela grande ajuda que nos prestaram.

Ao amigo Bigazzi pelo incentivo e orientação em nossos primeiros passos dentro da Cronologia.

Aos Profs. Martins e M. Damy, com quem iniciamos no<u>s</u> sa vida acadêmica, pelas colaborações e exemplos dados.

A todo o pessoal do reator do Instituto de Energia <u>A</u> tômica e especialmente a R. Fulfaro pela simpatia com que nos rec<u>e</u> beram e pela eficiente colaboração.

Ao grupo do Prof. H. G. De Carvalho, CBPF, Rio de J<u>a</u> neiro, especialmente ao Jader e ao Odilon pelo acolhimento e pelos ensinamentos no carregamento de emulsões.

INDICE

PREFÁCIO	• • • • • • • • • • • • • • • • • • • •	pag.	- 1
INTRODUÇÃO	· · · · · · · · · · · · · · · · · · ·	pag.	3
CAPÍTULO 1:	Emulsões: carregamento com urânio e sua m <u>e</u>		
	dida	pag.	8
CAPITULO 2:	O Processamento Fotográfico	pag.	17
CAPÍTULO 3:	A observação dos traços anômalos	pag.	22
CAPÍTULO 4:	Características dos traços anômalos	ÿâÿ.	26
CAPITULO 5:	Testes adicionais e conclusões	pag.	36
APENDICE 1:	As pesagens efetuadas durante o carregame <u>n</u>		
	to da emulsão	pag.	43
APÊNDICE 2:	Verificação se os traços anômalos se com-		
	portavam como traços de partícula alfa emi		
	tidos apõs a secagem da emulsão	pag.	45
APÊNDICE 3:	Cālculo do fator de contração sofrido pe-		
	las emulsões R55, R19 e R53	pag.	49
APÊNDICE 4:	Probabilidade de que traços emitidos iso-		
	tropicamente com alcance R sejam interio-		
	res a uma emulsão de espessura E (E > R)	pag.	52
BIBLIOGRAFIA.		pag.	53

Em novembro de 1972 foi nos proposto como trabalho de tese de mestrado medir a constante de desintegração do 238 U por -fissão espontânea ($\lambda_{\rm F}$).

Utilizariamos para tal a técnica experimental comume<u>n</u> te conhecida como sanduiche mica-urânio utilizando porém, diferentemente de outros que a empregaram⁽¹⁾⁽²⁾⁽³⁾, emulsão nucleares carregadas com quantidade conhecida de urânio como calibrador da dose de neutrons lentos a que seriam submetidas micas e alvos de urânio.

Apōs aproximadamente 6 anos de trabalho, obtivemos o resultado de nossa medida de λ_F e redigimos nossas conclusões. No entanto, por razões acadêmicas optamos por apresentar como tese de mestrado apenas a parte do trabalho referente ao estudo sobre traços anômalos observados em nossas emuisões carregadas com urânio.

Evidentemente poderĩamos ter feito a medida de λ_F em 2 ou 3 anos. Para isto bastaria que: tivēssemos confiado somente no carregamento das emulsões atravēs do mētodo gravimētrico, não considerāssemos os traços anômalos jā que aparentemente não eram fissões e diminuíssemos,por exemplo, pela metade o número de traços observados.

É claro que este procedimento somente poderia ter algum sentido se o nosso trabalho fosse uma das primeiras medidas de λ_F efetuadas.

No entanto havendo mais de três dezenas de medidas de λ_F publicadas, sendo os resultados inconsistentes e objeto de discussão entre o geocronologistas, a pertinência de uma nova medida vinculava-se à possibilidade de atacar erros sistemáticos inerentes ao método utilizado e ao cuidado que fosse tomado durante a experiência e análise dos: dados. Foi o que fizemos dentro de nossas limitações.

Gostariamos de agradecer não sõ aqueles que nos acom panharam de perto no decorrer do trabalho, de quem recebemos muito mais que preciosas sugestões e apoio, mas também à tolerância daqueles que embora não nos acompanhassem de perto, se dispuseram a ouvir nas diversas vezes que solicitaram os nossos responsāveis e entenderam as razões que motivaram a nossa demora.

INTRODUÇÃO

Na época em que iniciamos o nosso trabalho já haviam sido efetuadas cerca de três dezenas de medidas de $\lambda_{\rm F}$, com as mais variadas técnicas experimentais, e os resultados se agrupavam entre 5 - 11 x 10⁻¹⁷ a⁻¹. Observava-se que haviam dois valores de $\lambda_{\rm F}$ obtidos com maior frequência: em torno de 7,0 x 10⁻¹⁷ a⁻¹ (1)(2)(3) e em torno de 8,5 x 10⁻¹⁷ a⁻¹ (4)(5)(6).

Deste modo medidas de idades de minerais empregando o metodo do traço de fissão - metodo que tem sido usado crescent<u>e</u> mente nos ultimos ¹10 anos - difeririam de \sim 20% para os mesmos d<u>a</u> dos experimentais.

O ajuste de $\lambda_{\rm F}$ através do confronto entre idades de minerais obtidas através dos métodos do traço de fissão e radiométricos (K-Ar; Rb-Sr) mostrava resultados como o de Fleisher⁽¹⁾ e de Centner⁽⁷⁾, onde, respectivamente, $\lambda_{\rm F} = 3,9$ e 8,5 x 10^{-17} a⁻¹ tornavam concordantes as idades obtidas.

Embora não queiramos, aqui, entrar na estrutura fina do método do traço de fissão hã que se mencionar que os resultados de Gentner foram obtidos levando-se em conta a perda de im<u>a</u> gem latente dos traços durante sua história geológica (fading).

Dentro deste quadro que se dispunha à época em que <u>i</u> niciamos o trabalho parecia bastante pertinente uma nova medida de $\lambda_{\rm F}$ que levasse em conta uma possível causa de erro sistemático inerente ao método do traço de fissão: a calibração da dose absoluta de neutrons lentos com que os minerais eram irradiados - para se obter a idade e $\lambda_{\rm F}$ através do método do traço de fissão ut<u>i</u> liza-se o mesmo par de equações, com exceção à fonte de urânio que no segundo caso é externa, e irradia-se o mineral com neutrons lentos.

Neste tipo de experiência, a vantagem do método de c<u>a</u> libração empregado, através de emulsões carregadas com urânio, sobre as medidas convencionais de dose de neutrons lentos por reações

- 3 -

de ativação era evidente, pois quaisquer anomalias que o fluxo de neutrons apresentasse teria o mesmo efeito sobre os atomos de ur<u>a</u> nio dos dois detetores de fissão justapostos: as micas e as emulsões carregadas.

O emprego de emulsões nucleares em nosso trabalho r<u>e</u> queria que se conseguisse carregã-las com urânio dentro de l - 2% de precisão e que para usã-las como um dosimetro de neutrons lentos se conseguisse revelã-las de modo que somente os traços de fragmentos de fissão fossem desenvolvidos apesar da presença de um fortíssimo fundo de traços de partículas alfa.

Como não era usual em nosso departamento o uso de <u>e</u> mulsões convenientes ao trabalho que desenvolviamos, sensiveis apenas a particulas alfa e a eventos mais ionizantes, fizemos um pequeno estágio no grupo do Prof. H.G. de Carvalho, CBPF, Rio, onde aprendemos como carregar emulsões com urânio, sua manipulação, etc..

No estágio inicial do trabalho com emulsões constru<u>i</u> mos um ambiente para secagem das emulsões e cuidamos de adaptar a técnica de carregamento empregada no Rio - emulsão com espessura final de \sim 150µ e sem suporte - para as condições que desejávamos ou seja emulsão com espessura de \sim 50µ, o que facilitou bastante a revelação das mesmas, colada sobre um suporte conveniente.

Efetuamos inúmeros testes de carregamento, nos quais sempre nos guiamos através dos resultados empíricos. Após a par te química do carregamento, secagem e revelações de diversos ped<u>a</u> ços de emulsão carregada, era o confronto entre a medida do carr<u>e</u> gamento através da atividade alfa do urânio, observada ao microscópio, e entre a medida do carregamento através do método gravim<u>é</u> trico que guiava o acerto de nossas manipulações desde a adaptação jã comentada, como também sobre a parte química do carregamen<u></u> to e as tentativas de otimizar o processo de revelação das emulsões carregadas.

Estes testes demoravam entre 15 e 40 dias de trabalho dependendo da precisão com que se queria determinar cada car

- 4 -

regamento. Após efetuarmos 12 testes de carregamento, no decor rer dos quais fomos sanando diversos tipos de erros inerentes ao uso de emulsões, pudemos ter certeza de que dominávamos a técnica de carregar emulsões dentro de 1 - 2% de precisão.

Para dominarmos a revelação com discriminação alfafissão fizemos uma série de revelações testes enfraquecendo gradativamente o banho revelador que desenvolvia bem os traços de partículas alfa do urânio.

Atravēs da anālise ao microscopio observou-se que <u>e</u> mulsões irradiadas ao reator apresentavam densidade superficial de fissões compatível com as irradiações. Porem observou-se também traços cuja densidade de grãos era sensivelmente menor que a das fissões. Pensamos inicialmente se tratar de traços de partícula alfa do urânio, ja que estes traços eram observados independentemente da irradiação ao reator.

