

Universidade Estadual de Campinas

Instituto de Física Gleb Wataghin

**DUAS NOVAS DETERMINAÇÕES DA CONSTANTE DE
DECAIMENTO POR FISSÃO ESPONTÂNEA DO ^{238}U , λ_f ,
UTILIZANDO-SE TÉCNICAS DE TRAÇOS DE FISSÃO**

Sandro Guedes de Oliveira

Orientador: Prof. Dr. Julio Cesar Hadler Neto

TESE SUBMETIDA AO INSTITUTO DE FÍSICA GLEB WATAGHIN DA
UNIVERSIDADE ESTADUAL DE CAMPINAS COMO PARTE DOS REQUISITOS
PARA A OBTENÇÃO DO GRAU DE DOUTOR EM FÍSICA

Campinas – SP Brasil

Abril de 2001

À Kesley, Ana e Ian

Agradecimentos

Ao Professor Julio Cesar Hadler Neto, pela oportunidade de trabalhar na área de traços de fissão, pela amizade e conhecimento científico e pessoal transmitidos durante a realização deste projeto.

Ao Dr Pedro José Iunes, pela dosimetria de nêutrons com filmes finos de urânio, pela amizade e pelo seu conhecimento e idéias, essenciais para a realização deste trabalho.

Ao Dr Carlos Alberto Tello Saenz, pelo apoio e amizade e pelos ensinamentos em datação e termocronologia com o MTF.

Ao Dr Agustin Zuñiga Gamarra, pelas irradiações com nêutrons de amostras usadas numa das medidas apresentadas nesta tese.

Ao Professor Sérgio Roberto de Paulo, pelas idéias e conselhos que certamente contribuíram para a melhora deste trabalho.

À Aline Katiuscia Mateus Joaquim Burke, pela amizade e pelo apoio técnico numa das medidas apresentadas nesta tese.

Ao Dr Jorge Eduardo de Souza Sarkis, por ter cedido o ^{242}Pu , por ter providenciado todas as condições para o manuseio deste material com total segurança e pelo apoio científico nesta parte do

trabalho.

Ao Maurício Kakazu e ao João Cristiano, do Laboratório de Caracterização Isotópica do IPEN/CNEN pela disposição e pelo apoio técnico na manipulação do material transurânico usado neste trabalho.

À toda a equipe de proteção radiológica do IPEN/CNEN, que cuidou da segurança nos procedimentos realizados naquela instituição.

À Dra. Mítico Yamaura, do IPEN/CNEN, pela espectrometria alfa da amostra de plutônio.

À Dra. Mítico Saiki, do IPEN/CNEN, pela espectrometria gama da amostra de plutônio.

Ao Rodrigo, Walter, Eduardo, Iara e a todas as pessoas que já passaram pelo Grupo de Cronologia do IFGW/UNICAMP pelo apoio recebido durante estes últimos anos.

À Sandra, Tereza e Mônica, secretárias do DRCC/IFGW/UNICAMP pela amizade e suporte administrativo fornecido a este projeto.

Aos meus pais, Paulo e Amaurinda, pelo amor e pela formação dados de graça.

À Kesley, que nunca faltou, por tudo...

Àquele a quem todas as coisas são possíveis.

Este trabalho foi financiado pelo **Conselho Nacional de Desenvolvimento Científico e Tecnológico, CNPq**, através de bolsa de pós-graduação entre março de 1996 e fevereiro de 1997 e pela **Fundação de Amparo à Pesquisa do Estado de São Paulo, FAPESP**, através de bolsa de pós-graduação e reserva técnica associada entre março de 1997 e fevereiro de 2001, processo número 96/06612-0.

Dedicatória	iv
Agradecimentos	v
Apoio financeiro	vii
Resumo	1
Abstract	2
Introdução	3
Capítulo 1 – A equação de idades, a dosimetria de nêutrons e a calibração-ζ	9
<i>Derivação da equação de idades</i>	9
<i>Comentários sobre a dosimetria de nêutrons no MTF</i>	13
<i>A calibração-ζ</i>	16
Capítulo 2 – As medidas de λ_f na literatura	19
<i>Medidas do grupo A</i>	24
<i>Medidas do grupo B</i>	26
<i>Medidas do grupo C</i>	28
<i>Discussão</i>	29
Capítulo 3 – Medida de λ_f usando filmes finos de urânio natural como dosímetro de nêutrons	30
<i>Método</i>	30
<i>Procedimento experimental e resultados</i>	35
<i>Coleta de traços de fissão espontânea ^{238}U</i>	35
<i>Determinação da eficiência do CR-39 para partículas alfa, ϵ'</i>	39

<i>Confecção e calibração dos filmes finos de urânio</i>	40
<i>Montagem para traços de fissão induzida</i>	43
<i>Determinação da eficiência da mica para fragmentos de fissão provenientes de filmes finos, ϵ^F</i>	48
<i>Determinação de λ_f</i>	49
<i>Discussão</i>	51
Capítulo 4 – Utilização de elemento transurânico de meia-vida curta e conhecida, ^{242}Pu	55
<i>Método</i>	55
<i>Procedimentos experimentais e resultados</i>	60
<i>Obtenção dos filmes infinitos de urânio</i>	60
<i>Dopagem das fontes de urânio</i>	70
<i>Confecção e análise de atividade alfa via CR-39 de fontes de urânio dopadas com ^{242}Pu</i>	74
<i>Exposição para coleta de traços de fissão espontânea nos filmes de U_3O_8</i>	76
<i>Exposição para coleta de traços de fissão espontânea nos filmes de U_3O_8 contendo ^{242}Pu</i>	77
<i>Análise de energia gama</i>	79
<i>Análise de energia alfa</i>	80
<i>Determinação da composição isotópica da solução utilizada</i>	81
<i>Cálculo de λ_f</i>	84
<i>Discussão</i>	85
Discussão e Conclusões	87
Apêndice A – A medida de Roberts et al. (1968)	90
Apêndice B – Influência da oxidação do urânio metálico na medida de λ_f	95

Apêndice C – Geometria das exposições	102
<i>Geometria</i>	102
<i>Exemplo de aplicação</i>	109
Apêndice D – Constantes usadas nos cálculos que levam aos valores de λ_f	114
<i>Constantes de decaimento e outras constantes dos isótopos radioativos</i>	114
<i>Valores de r_T</i>	114
Referências	116

A constante de desintegração do ^{238}U por fissão espontânea, λ_f , já foi medida mais de 50 vezes sem que se chegasse a um acordo sobre o seu valor numérico. Em geral, os resultados obtidos concentram-se em torno de dois valores: $7,0$ e $8,5 \times 10^{-17} \text{ a}^{-1}$.

Neste trabalho, as medidas de λ_f foram analisadas e os principais erros sistemáticos afetando os resultados apresentados na literatura foram identificados. Especificamente dentro do Método dos Traços de Fissão (MTF), a dosimetria de nêutrons surge como a principal fonte de erros sistemáticos. Duas novas medidas foram realizadas usando técnicas de traços de fissão, evitando os erros identificados em outras medidas.

Na primeira determinação, foram usados filmes finos de urânio natural como dosímetros de nêutrons. O resultado encontrado foi $\lambda_f = (8,37 \pm 0,17) \times 10^{-17} \text{ a}^{-1}$.

Na segunda medida, filmes infinitos dopados com ^{242}Pu foram usados como fonte de fragmentos de fissão para calibrar o detector usado na coleta de fragmentos de fissão espontânea do ^{238}U . O resultado encontrado foi $\lambda_f = (8,7 \pm 0,4) \times 10^{-17} \text{ a}^{-1}$.

Ambos os valores concordam entre si e com o valor nominal $8,5 \times 10^{-17} \text{ a}^{-1}$. A obtenção de um valor de λ_f usando técnicas de traços de fissão, mas sem irradiação com nêutrons faz com que este resultado seja bastante confiável. O fato das duas medidas apresentarem valores concordantes é um forte indício de que a dosimetria com filmes finos de urânio produz resultados coerentes. Acreditamos por isso ter contribuído para o propósito de tornar o MTF, um método independente.

More than 50 determinations of the spontaneous fission decay constant of ^{238}U , λ_f , have been published and no agreement has been reached among them. Most of the obtained values are placed around two central values: $7,0$ and $8,5 \times 10^{-17} \text{ a}^{-1}$.

In this thesis, the published λ_f measurements have been analyzed and the main systematic error sources have been identified. Concerning the Fission Track Method (FTM), neutron dosimetry rises as the main systematic error source. Two new determinations have been carried out through fission track techniques, avoiding the errors found in the previous measurements.

Thin films of natural uranium have been used as neutron dosimeters in the first determination. The value obtained in this experiment was $\lambda_f = (8,37 \pm 0,17) \times 10^{-17} \text{ a}^{-1}$.

In the second experiment, infinite films, loaded with ^{242}Pu , have been used as sources of fission fragments in order to calibrate the detector used for collecting ^{238}U spontaneous fission fragments. The value found was $\lambda_f = (8,7 \pm 0,4) \times 10^{-17} \text{ a}^{-1}$.

Both values agree between them and with the nominal value $8,5 \times 10^{-17} \text{ a}^{-1}$. The derivation of a λ_f value from a measurement using fission track techniques, but without neutron irradiation makes it more reliable. The fact that the two values are in agreement is an indicative that the dosimetry with thin uranium films yields coherent results. We believe this work has contributed to make the FTM, an independent method.

A primeira tentativa de se estudar a fissão espontânea do urânio foi feita em 1939 por W. F. Libby (Libby, 1939). Expondo um contador Geiger Mueller blindado com BF_3 /parafina e, portanto, sensível a nêutrons lentos, a uma fonte de 7,5 moles de urânio, ele mediu 2 contagens por minuto contra 4600 contagens por minuto de uma fonte de Ra–Be. Comparando estas atividades e levando em conta que a fonte de Ra–Be emitia 17000 nêutrons por segundo por milicurie, Libby concluiu que, se existisse, o decaimento por fissão espontânea do urânio deveria ter meia-vida maior que 10^{14} anos.

Ainda em 1939, ao explicar o processo de fissão pelo modelo da gota líquida, N. Bohr e J. A. Wheeler indicaram a possibilidade da fissão espontânea ocorrer em núcleos de isótopos pesados (Bohr e Wheeler, 1939). Para o ^{238}U , o isótopo mais abundante do urânio na natureza, eles estimaram uma meia-vida da ordem de 10^{22} anos.

Petrzhak e Flerov, em 1940, motivados pelo trabalho de Bohr e Wheeler, foram os primeiros a observar de forma sistemática a fissão espontânea do ^{238}U . Usando uma câmara de ionização preparada para captar somente pulsos muito maiores que os produzidos por partículas alfa, eles observaram 6 pulsos por hora de uma fonte de óxido de urânio. Depois de eliminar a possibilidade dos fragmentos registrados serem resultantes de fissão induzida por nêutrons de raios cósmicos (para interferir no experimento, o fluxo de tais nêutrons deveria ser muito maior que o observado) e certificar-se de que não havia fontes importantes de ruídos, eles concluíram (Petrzhak e Flerov, 1940):

“We tend to think that the effect observed by us should be ascribed to fragments obtained as a result of spontaneous fission of uranium.”