No entanto após um exame um pouco mais detido, observou-se que estes traços (traços anômalos) apresentavam distribuição angular anisotrópica o que colocava dúvidas sobre a possibilidade de serem alfas do urânio.

A calibração da dose absoluta de neutrons através - de emulsões carregadas era um dos pontos fundamentais de nossa medida de $\lambda_{\rm F}$.

A observação sistemática destes traços anômalos em nossas emulsões, em densidades superficiais de $10^2 - 10^3$ cm⁻² in troduzia incertezas inaceitáveis na calibração da dose de neutrons. Isto porque limitados por condições experimentais, quan to a densidade superficial total de fissões a ser obtida, dificilmente conseguiríamos fazer com que os traços anômalos represen tassem menos de 10% daquele total.

Não nos restou outro caminho senão estudar os traços anômalos. Após cerca de um ano e meio,de demoradas medidas ao microscópio e inúmeros testes experimentais, verificamos que uma possível explicação para os traços anômalos, que tornava claro

- 5 -

uma serie de características que eles apresentavam, era a de que eram traços de particula alfa do urânio emitidos durante a secagem da emulsão e que por razões que não investigamos tinham grãos tão fortemente ionizados que eram desenvolvidos ate em revelações proprias para fragmentos de fissão.

Verificamos também que a diferenciação, ao microscópio, entre fissões e anômalos podia ser feita com precisão e que portanto a calibração da dose absoluta de neutrons era poss<u>í</u> vel de ser feita com nossas emulsões carregadas.

Gostariamos, aqui, de salientar que mais ou menos na mesma época èm que estávamos iniciando nossos estudos sobre os traços anômalos, recebemos uma cópia de um trabalho efetuado pelo grupo do Prof.H.G. De Carvalho⁽⁸⁾ cujos resultados não eram inteiramente dispares das nossas observações.

Analisando emulsões do tipo KO, da Ilford, carregadas com uranio e armazenadas durante ate 8 anos, observou-se, além dos traços de fissão espontânea, traços de alcance muito curto ($\sim 9 \mu$). Uma possível explicação para o aparecimento – destes traços, sugerida também por outras evidências experimentais, é a emissão espontânea por nucleos pesados de elementos com massa entre 20 e 70.

Empregamos o mesmo tipo de emulsão e uma técnica de carregamento, a menos de pequenas modificações que introduzimos, bastante semelhante à do trabalho acima citado. Embora o alcance dos nossos traços anômalos (6 a 30μ) não fosse incompatível com os 9μ acima, não era simples (e nem nosso objetivo) verificar se os nossos traços eram os mesmos observados por De Carvalho e colaboradores.

O estudo dos traços anômalos se fez necessário, mas era marginal em relação à medida de λ_F ; estudamo-los apenas com o intuito de verificar a confiabilidade da calibração da dose de neutrons empregada por nos.

Analisando emulsões armazenadas desde alguns dias

- 6 -

ate \sim 1 ano e reveladas sob diversas condições, pudemos verificar que os traços anômalos apresentavam densidades superficiais de no minimo 30 vezes maiores do que a que se verificaria se tivessem sido emitidos com a meia-vida estimada por De Carvalho e colaboradores.

Deste modo podemos apenas afirmar, baseado em inumeras evidências experimentais, ver capitulo 4, que os traços anômalos que observamos, pelo menos em sua grande maioria, apresentam caracteristicas tais que so podem ser entendidas dentro da <u>ex</u> plicação que propusemos.

Sendo traços de partícula alfa detectados durante a secagem da emulsão, sua densidade superficial depende também da duração do intervalo de tempo durante a secagem no qual a emulsão os detecta não havendo então sentido em associá-los a uma consta<u>n</u> te de desintegração.

CAPÍTULO 1

Emulsões^{*}: carregamento com urânio e sua medida

O carregamento de emulsões nucleares é feito, basic<u>a</u> mente, adicionando-se uma quantidade conhecida da substância que se deseja introduzir na emulsão sob a forma de gel a $\sim 50^{\circ}$ C (a esta temperatura o gel liquefaz-se). E em seguida faz-se a secagem da emulsão carregada.

Como queríamos fazer o carregamento com urânio, esc<u>o</u> lhemos a emulsão tipo KO da Ilford, sob a forma de gel. Esta <u>e</u> mulsão tem uma faixa de sensibilidade conveniente: deteta protons até 5 M.e.v. ($\beta \ge 0,1$), partículas alfa e outras partículas mais ionizantes. Além disso se quer medir o carregamento pelo método, gavimétrico e também através da atividade alfa decorrente da pr<u>e</u> sença de determinada quantidade de urânio na emulsão, a escolha de uma emulsão não sensível a raios beta (-) é mais conveniente.

Julgamos conveniente fazer emulsões com espessuras m<u>e</u> nores que 60µ no sentido de se simplificar as revelações. Isto porque a difusão do agente revelador em espessuras desta ordem e bastante rapida evitando-se assim a laboriosa técnica de revelação com 2 banhos reveladores.

A seguir descreveremos a técnica usada no carregame<u>n</u> to e os dois métodos empregados para a sua medida: o gavimétrico e através da atividade alfa do urânio contido na emulsão.

*A técnica do carregamento usada neste trabalho, a menos de pe quenas adaptações introduzidas, foi desenvolvida pelo grupo do Prof. H.G. de Carvalho, CBPF, Rio de Janeiro.

- 8 -

A) Descrição do Carregamento.

1) Colocamos em um frasco e pesamos em uma balança de precisão 0,27 ml de nitrato de uranila 0,125 M. Juntamos igual quantidade de citrato de amônea 0,25 M. e adicionamos algumas gotas de hidróxido de amônea (pH \sim 11) até que o pH do "complexo de urânio" ficasse \sim 5.

2) Colocamos em outro frasco uma quantidade convenien te de gel (para obter uma emulsão com $\sim 55\mu$ de espessura, na área desejada, após a secagem) e o aquecemos, em banho-maria a 50⁰C. <u>A</u> pós alguns minutos de aquecimento o gel se liquefaz. Em seguida adicionamos o complexo de urânio ao gel e agitamos suavemente o frasco no sentido de homogeneizar a mistura.

3) Em seguida a "emulsão carregada" foi cuidadosamente despejada numa "piscina" nivelada de lucite e vidro especialmen te preparado para carregamento (da litord), tigura 1,, e colocada para secar num ambiente a ∿ 28⁰C e 40% de umidade relativa.



figura 1: A) Piscina sem fundo de lucite, B) Vidro especial para carregamento, da Ilford (15cmx15cmx0,12cm), C) Mesa niveladora de lucite. (Obs.; a junção das peças A) e B) era feita com silicone, para impedir vazamentos de emulsão durante a secagem).

9 -

4) Após a secagem por períodos \leq 15 horas, tinh<u>a</u> mos então a película de emulsão carregada colada sobre um suporte de vidro. Os diversos pedaços de emulsão, que usamos neste trabalho, quer na medida da quantidade de urânio,quer na calibr<u>a</u> ção do feixe de nêutrons do reator, foram cortados (não com muita arte) com um cortador de diamante.

O armazenamento da emulsão foi feito numa geladeira (t \sim 5⁰C, umidade relativa \sim 45%)

B) <u>Medida do carregamento de urânio da emulsão atra</u> ves do metodo gravimetrico

A quantidade de urânio na emulsão

A massa de 0,27ml de nitrato de uranila (\sim 0,125M) pesou $\ddot{}$:

0,27m1 de N.U. = $(0,29307 \pm 0,00013)g$

A quantidade de urânio em nosso nitrato de uranila (0,125M.) foi calibrada pesando-se aproximadamente 10ml de nitrato -e uranila que foi armazenado num secador e levado posteriormente ao forno durante 5 horas a 800° C. Após isto todo o nitrato de urânio se transformou em U₃O₈ que é um composto bastante estável. A pesagem do U₃O₈ nos deu então a massa de urânio relativamente à massa do nitrato de uranila 0,125M.

Através deste procedimento obtivemos que:

 $(10,38644 \pm 0,00012)g$ de N.U. = $(0,31623 \pm 0,00005)g$ de U.

as pesagens referentes ao carregamento da emulsão atravês de método gravimétrico estão em detalhes no apêndice. 1, pag. 43. Daí, a quantidade de urânio contida no complexo de <u>u</u> rânio era = $(8,923 \pm 0,006)$ mg.

Para calcularmos a quantidade de urânio colocada na emulsão temos que considerar o residuo de citrato de amônea + n<u>i</u> trato de uranila, que ficou no frasco em que o complexo de urânio foi preparado. Após alguns dias de secagem (t = 28⁰ C e umidade relativa = 40%) este residuo pesou:

 $Residuo = (0,63 \pm 0,06)mg$

No complexo de urânio (citrato + nitrato) colocamos aproximadamente 0,27ml de citrato de amônea 0,25 M. o que equivale a aproximadamente l6mg de citrato de amônea seco, e colocamos aproximadamente 0,27ml de nitrato de uranila 0,125 M. o que equi vale a \sim 19mg de nitrato de uranila seco.