Petrzhak e Flerov estimaram uma meia-vida da ordem de 10^{16} a 10^{17} anos para o processo de fissão espontânea do ^{238}U .

Desde então, diversas medidas da constante de desintegração por fissão espontânea do ^{238}U , λ_f , passaram a ser realizadas. Até o final da década de 1960, mais de 15 determinações de λ_f haviam sido publicadas, resultando em valores variando de 0,7 a $28 \times 10^{-17} \text{ a}^{-1}$. Contadores com BF_3 /parafina, câmaras de ionização e métodos radioquímicos foram usados na obtenção destes resultados.

Foi nesta época que Young (Young, 1958) descobriu que materiais dielétricos registram a passagem de partículas carregadas, que ao viajarem a altas energias, deixam uma trilha de ionização nestes materiais. Estes primeiros traços foram observados via microscópio de transmissão eletrônica e também ao microscópio óptico, depois de revelados por ataque químico (Young, 1958; Silk e Barnes, 1959). Mais tarde, entre 1962 e 1964, Price e Walker desenvolveram um novo método de datação baseado no registro de traços de fragmentos de fissão espontânea do ^{238}U em minerais. O Método dos Traços de Fissão (MTF) ou Datação por Traços de Fissão (DFT) se baseia no fato de que inúmeros minerais presentes na natureza contêm urânio como impureza em quantidades tais que a fissão espontânea do seu isótopo mais abundante, o ^{238}U , é, em geral, mensurável. Daí em diante, os pesquisadores trabalhando no MTF passaram a ser os maiores interessados no valor de λ_f , já que esta constante é um parâmetro fundamental na equação de idade do MTF, apresentada de forma simplificada por Fleisher e Price (1964) como:

$$T = \left(\frac{\rho_s}{\rho_i} \right) \frac{\phi \sigma I}{\lambda_f} \quad (\text{I.1})$$

onde ρ_s e ρ_i são as densidades de traços de fissão espontânea e induzida, respectivamente, que podem ser medidas num detector de traços de fissão ou na amostra a ser datada, depois de ataque químico

conveniente, T é o tempo de exposição ou a idade da amostra, ϕ é a fluência de nêutrons térmicos, σ é a seção de choque para nêutrons térmicos do ^{235}U e $I = C_{235}/C_{238}$ é razão isotópica entre ^{235}U e ^{238}U no urânio natural.

Muitas medidas de λ_f pelo MTF seguiram-se àquela de Fleischer e Price (1964); a maioria destes resultados concentra-se em torno de $7,0 \times 10^{-17} \text{ a}^{-1}$. Porém, quando todas as técnicas são levadas em conta, os resultados de λ_f distribuem-se, principalmente, em torno de dois valores centrais: $7,0 \times 10^{-17} \text{ a}^{-1}$ (Fleischer e Price, 1964; Roberts *et al.*, 1968; Hurford e Gleadow, 1977; Liu e Zhang, 1991) e $8,5 \times 10^{-17} \text{ a}^{-1}$ (Segré, 1952; Wagner *et al.*, 1975; Hadler *et al.*, 1981; Ivanov, 1985) que apresentam um desacordo de aproximadamente 20%.

Os resultados do MTF foram obtidos aplicando-se a equação (1) a fontes de urânio ou a artefatos cujas idades eram conhecidas *a priori*. O emprego destes procedimentos envolve dosimetria de nêutrons. As medidas de doses de nêutrons foram realizadas através de monitores metálicos de ativação (ou vidros dopados com urânio calibrados por monitores de ativação metálica) (por exemplo, Wagner *et al.*, 1975; Hurford e Gleadow, 1977) ou usando diretamente a reação $\text{U}(n, \text{fissão})$ (Roberts *et al.*, 1968; Ivanov e Petrzhak, 1975; Hadler *et al.*, 1981). A determinação da dose de nêutrons tem sido apontada como a principal fonte de erros sistemáticos na datação pelo MTF e na obtenção de λ_f por este método (Bigazzi, 1981; Hadler *et al.*, 1981; Green e Hurford, 1981; Bigazzi *et al.*, 1990; Wagner e Van den haute, 1992; Van den haute *et al.*, 1998; Jonckheere *et al.*, 2000; Hurford, 1998).

Para enfrentar estas dificuldades surgindo da determinação da dose de nêutrons, os pesquisadores têm evitado o uso de um valor de λ_f juntamente com uma medida absoluta da dose nêutrons. Assim, dois sistemas de calibração foram adotados: 1) o uso de um valor de λ_f obtido com as mesmas condições de irradiação e procedimentos de medida a serem usados na datação. Desta forma, λ_f é, apenas, um parâmetro de irradiação sem significado físico; 2) irradiação de uma amostra padrão,

cuja idade é supostamente bem conhecida por meio de outro método radiométrico de datação, junto com a amostra a ser datada. Neste caso, o MTF deixa de ser um método independente. Esta última técnica, a Calibração- ζ , foi primeiramente apresentada por Fleischer e Hart (1972).

Em 1990, a Subcomissão de Geocronologia da *International Union of Geological Sciences*, I.U.G.S., recomendou o uso deste procedimento como forma de padronização do MTF (Hurford, 1990). Desde então, o uso da calibração- ζ tornou-se um procedimento quase exclusivo. Por um lado, ele trouxe um grande avanço para a datação pelo MTF, tornando possível a comparação de resultados entre laboratórios. Por outro lado, o MTF deixou de ser um método independente e, devido ao sucesso da calibração- ζ , muito pouco foi feito para reverter esta situação. Mesmo sem ter-se alcançado um consenso quanto ao valor de λ_f , desde 1991 (Liu e Zhang, 1991, medida finalizada em junho de 1990), nenhuma medida foi publicada (ver Figura 1 do Capítulo 2).

Em adição, é cada vez maior o número destes pesquisadores apontando para a necessidade de tornar o MTF um método independente (ver por exemplo, Hurford, 1998; Van den haute, 1998; Jockheere, 2000). Como apontado por Hurford, é preciso que duas condições sejam obedecidas: 1) A dosimetria de nêutrons precisa ser confiável, ou seja, a taxa de reação $U(n, \text{fissão})$ precisa ser medida de forma absoluta em cada irradiação das amostras a serem datadas; 2) um valor de λ_f precisa ser encontrado de forma precisa e, preferencialmente, sem o uso de irradiação com nêutrons, eliminando, assim, as incertezas provenientes desta dosimetria. É nesta lacuna que se encaixa o presente trabalho.

A preocupação com os aspectos metodológicos do MTF tem estado presente no Grupo de Cronologia do Instituto de Física Gleb Wataghin já desde a tese de doutorado do Prof. Julio Hadler (1981), sobre λ_f , onde se utilizou uma dosimetria de nêutrons baseada na mesma reação, $U(n, \text{fissão})$, que produzia fissões induzidas nos alvos de urânio utilizados. Naquele trabalho, o Prof. Hadler usou emulsões carregadas com urânio natural, que puderam ser utilizadas porque as irradiações ocorreram

num canal de saída de nêutrons frios e não próxima ao caroço do reator utilizado.

Depois disso, o tema da dosimetria voltou a ser abordado, resultando na tese de doutoramento de Pedro José Iunes (1999). Um método de medida da reação $U(n, \text{fissão})$ foi desenvolvido, no qual filmes finos de urânio e tório naturais são usados para medir a dose de nêutrons durante as irradiações. Também neste caso, a mesma reação é usada. Idéia semelhante já havia sido empregada por Roberts e colaboradores (1968). Eles fizeram uma medida de λ_f através desta técnica, que resultou em $7,03 \times 10^{-17} \text{ a}^{-1}$. Embora esta seja a medida mais citada dentro do MTF, acreditamos que nela estejam embutidos sérios problemas metodológicos relacionados com a forma como as irradiações foram realizadas (ver apêndice A). Assim, um dos objetivos deste trabalho é realizar uma nova medida desta constante usando a técnica de dosimetria de nêutrons apresentada por Iunes e evitando os erros sistemáticos cometidos por Roberts e colaboradores.

A outra parte deste trabalho procura atender à condição colocada por Hurford (1998), que é medir a constante de desintegração do ^{238}U sem o uso de irradiação com nêutrons. Os traços de fissão induzida no urânio, são substituídos por traços de fissão espontânea de um isótopo transurânico de meia-vida curta e conhecida, o ^{242}Pu .

Encaradas de uma forma conjunta estas duas medidas e a dosimetria de nêutrons proposta na tese de Iunes possibilitam a obtenção de idades no MTF de forma independente e confiável. Além disso, sendo o MTF um método de datação baseado em princípios físicos, não é aceitável que uma constante acessível à observação experimental seja tratada como um simples parâmetro de irradiação.

Além destas duas determinações de λ_f , apresentamos uma análise das medidas desta constante presentes na literatura, procurando identificar fontes de erros sistemáticos que tenham levado a tamanha discrepância nos valores medidos desta quantidade.

O presente trabalho vem fechar um projeto maior na área de metodologia do MTF do qual fizeram parte as teses de doutorado de Carlos Alberto Tello Saenz (Tello, 1998) (sobre modelagem de

histórias térmicas) e Pedro José Iunes (Iunes, 1999).

Finalmente, alguns comentários sobre a apresentação desta tese.

As medidas ou quantidades calculadas são apresentadas com desvio de $\pm 1\sigma$. A estatística usada para o tratamento de dados em todo este trabalho é estatística de Poisson porque as medidas que foram realizadas são decorrentes de processos de decaimento radioativo. Ou seja, os desvios são calculados como $1/N^{1/2}$, onde N é o número de eventos considerados. Para quantidades resultantes de cálculos envolvendo dois ou mais desvios de medidas individuais, o desvio apresentado é calculado com a fórmula de propagação apropriada (para soma/subtração e/ou para multiplicação/divisão). As médias apresentadas são médias ponderadas pelo desvio de cada medida individual de cada quantidade envolvida neste cálculo.

Para facilitar a leitura da tese e torná-la menos cansativa, concentramos no Apêndice D os valores numéricos das constantes necessárias para a resolução das equações apresentadas, exceto aquelas aparecendo nos outros apêndices. Procuramos, também, no corpo da tese, evitar o desenvolvimento de fórmulas que não fossem estritamente necessárias. Raciocínios que necessitam de desenvolvimento matemático foram colocados em forma de apêndices.

A equação de idades, a dosimetria de nêutrons e a calibração-ζ

Derivação da equação de idades

Os vidros e minerais presentes na natureza contêm urânio como impureza. O decaimento do ^{238}U segue a lei de decaimento radioativo:

$$N_U^{238}(t) = N_U^{238}(0) e^{-\lambda_{\alpha 238} \Delta t} \quad (1.1)$$

onde

N_U^{238} = número de átomos de ^{238}U por unidade de volume da amostra;

$\lambda_{\alpha 238}$ = constante de decaimento alfa do ^{238}U = constante de decaimento total do ^{238}U ;

Δt = idade do vidro ou mineral a ser datado.