Então, fazendo o raciocínio em termos de massa, ter<u>e</u> mos no complexo de urânio 46% e 54% em massa de citrato e nitrato respectivamente. Considerando um erro de 10% nesta parte, devido ãs 2 medidas de volume com precisão de 5% (0,01ml) cada, teremos:

 $(0,63 \pm 0,006)$ mg x $(0,54 \pm 0,05) = (0,34 \pm 0,06)$ mg de nit. de uran. seco = = $(0,16 \pm 0,03)$ mg de urânio

Então, a quantidade de urânio colocada na emulsão foi:

 $(8,923 \pm 0,006)$ mg - $(0,16 \pm 0,03)$ mg = $(8,763 \pm 0,036)$ mg

E o número de átomos de urânio colocado na emulsão foi:

 $(2,216 \pm 0,008) \times 10^{19}$

- 11 --

<u>Cálculo das perdas de gel + "complexo de urânio" du-</u> <u>te o carregamento da emulsão</u>

Ao fazer a emulsão há 2 tipos de perdas de gel (sup<u>o</u> mos que a massa e o volume da emulsão seca não são alterados pela pequena quantidade de "complexo de urânio" que lhe acrescentamos):

19) No frasco em que pesamos o gel ficou a quantidade residual de $(54, 0 \pm 0, 1)$ mg de gel seco (ou emulsão).

Como a đensidade da emulsão seca \tilde{e} (3,828 ± 0,018)g/ cm³ e como 10,4g^{*} de emulsão sob a forma de gel, quando seca resu<u>l</u> ta em lcm³ de emulsão seca, então:

 $(54 \pm 0,1)$ mg de emulsão = (0,147 ± 0,001)g de gel

2º) Hã também uma perda de "gel + complexo de urânio" nas bordas da emulsão.

Isto ocorre devido à perda de volume do gel durante a secagem e também porque o gel subiu na parede lateral da "piscina" (fig. 1) quando da sua colocação, pois a inclinamos suavemen te em diversas direções para fazer com que o gel cobrisse toda a sua área.

Esta área lateral (com altura \sim 0,2cm) da emulsão foi cuidadosamente cortada e limpa, e pesou (135 ± 1)mg. Semelhantemente ao item 19), isto equivale a uma perda de gel:

 (135 ± 1) mg de emulsão = $(0,367 \pm 0,005)$ g de gel

Somando as 2 perdas de gel, temos: $(0,514 \pm 0,006)g$

* A precisão desta medida é limitada pelo erro da densidade da emu<u>l</u> são seca, (3,828 ± 0,018)g/cm³, dado pela Ilford.

- 12 -

A massa de gel que foi misturada com o complexo de urânio pesou:

$$ge1 = (8,837 \pm 0,001)g$$

Como 10,4g de gel = 1 cm^3 de emulsão seca, então - (8,837 \pm 0,001)g de gel resulta em (0,850 \pm 0,005)cm³ de emulsão seca.

Então, o carregamento de urânio, em número de ãtomos/cm³, na emulsão foi:

$$N / cm^{3} = \frac{(2,216 \pm 0,008) \times 10^{19}}{(0.850 \pm 0.005) cm^{3}}$$

$$N / cm^3 = (2,606 \pm 0,025) \times 10^{19}$$

O carregamento em número de átomos de urânio/cm², cuja conveniência discutiremos mais a frente, foi feito sabendose que a quantidade de gel que se espalhou sobre a área da "pi<u>s</u> cina", fig. 1, pag. 9

$$(\bar{a}rea = \frac{\pi}{4} (2R)^2 = \frac{\pi}{4} (13,80 \pm 0,05) cm^2 = (149,6 \pm 1.1) cm^2)$$
 foi:

gel - perdas de gel = $(8,837 \pm 0,001)g - (0,514 \pm 0,006)g =$

$$= (8,323 \pm 0,007)g$$

Então, o número de átomos de urânio/cm² colocado na emulsão é dado pela razão entre o número de átomos de urânio col<u>o</u> cado na "piscina" e a sua área:

$$x \frac{(8,323 \pm 0,007)g}{(8,837 \pm 0,001)g} x \frac{1}{(149,6 \pm 1,1)cm^2}$$

$$N_{11}/cm^2 = (1,396 \pm 0,017) \times 10^{17}$$

Cálculo da espessura média da emulsão

A quantidade de gel colocada na piscina, $(8,323 \pm 0,007)$ g, usando a relação: 10,4g de gel = 1 cm^3 de emulsão seca, <u>e</u> quivale a (0,801 ± 0,005) cm³ de emulsão seca.

Então, a espessura média da emulsão é dada por:

 $\overline{E} = \frac{(0,801 \pm 0,005) \text{ cm}^3}{(149,6 \pm 1,1) \text{ cm}^2}$

 $\mathbf{\tilde{E}} = (53, 6 \pm 0, 7) \, \mu$

C) <u>Medida do carregamento de urânio da emulsão atravês</u> da atividade alfa do urânio

Quando se separa quimicamente uma certa quantidade N de átomos de urânio ela contém, além do ²³⁸U, os isótopos ²³⁵U e⁻ ²³⁴U. Estes 3 isótopos de urânio são emissores alfa.

Como o 234 U pertence a cadeia radioativa do 238 U as atividades de ambos serão iguais (N₂₃₈ $\lambda_{233} \simeq N_{234} \lambda_{234}$) por multos anos após a separação química ja que as meias vidas de ambos são maiores que 10⁵ anos.

Então, a atividade alfa de N ãtomos de urânio sep<u>a</u> rados quimicamente serã dada por:

Atividade =
$$N(2C_1 \times \lambda_1 + C_2 \times \lambda_2)$$

onde: C_1 , $\lambda_1 = C_2$, λ_2 são as concentrações isotópicas e constantes de desintegração para emissão alfa do ²³⁸U e ²³⁵U, respectivamente.

Esta atividade vale por muitos anos após a separação química porque os próximos emissores alfa tanto na cadeia de ²³⁸U como na cadeia do ²³⁵U tem meias vidas maiores que 10⁴ anos.

Como:
$$C_1 = 0,9927$$

 $C_2 = 0,0072$
 $\lambda_1 = (4,89 \pm 0,02) \times 10^{-18} (s^{-1}) \times \lambda_2 = (3,09 \pm 0,02) \times 10^{-17} s^{-1}$
Então: Ativ. = N (9,93 ± 0,04) × $10^{-18} (s^{-1})$
 $= N (8,58 \pm 0,04) \times 10^{-13} (dia^{-1})$

O número de alfas/cm² que se acumula na emulsão carr<u>e</u> gada com urânio, apos a sua secagem é dado por:

$$N_{\alpha/cm}^2 = (8,58 \pm 0,04) \times 10^{-13} \times N_{U/cm}^2 \times t$$

onde: t = idade ou tempo de armazenamento da emulsão, em dias, (t≃ O é o instante em que a emulsão ficou seca).

Esta equação nos permitiu obter a quantidade de urânio/cm² (ou por cm³, pois N_{U/cm}2 = N_{U/cm}3 ^{X E}(cm)^{) em nossa emulsão carregada.}

* O arro que atribuimos a λ_1 , fez com que os resultados de 5 entre 7 medidas de que temos conhecimento se sítuem no intervalo por ele delimitado. Medimos o carregamento da emulsão em N_{U/cm}2 porque verificamos em diversas emulsões que carregamos anteriormente que a espessura média obtida através de medidas em pelo menos 3 pedaços cortados de diferentes regiões da emulsão, coincidia, dentro de 3%, com a espessura média calculada da emulsão; evitando assim as trabalhosas medidas da espessura de cada pedaço de emulsão.

Medindo-se, ao microscópio óptico, a densidade supe<u>r</u> ficial de traços de partícula alfa em diversos pedaços da emulsão, fig. 2a,abaixo, processados adequadamente (ver cap. 2, pag. 18) em dias sucessivos, obteve-se que a medida do carregamento de ur<u>â</u> nio através da atividade alfa, fig.2b e tabela 1, resultou em (1,37 ± 0,04) x 10¹⁷ átomos de urânio/cm², que é concordante, dentro de \sim 2%, com o resultado obtido através do método gravimétrico.

Tabela l

Proces- samento	t(dias)	N _α /cm ⁻² (×10 ⁵)	Pelo método dos mí- nimos quadrados ob-
19	0,500	0,725±0,023	1 everse; N/cm ⁻² = a + b.t
29	1,318	1,559±0,038	a≖(0,095±0,036)
30	2,273	2,753±0,067	b=(1,158±0,022)



ig. 2a: Emulsão colada sobre o vidro suporte. Diversos pedaços da emulsão foram cortados e analizados(19 processamento: pedaços 1 20 e 3, etc.).



emulsão

CAPITULO 2

- 17 -

O Processamento Fotográfico

Faremos aqui uma breve descrição dos 3 procedimentos usados neste trabalho:

- 1) Procedimento para partículas alfa de urânio
- 2) Procedimento para fragmentos de fissão
- 3) Procedimento intermediário alfa-fissão ou revel<u>a</u> $c\delta es$ para os traços anômalos.

Inicialmente um comentario e pertinente: a otimização das revelações foi obtida de maneira totalmente empírica.

0 Revelador

O revelador que usamos era composto de: acido bor<u>i</u> co, sulfito de sódio, brometo de potássio e amidol.