O número de decaimentos por fissão espontânea ocorridos na amostra durante o período de tempo Δt é dado por

$$F_S = C_{238} (N_U(0) - N_U(t)) = N_U(t) C_{238} \frac{\lambda_f}{\lambda_{\alpha 238}} (e^{\lambda_{\alpha 238} \Delta t} - 1) \quad (1.2)$$

onde

N_U = número de átomos de urânio natural por unidade de volume da amostra;

C_{238} = concentração isotópica do ^{238}U no urânio natural.

Deste ponto em diante $N_U(t) \equiv N_U$.

Os fragmentos de fissão decorrentes deste decaimento deixam trilhas de ionização (traços) na amostra, que é em geral polida e atacada quimicamente. Originalmente, estes traços têm comprimentos por volta de 16 micrômetros e larguras da ordem de nanômetros. Depois de atacados, os comprimentos permanecem praticamente inalterados, mas as larguras são aumentadas até atingir uns poucos micrômetros. Com isto, os traços que cortam a superfície são aumentados e podem ser observados ao microscópio óptico. Os traços são contados e a sua densidade superficial, ρ_s , é calculada.

Porém, nem todos os fragmentos gerados no interior da amostra atingem a superfície em observação. Desde que o evento de fissão emite fragmentos sem direção preferencial, um determinado fragmento pode atingir aquela superfície, dependendo da posição onde ocorreu a fissão, do alcance dos fragmentos de fissão e da direção em que foram emitidos. Assim, temos que introduzir uma eficiência geométrica, ϵ_g , que leve isto em conta. Dos traços que atingem a superfície, nem todos são visíveis ou contados pelo observador, depois do ataque químico. Desta forma, uma outra eficiência, a do observador, ϵ_0 , precisa ser considerada. Há ainda um outro fator a ser considerado. Se a superfície de observação é uma superfície interna, dizemos que ela obedece à geometria 4π , que é o ângulo sólido compreendendo todos os traços que contribuíram para a densidade num elemento de superfície. Se, por outro lado, os traços no detector são gerados em uma amostra externa, mas justaposta a este, dizemos que a geometria é 2π . Assim, o fator de geometria, g , vale 1 para geometria 4π e 0,5 para geometria 2π . Neste exemplo, estamos supondo uma geometria 4π , mas, no restante deste trabalho, faremos

exposições com geometria 2π . Para facilitar a matemática, vamos usar apenas uma eficiência, ϵ , que é um produto de todas as citadas e é determinada experimentalmente.

Desta forma, a densidade superficial de traços é dada por:

$$\rho_s = \epsilon N_U C_{238} \frac{\lambda_f}{\lambda_{\alpha 238}} \left(e^{\lambda_{\alpha 238} \Delta t} - 1 \right) \quad (1.3)$$

A eficiência, ϵ , depende da densidade do meio e da carga e massa dos átomos que compõe este meio em que o fragmento viaja. Este meio pode ser a própria amostra, no caso de geometria 4π , ou uma fonte externa de fragmentos, no caso de geometria 2π .

Para medir ϵ , usa-se induzir fissão nos núcleos de ^{235}U presentes na amostra. As distribuições de massa dos fragmentos de fissão induzida são bastante semelhante àsquelas encontradas para os fragmentos de fissão espontânea. Além disso, o meio pelo qual os fragmentos viajam é o mesmo nos dois casos.

Para datação, uma outra porção da mesma amostra é aquecida para apagar os traços fósseis e irradiada com nêutrons térmicos num reator nuclear. Em seguida, a amostra é polida, os traços são atacados quimicamente e contados ao microscópio óptico para que a densidade superficial de traços de fragmentos de fissão induzida no ^{235}U na amostra, ρ_I , seja determinada.

$$\rho_I = \epsilon N_U C_{235} \int \sigma(E) \phi(E) dE \quad (1.4)$$

onde

C_{235} = concentração isotópica de ^{235}U no urânio natural;

$\sigma(E)$ = seção de choque para a reação $^{235}\text{U}(n,f)$, para nêutrons de energia E ;

$\phi(E)$ = fluência de nêutrons com energia E , por unidade de energia.

Podemos reescrever a equação acima como

$$\rho_I = \epsilon N_U C_{235} R \quad (1.5)$$

onde $R = \int \sigma(E) \phi(E) dE$ é a probabilidade por núcleo alvo da reação $^{235}\text{U}(n,f)$ ocorrendo na amostra durante a irradiação. Das equações relacionando densidades de traços com atividades de fissão espontânea e induzida segue a equação de idades do Método dos Traços de Fissão:

$$\Delta t = \frac{1}{\lambda_{\alpha 238}} \ln \left(1 + \lambda_{\alpha 238} \frac{C_{235}}{C_{238}} \frac{R}{\lambda_f} \frac{\rho_S}{\rho_I} \right) \quad (1.6)$$

Esta equação foi primeiramente derivada por Price e Walker (1963) e contém apenas constantes relacionadas a processos de decaimento e quantidades que podem ser medidas diretamente. Porém, como já foi dito na introdução, não há consenso quanto ao valor de λ_f . Em geral, as medidas desta constante, dentro do método dos traços de fissão, foram realizadas aplicando-se a equação de idades a fontes de urânio que foram acopladas a detectores de traços de fragmentos de fissão por um intervalo de tempo conhecido. Desta forma, λ_f é dependente da dosimetria de nêutrons. Outro fator importante, que poderia influenciar os resultados de λ_f , é a eficiência de contagem dos traços mas, devido à sistematicidade dos resultados encontrados em medidas com o método de traços de fissão, muitos

autores (Bigazzi, 1981; Hurford,1998) foram levados a apontar a dosimetria de nêutrons como a principal fonte de erros sistemáticos dentro do MTF.