() acido bórico e o sulfito de sódio agem como sub<u>s</u> tâncias tampão no ajuste do pH do revelador, que sempre mantiv<u>e</u> mos fracamente acido (pH \sim 6,7). O sulfito tem também a propriedade de proteger o agente revelador da oxidação.

O brometo de potássio, é um inibidor do processo de revelação.

O amidol \vec{e} o agente revelador. Pelo fato dele se oxidar com certa rapidez, perdendo assim seu poder de revelação, usamos água desmineralizada e soluções frescas de revelador. Com estes cuidados, apenas, verificamos que o poder de revelação per maneceu constante por várias horas (t \gtrsim 6hs. a 10⁰C).

A menos deste inconveniente, o amidol apresenta características vantajosas: pequena formação de veu, boa difusibilidade na emulsão, boa densidade de grãos e praticamente não introduz distorções na emulsão, mesmo a grandes concentrações.

1) Procedimento para partículas alfa

As emulsões carregadas usadas na calibração da qua<u>n</u> tidade de urânio/cm² através da medida da atividade alfa, foram processadas^{*} do seguinte modo:

	Revelador (IL)		temperatura	tempo
Revelação	ac. bórico: sulf. de sódio: brom. de potassio: amidol:	12g 7g 0,2g 2,5g	∿ 20 ⁰ C	∿ 50'
	Freiador (1L)			
Freiame <u>n</u> to	sulf. de sódio: ac. acético até pH	5g ∿4	∿ 20 ⁰ C	~ 5'
	Freiador (1L)			
Fixação	hipossultito de sõdio: sulf. de sõdio:	400g 5g	∿ 20°C	∿ 25'

Apôs a fixação as emulsões foram lavadas em ãgua desmineralizada durante $\sim 20'$ a $\sim 18^{0}$ C, imersas em seguida num banho de ãgua-alcool etílico-glicerina (composição em volume: ãgua 20%, alcool etílico 75% e glicerina 5%) durante $\sim 10'$ a $\sim 16-17^{0}$ C e então postas para secar.

2) Procedimento para fragmentos de fissão

As emulsões carregadas usadas para medir o dose absoluta de nêutrons com que irradiamos as micas, foram proces

*Nesta revelação e nas que se seguem, todos os banhos de revel<u>a</u> dor, fixador, lavagem, etc., foram suavemente agitados.

- 18 -

	Revelador (1L)	Temperatura	tempo
Revelação	ac. bórico: 6g sulf. de sódio: 1,7g brom. de potássio: 1,2g amidol: 0,3g	∿ 8 ⁰ C	240'
	Freiador (1L)		
Freiamento	igual ao da revelação para alfa	9-10 ⁰ C	15'
	Fixador (1L)		
Fixador	igual ao da revelação para alfa	10-12 ⁰ C	40 '

O tratamento a que as emulsões foram submetidas apõs a fixação foi igual ao do procedimento para alfa a menos da temp<u>e</u> ratura que fizemos subir gradativamente até \sim 15⁰C.

Cabe aqui uma observação sobre o tempo de revelação que usamos. A partir de 60' de banho revelador os traços de fi<u>s</u> são jã estavam desenvolvidos. Estendemos o tempo de revelação <u>a</u> tẽ 240' para facilitar o trabalho de microscopia:

i) a imagem dos traços de fissão ficava com uma densidade de grãos tal que era possível fazer sua contagem com aumen tos \sim 250 vezes.

 ii) como o aumento da densidade de grãos dos traços anômalos com o tempo de revelação era significativamente menor que os dos traços de fissão, a diferenciação anômalo-fissão se tornava mais fâcil para tempos de revelação mais longos. Consideramos procedimento para os traços anômalos os que nos permitiram diferenciá-los e estudá-los na presença de tr<u>a</u> ços de fissão e/ou traços de partículas alfa.

Então consideramos revelações deste tipo aquelas que:

i) desenvolveram tão fracamente os traços de particu
 la alfa que estes puderam ser diferenciados dos traços anômalos.
 Como por exemplos podemos citar:

a) revelação à que foram submetidas as emulsões T31
 a T34, Apêndice 2, pag. 48:

	Revelador (1L)		temperatura	tempo
Revelação	ac. bōrico: sulf. de sōdio: brom. de potāssio: amidol:	7g 2,1g 0,8g 0,53g	17 ⁰ C	60'-240'

b) revelação a que foram submetidas as emulsões
 R55 e R19, cap. 4, pag. 26:

	Revelador (1L)		temperatura	tempo
Revelação	ac. bórico: sulf. de sódio: brom. de potássio: amidol:	6,5g 1,5g 1,0g 0,3g	17 ⁰ C	240'

As etapas seguintes a que as emulsões foram submet<u>i</u> das(freiamento, fixação, lavagens, etc.), a menos da temperatura quemmantivemos constante em 17⁰C, foram iguais ãs do procedimento para partículas alfa.

	Revelador (lL)		Temperatura	Tempo
Revelação	ac. bórico: sulf. de sódio: brom. de potássio: amidol:	6,5g 1,5g 1,0g 0,3g	10 ⁰ C	240'

As etapas seguintes a que a emulsão foi submetida, a menos da temperatura que fizemos subir gradativamente até \sim 17⁰C, foram iguais às do procedimento para fragmentos de fissão.

- 22 -

CAPITULO 3

A observação dos traços anômalos

Para a utilização, neste trabalho, de emulsões nucleares carregadas com urânio como detetor de fragmentos de fi<u>s</u> são (calibração da dose de neutrons) era necessária processálas de modo a discriminar os traços de partículas alfa do urân<u>i</u> o dos traços de fissão.

O que se fez para se conseguir tal processamento foi enfraquecer gradativamente a revelação que desenvolvia bem os traços de partícula alfa de urânio. Isto foi feito: diminu indo-se a quantidade do agente revelador, o amidol; aumentandose a quantidade do inibidor do revelador, o brometo de potássio, e abaixando-se a temperatura da revelação (mantendo-se sempre o pH \lesssim 7).

Nos testes de revelação utilizamos algumas emulsões carregadas com $\sim 10^{17}$ ātomos de urânio/cm², que após algumas s<u>e</u> manas de armazenamento teriam $\sim 10^7$ alfas/cm² potencialmente re-velâveis e algumas emulsões carregadas, irradiadas com neutrons lentos no reator do I.E.A..

Esperava-se que atingida uma revelação onde se anulassem totalmente os traços de alfa de urânio, se estaria próximo de uma boa revelação para fragmentos de fissão, em nossas emulsões carregadas.

Observou-se, porēm, tanto nas emulsões irradiadas com neutrons como nas que foram apenas armazenadas, que o número de alfas/cm² diminuiu rapidamente com o enfraquecimento da r<u>e</u> velação,mas traços com alcance de $\sim 20\mu$, com número total de grãos igual a ~ 20 ainda estavam presentes em densidades superficiais da ordem de 10^3 /cm² quando nossos processamentos teste se aproxi mavam de processamentos padrão para fragmentos de fissão⁽⁹⁾. Inicialmente pensou-se que estes traços eram alfas de urânio não apagadas pelas revelações; pelo menos não eram, em sua maioria, fragmentos de fissão pois apareciam em nossas emulsões carregadas independentemente da irradiação com neutrons. No entanto, em duas experiências efetuadas verificou-se que estes traços, que denominamos anômalos, não se comportavam como particulas alfa do urânio emitidas após a secagem da emulsão. (Ver apêndice 2, pag. 45).

Diferenciação ao microscópio, entre traços anômalos e de fissão e entre anômalos e de partícula alfa.

O critério de diferenciação anômalos-fissão e anôm<u>a</u> los-alfa empregado era baseado na diferença de densidade de grãos que os traços apresentavam sob determinadas condições de process<u>a</u> mento.



figura 3: Histograma de nº de grãos dos traços de fissão e anômalos

Num processamento típico destes testes, fig. 3 as fissões observadas tinham número médio de grãos e alcance médio iguais a 44,0 e 23,7µ, respectivamente, enquanto que os anômalos ti nham 17,2 e 18,8µ, respectivamente, ver também foto nº 1, pag. 24.

Num processamento em que as partículas alfa do urânio apareciam próximas ao mínimo de ionização, a diferenciação anômalos-alfa empregada era possível de ser feita pois nestes casos os enômelos apresentavam densidade do grãos bem maior que as alfa. ver foio nº Z. apaixo.

E claro que este critório é arbitrário e sujuito a identificações equivocadas, porém era o mais simples e fácil de aplicar. Enquante o utilizávamos observamos, no entanto, que os traços anômalos apresentavam certas características muito conven<u>i</u> entes para as desejadas diferenciações:

a) ~ 70% deles apresentavam ângulo zenital próximo de 90⁰, ou seja, quase paralelos ao plano da emulsão, alcance entre 20 e 30µ e densidade de grãos ~ lg/µ, como o anômalo da foto nº l Abaixo. *

b) 20% deles apresentavam ângulo zenital \sim 70°, altance entre 12 e 20µ e densidade de grãos entre 1,1 e 1,3/µ , c<u>o</u> mo o anômalo da foto nº 3.



foto nº 1: Traço de fissão e anômalo; foto nº 2: Traço anômalo e de particula alfa; fotos nºs 3 e 4: Traços anômalos

- 24 -

c) \sim 10% deles apresentavam ângulo zenital \sim 50°, a<u>l</u> cance entre 6 e l2µ e densidade de grãos \gtrsim 1,5g/µ, foto nº 4, pag. 24.

Observou-se que os traços anômalos deste grupo, not<u>a</u> damente os menores, podiam ser confundidos com traços de fissão, porém nestes casos utilizamos como critério de diferenciação o a<u>l</u> cance dos traços jã que as fissões contidas no interior da emulsão tinham alcance de $\sim 24\mu$.

E claro que os traços anômalos deste grupo que eram superficiais à emulsão não podiam ser diferenciados das fissões, no entanto estes casos eram poucos e nas condições em que trabalhamos podiam ser classificados como fissões sem prejuizo à nossa anâlise, ver capítulo 5, pag. 40.

CAPÍTULO 4

Características dos traços anômalos

Para se estudar as características dos traços anôm<u>a</u> los, tomamos 3 pedaços de uma mesma emulsão-mãe (cujo carregamento era \sim 1,4 x 10¹⁷ átomos de urânio/cm²), dois dos quais, os pedaços ou melhor,as emulsões R55 e R53, como as denominaremos daqui para frente, foram irradiadas com nêutrons frios.

As emulsões R55 e R19, e a R53 foram reveladas nas condições especificadas nas páginas 20 e 21, respectivamente.

A revelação à temperatura mais alta foi feita como uma tentativa de se obter, nas emulsões R55 e R19, traços de par tículas alfa do urânio em mínimo de monização, além dos traços <u>a</u> nômalos e dos de fissão.

As revelações foram feitas quando as emulsões tinham \sim 5 meses de armazenamento, então independentemente da irr<u>a</u> diação com nêutrons, as emulsões acima, nesta época, tinham \sim 10⁷ alfas/cm² e \sim 5 fissões espontâneas/cm².

As emulsões R55, R53 e R19 foram analisadas por 2 observadores que mediram alcance, ângulo zenital, número de grãos e profundidade dos traços na emulsão em <u>todos</u> os traços que apar<u>e</u> ceram durante as suas varreduras ao microscópio.

Para se calcular o alcance de um traço observado ao microscópio, usamos:

Alcance =
$$\sqrt{x^2 + (z \times FC)^2}$$

onde:

- x = medida da projeção do traço sobre o plano de emulsão
- z = medida da projeção do traço num plano perpendi cular ao plano da emulsão.

FC= fator de contração da emulsão, que foi tomado

As medidas de x foram feitas com uma ocular com filar acoplada ao microscópio, com precisão de ∿ 1/l5µ, e as medidas de z com um micrômetro de precisão acoplado ao microscópio, cuja precisão era 0,5µ.

Encontramos nas emulsões R55 e R53 traços que classificamos como anômalos e fissões, e na emulsão R19 (revelada em condições iguais à R55) traços que classificamos como anômalos e alfa de urânio.

Atribuímos a desigualdade de comportamento (R55 não registrou traços de alfa) dessas regiões adjacentes da mesma emulsão mãe ãs suas diferentes histórias. Enquanto a R19 foi apenas armazenada ã baixa temperatura, a R55 sofreu algum tratamento térmico durante a irradiação (temperatura $\sim 28^{\circ}$ C, t_{irr}. \sim 2 hs.) e durante o encapsulamento e transporte.

a) Densidades superficiais de traços

As emulsões R55 e R53 eram pedaços da emulsão R5 que foi irradiada com neutrons em condições tais que deveria ter uma densidade superficial de traços de fissão \sim 1,9 x 10³/ cm² (carregamento \sim 1,4 x 10¹⁷ ãtomos de urânio/cm², $\phi \sim$ 1,9 x 10⁹ neutrons/cm², $\sigma_{fis} \sim 10^3$ barns).

As densidades superficiais dos traços observados foram: R55: $N_{fis.} = (2,3 \pm 0,2) \times 10^3 / \text{cm}^2$ $N_{an.} = (1,8 \pm 0,2) \times 10^3 / \text{cm}^2$ R53: $N_{fis.} = (2,1 \pm 0,2) \times 10^3 / \text{cm}^2$ $N_{an.} = (0,8 \pm 0,1) \times 10^3 / \text{cm}^2$ R19: $N_{alfa} = (0,4 \pm 0,1) \times 10^3 / \text{cm}^2$ $N_{an.} = (1,5 \pm 0,2) \times 10^3 / \text{cm}^2$

- 27 -

Como as revelações a que foram submetidas as emulsões, pags. 20 e 21, eram "super" revelações para fragmentos de fissão, d<u>e</u> veria se esperar que as densidades superficiais das fissões fossem independentes da revelação e compativeis com a esperada pelas cond<u>i</u> ções de irradiação, o que se verifica dentro de \sim 10%.

As densidades superficiais dos traços classificados como anômalos, porém, variam de um fator ∿ 2 nas duas emulsões reveladas diferentemente. E são compatíveis nas emulsões reveladas em iguais condições (R19 e R55).

b) <u>Distribuição dos traços em profundidades</u>.

Poderia ocorrer, devido o erro sistemático ocorrido na revelação, que tomássemos por anômalo alguma fissão sub-revel<u>a</u> da (ou por fissão algum anômalo super-revelado) em emulsões que <u>a</u> presentassem anômalos e fissões. E isto poderia ocorrer se houvesse, por exemplo, dificuldade de penetração do agente revelador na emulsão, ocasionando um gradiente de revelação na direção perpendicular ao plano da emulsão. Se isto ocorresse, deveriamos ter um maior número de anômalos (traços com menor densidade de grãos) próximo ao vidro superte da emulsão e um maior número de fissões próximo à outra superficie da emulsão, aquela que fica em contacto com o banho revelador.

Observa-se nas figuras 4a,b, pag. 29, onde reproduzimos o comportamento de parte dos traços que analizamos, na emulsão R55, em função da altura de seus pontos médios (tomando-se o vidro suporte como referência), que os traços de fissão e anômalos se di<u>s</u> tribuem de maneira razoavelmente uniforme em relação à altura da emulsão.

- 28 -



figura 4: Histograma de altura na emulsão de traços anômalos e de fissão.

c) Alcance dos traços.

Os resultados de alcance médio dos fragmentos de fi<u>s</u> são em nossas emuisões, da ordem de 24µ, estão de acordo com os de outros trabalhos⁽⁸⁾.

O alcance não serve como critério de diferenciação pois anômalos e fissões tem alcances médios próximos, figs. 5a e b, pag. 30.

Os traços de particula alfa na emulsão R19 estão em "minimo de ionização" (alcance \sim 12µ e número médio de grãos \sim 8). O alcance médio dos traços anômalos, nesta emulsão, é de \sim 20µ, porém, como os dois histogramas, figs. 5c e d, apresentam grande dispersão dos alcances em torno dos valores médios, verifica-se que o alcance não é um critério preciso de diferenciação alfa-anômalo.



- 30

;

figura 5: Histogramas de alcance dos traços de fissão, anômalos e de partícula alfa

d) Distribuições angulares dos traços.

As distribuições angulares zenitais dos traços de alfa do urânio e das fissões do 235 U induzidas por neutrons frios (E_n = 0,008 e.v.) devem ser isotrópicas.

Nestas condições o histograma da distribuição angular zenital em função de cos θ , deve revelar uma distribuição uniforme, ou seja, devemos obter o número de traços por intervalo de cos θ em torno do número médio de traços (número total de traços/número de intervalos), independentemente do ângulo zenital.

Os histogramas de distribuição angular de todos os traços (interiores ã emulsão e superficiais) encontrados nas emu<u>l</u> sões R55, R53 e R19 e classificados como fissões, anômalos e alfas estão nas figuras 6a, b, c, d, e e f, pag. 32.

Nestes histogramas, devemos ter erros sistemāticos – nos dois extremos de cos 0 . Para cos $\theta \approx 1$ temos maior probabi lidade de perder traços numa varredura ao microscópio, e para cos $\theta \approx 0$ a medida da projeção do traço na direção z e da ordem do e<u>r</u> ro do micrômetro e portanto possível de ser incorreta.

Verificamos, nas figuras abaixo citadas,que as distribuições angulares de fissões e alfas são aproximadamente unifor mes, e que as dos anômalos, nas 3 emulsões, são concordantes entre si e não uniformes. Esta última afirmativa pode ser feita visto que os erros sistemáticos levantados não alteraram substancialme<u>n</u> te as distribuições angulares de fissões e alfas.

As distribuições angulares dos traços anômalos mostram que a maioria destes traços tem ângulos zenitais próximos de 90⁰, ou seja são aproximadamente paralelos ao plano da emulsão.

e) Correlações.

i) Entre alcance e densidade de grãos.



nQ de traços

70







figura 6: Histogramas de distribuição angular dos traços de fi<u>s</u> são, anômalos e de partícula alfa.

- 32 -

Os traços de fissão encontrados nas emulsões R55 e R53 tem densidades de grãos de \sim 2 grãos/µ, independentemente de seus alcance. No entanto, os traços anômalos apresentam uma clara correlação entre alcance e densidade de grãos fig. 7a, aba<u>i</u> xo, de modo que os traços de maior alcance tem menor densidade de grãos e a medida que o alcance diminue a densidade de grãos aumenta.



figura 7: Correlação entre alcance e densidade de grãos para traços anômalos e de partícula alfa.