Comentários sobre a dosimetria de nêutrons no MTF

Nas equações anteriores envolvendo fluência de nêutrons, assumimos que as fissões são induzidas por nêutrons térmicos no ^{235}U . Normalmente, esta hipótese é assumida na aplicação do método dos traços de fissão. De acordo com ela, podemos escrever

$$R = \sigma \phi \quad (1.7)$$

onde

σ = seção de choque da reação $^{235}\text{U}(n,f)$ para nêutrons térmicos e

ϕ = fluência de nêutrons térmicos.

O procedimento habitual é medir a fluência de nêutrons térmicos através de algum monitor metálico de ativação e aplicar os resultados obtidos à equação acima. As reações mais usadas são $^{197}\text{Au}(n,\gamma)^{198}\text{Au}$ e $^{59}\text{Co}(n,\gamma)^{60}\text{Co}$. Como podemos observar na Figura 1.1, a curva de seção de choque destas reações é aproximadamente paralela à curva da reação $^{235}\text{U}(n,f)$ na região de nêutrons térmicos, apresentando um comportamento $1/v$, onde v é a velocidade dos nêutrons. Porém, na região de nêutrons epitérmicos, esta relação deixa de ser verdadeira com o aparecimento de picos de ressonância para as reações envolvendo monitores metálicos. Ou seja, em reatores com baixo grau de termalização, o que pode ser classificado como uma razão cádmio para o Au menor que 3 (Green e Hurford, 1984), a

equação acima não se aplica, pois o fluxo de nêutrons reagindo com os núcleos dos monitores metálicos será diferente do fluxo de nêutrons reagindo com núcleos de ^{235}U . Além disso, nêutrons epitérmicos induzem fissão no ^{238}U e no ^{232}Th , o que precisa ser analisado com a devida cautela. Por exemplo, a razão Th/U (note-se que ^{238}U e ^{232}Th constituem 99,7% e praticamente 100% dos elementos químicos urânio e tório, respectivamente) apresenta um valor médio em torno de 4 na crosta terrestre, mas a apatita de Durango, usada como padrão de idades dentro do MTF, tem um valor em torno de 30 para aquela razão. Isto significa que as fissões induzidas espúrias, devido ao ^{232}Th , podem representar uma fração da ordem de 15% do total de fissões induzidas, em condições de termalização de fluxo consideradas boas (Iunes, 1999). No caso de vidros dopados com urânio e calibrados por monitores metálicos, a situação é bem mais simples, mas a influência das fissões induzidas no ^{238}U não pode ser desconsiderada.

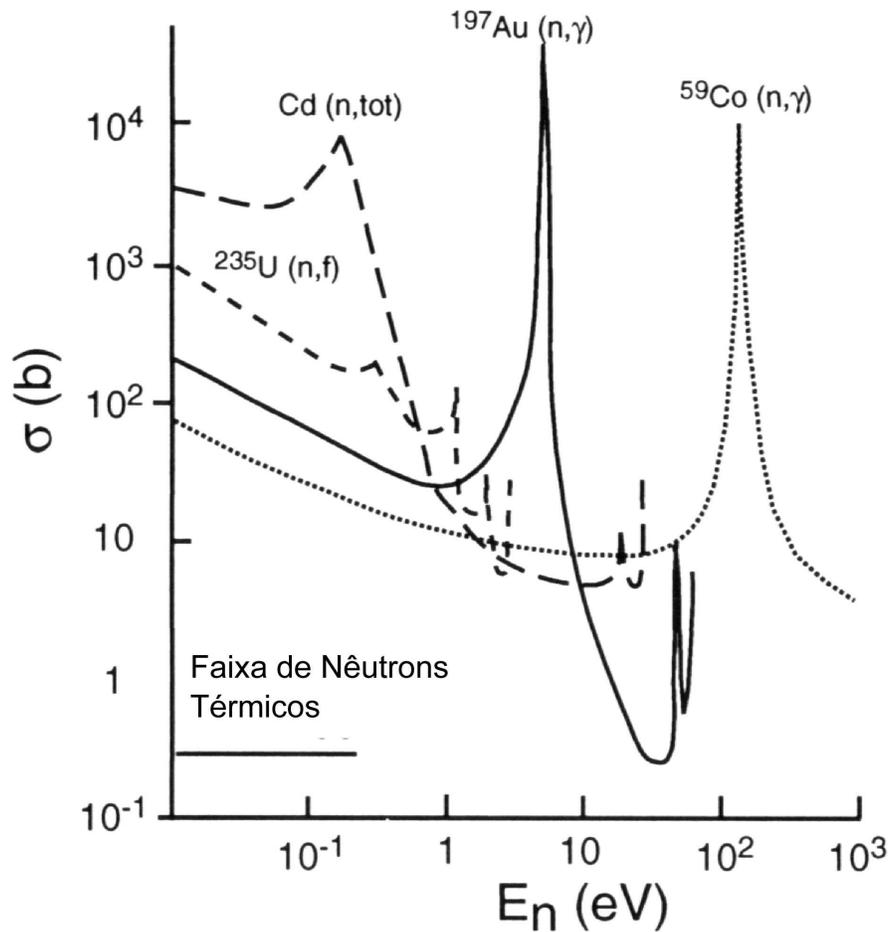


Figura 1.1. Seção de choque de ativação para ^{197}Au , ^{59}Co e ^{235}U em função da energia dos nêutrons e a seção de choque total para absorção de nêutrons do Cd (Extraído de Wagner e Van den haute, 1992).