Os traços que classificamos como anômalos na emulsão R19,fig. 7b, pag. 33, tem umacorrelação entre densidade de grãos e alcance semelhante aos da emulsão R55. Nota-se, nesta figura, que hã 2 grupos de traços com densidades de grãos e alcance diferentes: os anômalos com 1,13g/ μ e 20,4 μ e os alfas de urânio como 0,64g/ μ e 12,1 μ . Podemos ter classificado incorretamente alguns traços, porêm, a existência de 2 grupos de traços indica que observamos na emulsão R19 2 tipos de "partículas" com diferentes perdas de energia por ionização por unidade de comprimento.

ii) Entre alcance e ângulo zenital.

E interessante notar que os traços anômalos de maior alcance são os que tem ângulos zenitais próximos de 90° e que ã medida que o alcance vai diminuindo, o mesmo acontece com o âng<u>u</u> lo zenital, o que pode ser visto nas figuras 8b e c, pag. segui<u>n</u> te, onde vemos uma clara correlação entre alcance e ângulo zenital dos traços anômalos. Se os traços anômalos não tivessem sido medidos nas mesmas emulsões (e mesmas ãreas) em que medimos fissões e alfas de urânio, diriamos que este resultado nos indicaria que o fator de contração das emulsões para os traços anômalos foi subestimado.

No entanto, nas figuras 8a e 8c, podemos ver que os alcances dos traços de fissão e das alfas do urânio (apesar da e<u>s</u> tatística mais modesta) são independentes do ângulo zenital. O que mostra que o fator de contração usado para estas emulsões estava razoavelmente correto.

Vemos, na figura 8a, que temos poucas fissões com cos $\theta \sim 1$; isto ocorreu porque somente colocamos nesta figura as fissões cujas extremidades eram interiores à emulsão, então, como o alcance dos fragmentos de fissão e da ordem da metade da espessura da emulsão, as fissões emitidas a θ pequenos tem maior prob<u>a</u> bilidade de serem superficiais à emulsão do que as emitidas a θ grandes.



de fissão, anômalos e de partícula alfa.

Resumimos as características dos traços anômalos, fissões e alfas que medimos em nossas emulsões, na tabela abaixo:

particulas características	Alfa	Fissões	Anômalos	
Alcance Médio	∿ 12µ	∿(23,5±2,0)u	∿(20±4,5)u	
Densidade de grãos	∿ 0,6g/µ	∿ 2,0g/µ	0,9 ~ 1,59/µ	
Distrib. angular	tsetrõpica	isotrópica	anisotrópica	
Dist. em profund <u>i</u> dade	-	uniforme	uniforme	
Correlação entre alcance e densid <u>a</u> de de grãos	não .	não	sím	
Correlação entre alcance e cos e	, não	ุกลับ	sim	i

- 36 -

CAPÍTULO 5

Testes adicionais e conclusões

a) Testes do gel usado para fazer as emulsões.

Fizemos uma emulsão a partir do gel, porēm sem carr<u>e</u> gamento de urânio. Esta emulsão não apresentou traços anômalos. Fizemos também irradiações de alguns pedaços desta <u>e</u> mulsão descarregada com uma fonte externa de U₃0₈ a uma distância de ∿ 1mm, com tempos de irradiação de até 3 semanas.

Estes pedaços, revelados de modo que os traços das partículas alfa da fonte externa aparecessem próximos do "mínimo de ionização", não apresentaram traços anômalos.

Este resultado indicou não serem os anômalos decorren te intrinsecamente do urânio (exemplo: emissão de partícula com carga e massa intermediária entre alfa e fragmento de fissão) e correlacionou os anômalos com o carregamento de urânio da emulsão.

b) <u>Variação da densidade superficial dos anômalos com o tempo de</u> armazenamento da emulsão.

Os resultados de inúmeras medidas de densidade de traços que finance em emulsões carregadas e reveladas quimicamente sob diversas condições de quantidade de revelador, tempo e tem peratura, indicaram que a densidade superficial de anômalos varia va de 0,4 a 3 x 10^3 cm⁻². As mesmas medidas, feitas para pedaços de uma mesma emulsão, revelados em condições iguais, porém com tempo de armazenamento diferente (20 a 130 dias), pareciam i<u>n</u> dicar que o número de anômalos/cm² não aumentava com o tempo de armazenamento. Fizemos então uma emulsão carregada com urânio (carregamento $\sim 1,2 \times 10^{17}$ atomos de urânio/cm²) e revelamos, sempre nas mesmas condições, alguns pedaços desta emulsão de modo que os traços de alfa do urânio aparecessem em "minimo de ionização". As revelações foram feitas com intervalos de alguns dias entre uma e outra. Esta experiência foi feita para verificar a variação da densidade superficial de alfas e anômalos com o tempo de armazenamento da emulsão, a partir do dia do carregamento, fig. 9, aba<u>i</u> xo.



figura 9: Variação da densidade superficial dos traços anômalos e de partícula alfa com o tempo de armazenamento da emulsão.

Analisando a fig. 9 verifica-se que enquanto a densi dade superficial dos alfas decresce com o tempo de armazenamento, <u>a dos anômalos é aproximadamente independente do mesmo</u>.

Conclusões

I) Sobre os traços anômalos.

Se os traços anômalos estão relacionados com o carr<u>e</u> gamento de urânio da emulsão e independem do seu tempo de armazenamento <u>então eles devem ter sido produzidos somente durante a se</u> <u>cagem da emulsão carregada, e provavelmente são traços de partícu</u> <u>la alfa do próprio urânio e/ou contaminação (do tipo P_o) emitidos</u> naquele período^{*}.

Então, embora não saibamos em que período da secagem eles foram produzidos, deve ser possível encontrar um fator de contração médio de secagem que levado em conta deve trazer a emu<u>l</u> são ãs condições médias de secagem em que os traços anômalos foram produzidos. Nestas condições, estes alfas (os anômalos) devem ter uma distribuição angular zenital aproximadamente isotróp<u>i</u> ca.

Variamos o fator de contração para procurarmos, para nossos dados de fissões e anômalos, qual o fator de contração que resultava na distribuição angular mais próxima da unitorme, atravês do teste χ^2 . Verificou-se que para fatores de contração de revelação da ordem de 2,5 a distribuição angular das fissões resultaram uniformes, e que para fatores de contração entre 6 e 8, fig. 10, pag. 39, as distribuições angulares dos anômalos result<u>a</u> ram razcavelmente uniformes.

Então os traços anômalos sofreram 2 fatores de contração: o de revelação e o "fator de contração médio de secagem" (^{FC}total = ^{FC}rev. × ^{FC}secagem).

E interessante notar que a existência de 2 fatores de contração em nossas emulsões, tornou possível explicar os principais resultados que obtivemos sobre os traços anômalos, r<u>e</u> sumidos na tabela 2, pag. 35, ou seja:

[°] Não analizamos, neste trabalho, porque os grãos dos traços an<u>ô</u> malos parecem ter sido mais ionizados que os dos traços de alfa do urânio emitidos quando a emulsão jã estava seca, o que pode ser visto, por exemplo, atravês da fig. 75, pag. 33.



figura lO: Teste do χ^2 (9 graus de liberdade) contra distribuição uniforme em função do fator de contração.

Como não levamos em conta o fator de contração de s<u>e</u> cagem,quanto mais se afastasse de 90⁰ o ângulo zenital de emissão dos anômalos, maior seria a densidade de grãos e menor o alcance dos traços observados, o que explica as correlações encontradas,a distribuição angular onde traços com $\theta \sim 90^{0}$ foram observados em maior número e resultados como os da fig. 12 do apêndice 3,pag. 50, onde a emulsão R55 parece ter sofrido 2 fatores de contração na direção z, um da ordem de 2,5 relativo ãs fissões e outro da ordem de 7 relativo aos anômalos.

O fator de contração médio de secagem pode ser est<u>i</u> mado, pois FC_{secagem} = FC_{total}/FC_{revelação}. Para as emulsões R55 e R53 obtivemos FC_{secagem} ≌ 2,7. Como durante a secagem a emulsão perde ∿ 10 volumes de água, podemos concluir que a deteção dos traços anômalos se deu na parte final da secagem.

- 39 -

II) <u>Viabilidade da utilização de emulsões carregadas</u> como dosimetro de neutrons lentos.

a) Tomando-se pequenos cuidados com o processamento das emulsões ver cap. 2, pag. 19, um observador experimentado consegue distinguir facilmente ao microscópio, para aumento \gtrsim 200 vezes, os traços de fissão da grande maioria dos traços anômalos.

No entanto, os traços anômalos de menor alcance (ver foto nº 4, pag. 24) e ângulo zenital % 45⁰ apresentavam densidade de grãos tal que poderiam ser confundidos com fissões, notadamente se estes traços fossem superficiais; neste caso a m<u>e</u> dida de comprimento do traço não diferenciaria anômalo de fissão, não se podendo decidir entre anômalo ou fissão onde um dos fragmentos perde maior parte de sua energia fora da emulsão.

Para a contagem da densidade superficial das fi<u>s</u> sões em algumas emulsões carregadas utilizadas como dosimetro de neutrons observamos o seguinte critério de análise para estes traços duvidosos:

Eles tinham suas coordenadas anotadas e eram re<u>a</u> nalizadas mais detidamente com objetiva de imersão (aumento de -800 vezes); nesta observação os traços que não podiam ser difere<u>n</u> ciados pelas características apresentadas (estudadas no capítu-10 4) eram contados como traços de fissão.

Supondo-se que todos os traços anômalos superficiais foram contados como traços de fissão, estimaremos qual o a<u>u</u> mento indevido no número de fissões observadas a que este critério conduziria numa emulsão que apresentasse uma razão entre fi<u>s</u> sões e anômalos observados de \sim 1 : 1.

Os traços anômalos foram emitidos durante a secagem quando a emulsão tinha \sim 2,7 vezes o volume da emulsão seca, ver final do cap. 4, com alcance \sim 30µ.

Pode-se mostrar, ver apêndice 4, que a probabilid<u>a</u> de W(R) de que traços emitidos isotropicamente com alcance R sejam - 41 --

$$W(R) = 1 - \frac{R}{2 E}$$

Então para os traços anômalos acima a probabilidade de que eles sejam superficiais à emulsão é:

$$1 - W(R) = \frac{R}{2 E} = \frac{30\mu}{2 \times 145\mu} = 0,1$$

onde tomamos E como o produto da espessura da emulsão seca (∿53µ)∂ por 2,7.

Como jã foi dito no cap. 3, pag. 25, \sim 10% dos anômalos podiam ser confundidos com traços de fissão quando a difere<u>n</u> ciação era feita através da densidade de grãos dos traços; este percentual pode ser verificado, por exemple, através da fig. 7a, pag. 33(traços com alcance \gtrsim 12 μ e com densidade de grãos \gtrsim 1,5 grãos/ μ).

Então \sim 10% dos anômalos superficiais à emulsão não podem ser diferenciados de fissões, resultando num aumento indevido na densidade superficial das fissões observadas de \sim 1%.

Evidentemente os aumentos tanto da razão entre as densidades superficiais de fissões e anômalos numa emulsão como de sua espessura conduzem a uma diminuição do erro acima estimado.

b) Irradiamos com neutrons frios 4 conjuntos de emulsão carregada-mica-alvo de urânio.

Como ja foi abordado na introdução, a dose total de neutrons que atravessa tanto a mica como a emulsão e a mesma e por tanto a razão entre as densidades superficiais de fissões observadas na mica e na emulsão deve, para cada conjunto, independer das condições em que foram feitas as irradiações, ou seja: MICA: $N_{F/cm^2} = \phi \sigma N_U R \epsilon C^{235}$ tirr.

EUMLSÃO: $N_{F/cm}^2 = \phi \sigma N_U^* E C^{235} t_{irr}$

onde:

 $\phi = fluxo total (neutrons/cm²)$ $\sigma = seção de choque por fissão do ²³⁵U, induzida por neutrons$ N_U = número de átomos de urânio/cm³ no alvo de urânioR = alcance médio dos fragmentos de fissão no alvo $<math> \varepsilon = eficiência da mica como detetor de fragmentos de fissão$ nas condições da experiênciaC²³⁵ = abundancia isotópica do ²³⁵U no urânio naturaltirr. = tempo de irradiaçãoN_U = número de átomos de urânio/cm³ na emulsãoE = espessura da emulsão

- 42 -

Então:

 $\frac{N_{F/cm^{2}}}{N_{F/cm^{2}}} = \frac{N_{U}R_{E}}{N_{U}'E} = constante$

		Mica: $N_{F/cm}^2 \times (10^4)$	Emulsão: N¦/cm²	$N_{F/cm}^{2/N_{F/cm}^{2}}$
10	conjunto	9,49 ± 0,23	2384 ± 40	39,8 ± 1,2
20	li	2,90 ± 0,09	678 ± 25	42,7 ± 2,1
30	Ņ	10,50 ± 0,17	2548 ± 50	41,2 ± 1,1
40	ŧ	11,87 ± 0,24	2990 ± 53	39,7 ± 1,1

Na tabela acima observa-se, através de N_{F/cm^{2/N}F/cm², a consistência da calibração da dose de neutrons empregada.}

Observou-se também que a densidade superficial dos anômalos resultou aproximadamente constante (\sim 650 traços/cm²) e não se correlacionou com N_{E/cm}2.

- 43 -

APÊNDICE 1

As pesagens efetuadas durante o carregamento da emulsão

Nas pesagens que efetuamos, utilizamos uma balança cuja precisão era lOµg. Colocamos como erro de nossas pesagens o desvio padrão quando efetuamos diversas medidas e lOOµg quando fizemos somente uma medida. A razão deste erro foi porque rara mente obtivemos um desvio padrão lOOµg nas inúmeras vezes que utilizamos a balança.

A umidade relativa do ar, durante as pesagens, esteve sempre entre 60% e 70%.

A quantidade de uranio colocada na emulsão:

frasco	+	0,27m1	de	nitrato	de	urânio ∿ 0,125M
					Ξ	(25,18677 <u>+</u> 0,0001)g
frasco					=	(24.89370 <u>+</u> 0.00003)g
0,27m1	de	nitra [.]	to d	de urânio) =	$(0,29307 \pm 0,00013)g$

A calibração da quantidade de urânio no nitrato de urânio ∿0,125M

cadin	ho	ł	10m1	de	nitrato	de	u	rânio			
			-			=	=	(22,51289	+	0,0001) g
cadin	ho					:	*	(12,12645	+	0,00002	?)g
10m1	de	ni	trato	de	urânio	2	=	(10,38644	+	0,00012	2 <u>)</u> g

cadinho + $U_3 O_8 = (12,49936 \pm 0,00004)g$ cadinho = $(12,12645 \pm 0,00002)g$ $U_3 O_8 = (0,37291 \pm 0,00006)g$ E a quantidade de urânio contida no cadinho ê: $U = U_3 O_8 \times 0,8499 = (0,31623 \pm 0,00005)g$ Através desta calibração obtivemos que $(10,38644 \pm 0,00012)$ g de nitrato de urânio 0,125M = $(0,31623 \pm 0,00005)$ g de urânio

Resíduo de complexo de urânio

0 residuo que ficou no frasco em que preparamos o complexo de urânio, depois de seco, pesou: frasco + residuo = $(24,89533 \pm 0,00003)g$ frasco = $(24,89470 \pm 0,00003)g$ residuo = $(0,63 \pm 0,06)mg$

Resíduo de gel + complexo de uranio

O resíduo que ficou no frasco em que preparamos a emulsão carregada (gel + complexo de uranio) pesou:

frasco + resíduo de gel +	- complexo de uranio
	= (24,02679 ± 0,00003)g
frasco	= (23,97284 ± 0,00006)g
residuo de gel	= (0,05395 ± 0,00009)g = (54,0 ± 0,1)mg
.	

Perda de gel + complexo de uránio nas bordas da emulsão

Esta perda lateral de emulsão foi cuidadosamente cortada e limpa, e pesou:

perda lateral = (135 ± 1) mg

- 45 -

APENDICE 2

<u>Verificação se os traços anômalos se comportavam como traços de</u> <u>partīculas alfa emitidos após a secagem da emulsão</u>

1) Bombardeamos vārias emulsões carregadas com urânio com partículas alfa e fragmentos de fissão de uma pequena fonte externa de Cf²⁵² (atividade $\sim 10^{-4}$ u Ci).

Como a região ativa da fonte tinha $\sim 0.3 \text{ cm}^2$, foi feita uma máscara nesta região de modo que um bombardeamento onde a fonte ficasse justaposta a uma emulsão, somente uma pequena região era bombardeada pela fonte, deixando áreas livres que pe<u>r</u> metiam comparar sem mistura as regiões que tinham sido ou não bombardeadas.

Nestes lestes, novamente, partimos de revelações p<u>a</u> ra alfa e as enfraquecemos gradativamente.

Do exame ao microscópio óptico destas emulsões, co<u>n</u> tamos:

i) Em emulsões reveladas sem inibir o registro das partīculas alfa, essas partīculas do urânio ou do californio, e as fissões do californio eram difīceis de diferenciar (todos os traços apresentavam nūmero muito grande de grãos/u).

ii) Em emulsões reveladas de modo que os traços de alfa do urânio se apresentavam perto do minimo de ionização (alcance \sim 10 - 14 u e número de grãos \sim 10), diferenciava-se bem os traços de fissão do califórnio dos de alfa do califórnio ou do urânio, e estes entre si somente pelo fato de que, na região bombardeada, os primeiros eram os que começavam próximos da superficie superior da emulsão e os segundos eram aqueles que se encontravam no interior da emulsão.

Nestas emulsões era difícil saber se haviam os tr<u>a</u> ços anômalos pois a grande maioria dos traços ($\sim 10^5/cm^2$) eram

alfas de urânio.

iii) Em emulsões reveladas de modo que na região bom bardeada sõ haviam traços de fissão do califórnio, e fora dela não haviam traços de alfa do uranio, o exame mais minucioso mostrou que tanto na região bombardeada como fora dela haviam traços em sua – grande maioria interiores a emulsão, com densidades superficiais \sim 10^3 cm² e com as características citadas nas páginas 24 e 25 : os traços anômalos.