Um outro método de medida da dosimetria de nêutrons aplicado à medida de λ_r e à datação pelo MTF é o uso direto da reação $\text{U}(n,f)$. Há na literatura duas medidas da constante de desintegração do ^{238}U por fissão espontânea usando esta dosimetria que resultaram em valores conflitantes. Hadler e colaboradores (1981) obtiveram $8,6 \times 10^{-17} \text{ a}^{-1}$ e Roberts e colaboradores (1968) obtiveram $7,0 \times 10^{-17} \text{ a}^{-1}$ (ver apêndice A). Esta dosimetria consiste no uso de monitores de urânio, onde se observa a mesma reação que se quer medir. Neste caso, a taxa de reação medida no monitor é independente do particular espectro de nêutrons e pode ser aplicada diretamente à equação de idades. Podemos, então, substituir C_{235R} por

$$\sum_{i=^{234}\text{U}, ^{235}\text{U}, ^{238}\text{U}} C_i \int_0^{\infty} \sigma_i(E) \phi_i(E) dE \quad (1.8)$$

Vale ser notado que, se queremos que o monitor reaja ao espectro de nêutrons da mesma forma que a amostra irradiada, é preciso que as concentrações isotópicas sejam as mesmas em ambos, monitor e amostra. Em amostras geológicas, o urânio é encontrado em concentrações isotópicas naturais. Portanto, para que essa dosimetria seja confiável é preciso que os monitores sejam confeccionados de urânio natural.

A Calibração— ζ

Motivados pela falta de padronização do MTF, devido às incertezas nas medidas envolvendo fluxos de nêutrons, a Subcomissão de Geocronologia do I.U.G.S., em 1990, recomendou um procedimento padrão para a calibração do referido método. Ele consiste basicamente em usar um padrão de idade conhecida como referência para outras datações. Desde que as duas amostras, a padrão e aquela a ser datada, sejam irradiadas juntas e os critérios de contagem de traços sejam os mesmos, este procedimento elimina a necessidade de se conhecer a fluência de neutrons usada e o valor de λ_r .

Em resumo

$$(\Delta t)_{amostra} = \frac{(\rho_S / \rho_I)_{amostra}}{(\rho_S / \rho_I)_{padr\tilde{a}o}} (\Delta t)_{padr\tilde{a}o} \quad (1.9)$$

Na equação acima, cuja dedução está feita mais abaixo, somente contagens de traços de fissão

são necessárias para se obter a idade da amostra.

Este procedimento já havia sido proposto por Fleischer e Hart (1972) como alternativa para o método usual de datação. Mais tarde, já voltados para as dificuldades na padronização do MTF, Hurford e Green (1982 e 1983) voltaram a defender este procedimento, que, na prática, é utilizado de uma forma mais elaborada. Define-se um parâmetro, ζ , tal que

$$\Delta t = \frac{1}{\lambda_{\alpha 238}} \ln \left(1 + \lambda_{\alpha 238} \zeta \frac{\rho_S}{\rho_I} \rho_d \right) \quad (1.10)$$

onde ρ_d é a densidade de traços medida num detector acoplado a um dosímetro de nêutrons, normalmente um vidro dopado com urânio, durante a irradiação com nêutrons e

$$\zeta = \frac{C_{235}}{C_{238}} \frac{R}{\rho_d \lambda_f} \quad (1.11)$$

Assim, determinado o parâmetro ζ , a obtenção de idades depende de apenas 3 medidas de densidades: ρ_S , ρ_I e ρ_d . Obtém-se ζ aplicando a equação de idades a uma amostra cuja idade é supostamente bem conhecida por outro método de datação

$$\zeta = \frac{\left(e^{\lambda_{\alpha 238} (\Delta t)_{padr\tilde{a}o}} - 1 \right)}{\lambda_{\alpha 238} \rho_d \left(\rho_S / \rho_I \right)_{padr\tilde{a}o}} \quad (1.12)$$

Além da idade do padrão, o parâmetro ζ depende da eficiência na medida de ρ_d . Portanto, em

princípio, cada observador deverá encontrar um valor diferente para este parâmetro, ainda que o mesmo padrão seja usado. Note-se também, que a posição em que o padrão é irradiado no reator e o grau de termalização do reator afetam o valor de ζ . Isto faz com que este parâmetro seja específico para cada posição de cada reator. Levando-se em conta que os reatores estão sujeitos a gradientes e depressões de fluxo, um valor de ζ somente seria confiável se fosse medido em cada irradiação em que se quisesse fazer uma datação. Além disso, observa-se que minerais diferentes produzem valores diferentes deste parâmetro. Não se sabe porque isto acontece, mas supõe-se que este efeito esteja relacionado à composição química de cada mineral.

Para amostras e padrões não muito antigos, tais que $\lambda_{\alpha 238}(\Delta t) \ll 1$, as equações (1.10) e (1.12) ficam

$$\Delta t = \zeta \frac{\rho_s}{\rho_l} \rho_d \quad (1.13)$$

e

$$\zeta = \frac{(\Delta t)_{padr\tilde{a}o}}{\rho_d (\rho_s / \rho_l)_{padr\tilde{a}o}} \quad (1.14)$$

Das equações (1.13) e (1.14) obtemos a equação (1.9).