Conclusão:

A perda de'energia por unidade de comprimento de uma partícula alfa do urânio (E \sim 4,8 M.e.v.) ou do califórnio²⁵² (E \sim \sim 6,2 M.e.v.) dentro da emulsão (que consideraremos meio homogeneo e composto de AgBr somente, por simplicidade) através de choques <u>e</u> lásticos com eletrons, ou melhor, através de ionizações de átomos de Ag da emulsão, produzindo na regiao proxima a sua trajetória grãos reveláveis, pode ser dada aproximadamente pela fórmula de -Bohr:

$$(-\frac{dE}{dx}) = \frac{4 \pi z^2 e^4}{m_0 v^2} N Z \ln(\frac{2 m_0 v^2}{I})$$

2

ônde:

m_e = massa do eletron v = velocidade da partícula alfa N Z = densidade de eletrons de ātomos de Ag/cm³ I = potencial de ionização médio da Ag z e 5 2 e — ē a carga da partícula alfa

Podemos escrever a equação acima da forma:

$$\left(-\frac{dE}{dx}\right)_{Ag} = \frac{Kz^2}{E} \ln\left(\frac{E}{I2800}\right)$$

- 47 -

onde:

K = constante

E = energia da partícula alfa

Vemos então que para E significativamente maiores que 2800 I (\sim 0,8 M.e.v. para I \sim 300 e.v.), $\frac{dE}{dx} \sim \frac{1}{E}$, ou seja a diminuição da energia da partícula ao atravessar a emulsão leva a um aumento da ionização específica/unidade de comprimento.

Porém, a medida que a energia da partícula diminui, processos de troca de carga (He⁺⁺ + $\overline{e} \neq$ He⁺) começam a diminuir a carga efetiva (z^{ef^{*}} = 1,88 para E = 1,7 M.e.v., z_{ef} = 1,5 para E = 0,65 M.e.v.) da partícula alfa e além disto quando E \sim 2800 I o temo entre parenteses na equação cai rapidamente para zero. Então a ionização específica/unidade de comprimento passa por um máximo e cai rapidamente para zero.

Então, o fato da fonte de califórnio ser externa e possuir auto-absorção não desprezivel faz com que (pelo menos em relação ãs particulas alfa que deixaram traços visiveis na emulsão) as particulas alfa percam energia antes de penetrar na emu<u>l</u> são, no entanto a maior ionização especifica/unidade de comprime<u>n</u> to destas particulas ocorre dentro da emulsão (meio para fim do alcance conforme nossas considerações anteriores).

Da equação acima podemos ver que o comportamento - <u>dE</u> em função da energia das partículas alfa do urânio ou do dx califórnio é bastante semelhante.

Deste modo podemos afirmar, que na experiência lev<u>a</u> da a efeito, que se uma determinada revelação discriminou todas as partículas alfa do califórnio, ela deve ter discriminado também as do urânio. Então, se os traços anômalos são observados, isto significa que os grãos revelados destes traços foram significativamente mais ionizados que os das partículas alfa do urânio ou califórnio. 2) Outro teste que fizemos foi o de revelar 4 pedaços adjacentes de uma emulsão carregada com urânio, não irradiada com neutrons, de tal modo que observamos ao microscópio traços anômalos (fissões se houvessem) e os traços de partículas alfa do urânio perto do mímino de ionização. Os 4 pedaços foram revelados em iguais condições variando-se apenas o tempo de revelação de 60' até 240', ver pag. 20, e os resultados, fig. abaixo, mostram que enquanto o número de alfas/cm² cresce exponencialmente com o tempo de revelação, os anômalos saturam em $\sim 3 \times 10^3$ cm⁻². Este resultado mostra que os traços anômalos, nesta experiência, não se comportam como partículas alfa do urânio, pois se isto ocorresse, sob qualquer critério de diferenciação alfa-anômalo, as duas curvas apresentariam comportamentos semelhantes.







APENDICE 3

<u>Cálculo do fator de contração sofri</u> <u>do pelas emulsões R55, R19 e R53</u>.

A contração das emulsões ocorre porque durante a fixação, os grãos de AgBr que não foram desenvolvidos pelo agente revelador são dissolvidos pelo fixador, e como estes são fracame<u>n</u> te majoritários a emulsão perde fração apreciável de seu volume <u>i</u> nicial, restando depois da fixação apenas a gelatina e os grãos revelados.

Para medirmos o fator de contração sofrido por nossas emulsões, isto é, a razão entre os volumes antes e depois da fixação, usamos 2 métodos experimentais:

 Como nossas emulsões eram coladas sobre vidro, ob tinhamos a espessura da emulsão seca através da diferença entre as espessuras da emulsão seca + vidro suporte e do vidro, antes de colar a emulsão. Estas medidas eram feitas em diversas regiões da emulsão e do vidro, com micrômetro de precisão.

Durante as nossas medidas ao microscópio, mediamos sistematicamente a espessura da emulsão atravês de um micrômetro de precisão acoplado ao microscópio, obtendo-se assim a espessura média da emulsão após a revelação.

O fator de contração médio (FC = espessura média da emulsão seca/espessura média da emulsão revelada) calculado deste modo deu 2,5 para as emulsões R55, R19 e R53.

2) Na figura 12 referente a emulsão R55 representamos em abcissas os valores das medidas (efetuadas ao microscopio) das projeções dos traços que classificamos como fissões e anôma-

- 49 -

l<mark>os s</mark>obre o plano da emulsão, e em ordenadas as projeções dos me<u>s</u> nos sobre a direção z (perpendicular ao plano da emulsão).

Como a distribuição angular dos fragmentos de fissão le urânio, induzida por nêutrons frios e isotópica deveriamos ober uma elipse com eixo menor na direção z se houvesse contração comente nesta direção. E so isto pode ocorrer porque a emulsão esta colada sobre um vidro suporte que inibe a contração da mesma nas direções do plano perpendicular a direção z.

Da comparação dos valores obtidos para o semi-eixo naior com o valor extrapolado para o semi-eixo menor (isto porque craços de ângulo zenital pequeno são pouco prováveis e mais fáces de não serem vistos numa varredura ao microscópio) pudemos obcer o fator de contração sofrido pelas emulsões, através dos tr<u>a</u> cos de fissão. Deste modo, fig. 12 a, obtivemos FC \approx 2,4 para e nulsão R55, e tomamos o mesmo valor para a emulsão R19 (não poss<u>u</u> a traços de fissão para fazer este tipo de gráfico), porque foram reveladas em condições idênticas e obtivemos, FC \approx 2,2 para a emul cão R53.





Nota-se, comparando as fig. 12a e b que, enquanto as elipses dos traços que classificamos como fissão indicam um fator de contração da ordem de 2,4 para estas emulsões, se impuséssemos isotropia de distribuição angular zenital para os traços anômalos, a fig. 11b nos indica um fator de contração da ordem de 7 para traços encontrados numa mesma varredura, numa mesma emulsão.

Os fatores de contração que usamos foi a média entre os obtidos nos itens 1) e 2). Utilizamos FC = 2,4 para as emulsões R55, R19 e R53.

APENDICE 4

<u>Probabilidade de que traços emitidos isotropicamente com alcance R</u> sejam interiores a uma emulsão de espessura <u>E (E > R)</u>

0 nº de traços por unidade de volume, N, que tem ângulo zenital entre $\theta = \theta + d\theta$ e vem de altura compreendida entre t - t + dt, ē:

 $N \frac{d\Omega}{4 \pi} dt = N'(\theta) d\theta dt$

Para determinado valor de 0 a minima distância que as extremidades dos traços podem ter das superficies da emulsão para não serem superficiais e: R cos 0.

Então o nº de traços emitidos com ângulo zenital entre $\theta - \theta$ +d θ e interiores à emulsão é dado por:

$$N \frac{d\Omega}{4\pi} 2 \int \frac{dt}{T} = N (1 - \frac{R \cos \theta}{E}) \sin \theta d\theta$$

R cos θ

E a probabilidade de que traços emitidos com alcance R sejam interiores ã emuisão é dada por:

$$W(R) = \int_{0}^{\pi/2} (1 - \frac{R \cos \theta}{E}) \sin \theta \, d\theta = 1 - \frac{R}{2 E}$$

BIBLIOGRAFIA

- 1) R.L. Fleischer e P.B. Price, Phys. Rev., B63 (1964)133
- 2) J.H. Roberts, R.Gold e R.J. Armani, Phys. Rev., 174(1968), 1482
- 3) M.P.T. Leme, C.Renner e M. Cattani, Nucl. Instrum.Methods, 91(1971), 577
- 4) E. Segre, Phys. Rev., 86 (1952), 21
- 5) A. Spadavecchia e B. Hahn, Helv. Phys. Acta, 40 (1967),1063
- 6) D. Galliker, E. Hugentobler e B.Hahn, Helv. Phys. Acta, 43 (1970),593
- 7) W. Gentner e D. Storzer, Trans. Amer. Nucl. Soc., 15 (1972), 125
- 8) H.G. De Carvalho, J.B. Martins, I.O. De Souza e O.A.P. Tava res, comunicação 180 - 2.1, SPPC - 1976
- 9) R.A.M.S. Nazareth, tese de Mestrado, CBPF, Rio de Janeiro, 1971