As medidas de λ_f na literatura

Mais de 50 medidas de λ_f foram realizadas entre 1940 e 1991, ano da última publicação, excluindo-se este trabalho. Elas estão apresentadas na Tabela 1. As medidas estão divididas em 3 grupos: A) câmaras de ionização e rotativas de bolhas, contadores BF₃/parafina e métodos radioquímicos; B) MTF; C) datação de amostras geológicas ou artefatos com idades supostamente bem conhecidas por outros métodos de datação.

Tabela 2.1. Medidas de λ_f na literatura

<i>autor (ano)</i>	$\lambda_f (10^{-17} a^{-1})$	<i>comentários</i>
Grupo A – métodos radioquímicos, câmaras de ionização e de bolhas, contadores BF₃/Parafina		
Flerov e Petrzhak (1940)	0,7–7	câmara de ionização
Maurer e Pose (1943)	28 ± 7	contador BF ₃ /parafina (1 nêutron por fissão)
Pose (1943)	22 ± 2	contador BF ₃ /parafina (1 nêutron por fissão)
Scharff–Goldhaber e Klaiber (1946)	23	câmera de ionização
Whitehouse e Galbraith (1950)	8,38 ± 0,52	câmara de ionização
Segrè (1952)	8,60 ± 0,29	câmara de ionização

<i>autor (ano)</i>	$\lambda_f (10^{-17} a^{-1})$	<i>comentários</i>
Hoff Lu e Hsuan–Ling Tsao (1952)	$1,7 \pm 0,2$	câmara de ionização
Kuroda e Edwards (1954)	$11,7 \pm 1,2$	razão $^{90}\text{Sr}/^{238}\text{U}$
Kuroda e Edwards (1954)	$11,4 \pm 2,8$	razão $^{89}\text{Sr}/^{238}\text{U}$
Podguskaia <i>et al.</i> (1955)	$6,9 \pm 1,0$	câmara de ionização
Kuroda <i>et al.</i> (1956)	$6,7 \pm 0,7$	razão $\text{I}/^{238}\text{U}$
Parker e Kuroda (1956)	$8,3 \pm 0,8$	razão $^{99}\text{Mo}/^{238}\text{U}$
Kuroda e Edwards (1957)	$11,7 \pm 0,8$	razão $^{140}\text{Ba}/^{238}\text{U}$
Parker e Kuroda (1958)	$8,7 \pm 0,5$	razão $^{99}\text{Mo}/^{238}\text{U}$
Kuz'minov <i>et al.</i> (1959)	$10,7 \pm 0,5$	contador BF_3 /parafina
Gerling <i>et al.</i> (1959)	$11,9 \pm 1,0$	razão $\text{Xe}/^{238}\text{U}$
Rao e Kuroda (1966)	$7,8 \pm 0,9$	razão $^{132}\text{Te}/^{238}\text{U}$
Spadavecchia e Hahn (1967)	$8,42 \pm 0,10$	câmara rotativa de bolhas
Ishmori <i>et al.</i> (1967)	$9,64 \pm 0,05$	produtos de fissão de U
Shukoljukov <i>et al.</i> (1968)	$10,3 \pm 0,5$	razão $\text{Xe}/^{238}\text{U}$
Von Gunter (1969)	$8,66 \pm 0,22$	produtos de fissão de ^{238}U
Gallinker (1970)	$8,46 \pm 0,06$	câmara rotativa de bolhas
Thury (1971)	$8,66 \pm 0,43$	coincidência de terceira ordem
Sabu (1971)	$8,0 \pm 0,9$	razão $\text{Xe}/^{238}\text{U}$ e $\text{Kr}/^{238}\text{U}$
Kase <i>et al.</i> (1978)	$8,22 \pm 0,20$	câmara de ionização
Castro Rizzo (1978)	$10,22 \pm 0,22$	cintilador
Popeko e Ter–Akopian (1980)	$7,9 \pm 0,4$	coincidência múltipla de nêutrons
Belenky (1983)	$8,35 \pm 0,40$	coincidência múltipla de nêutrons em contador de ^3He
Ivanov <i>et al.</i> (1985)	$8,29 \pm 0,27$	câmara de ionização
Grupo B – técnicas de traços de fissão		

<i>autor (ano)</i>	$\lambda_f (10^{-17} a^{-1})$	<i>comentários</i>
Fleischer e Price (1964)	$6,6 \pm 0,8$	traços em mica, dosímetro: monitor metálico (não medido pelos autores)
Roberts <i>et al.</i> (1968)	$7,03 \pm 0,11$	traços em mica, dosímetro: filmes finos de U
Kleeman e Lovering (1971)	$6,8 \pm 0,6$	traços em lexan, dosímetro: vidro dopado calibrado com monitor metálico
Leme <i>et al.</i> (1971)	$7,30 \pm 0,16$	traços em mica, dosímetro: monitor metálico
Khan e Durrani (1973)	$6,82 \pm 0,55$	traços em mica, dosímetro: monitor metálico (não medido pelos autores)
Ivanov e Petrzhak (1975)	$7,12 \pm 0,32$	traços em mica, dosímetro: folha de ^{238}U metálico
Emma e Lo Nigro (1975)	$7,2 \pm 0,2$	traços em vidro, dosímetro: monitor metálico
de Carvalho (1975)	$11,55 \pm 0,77$	traços em emulsão
Mark <i>et al.</i> (1977)	$10,1 \pm 1,2$	traços em Makrofol, dosimetria: monitor metálico
Nishimura (1978)	$7,1 \pm 0,6$	traços em mica, dosímetro: monitor metálico
Spaggiari (1980)	$9,26 \pm 0,17$	traços em mica, dosímetro: monitor metálico
Baptista (1981)	$6,6 \pm 0,2$	traços em mica dosímetro: vidro dopado padrão (calibrado por monitor metálico)
Hadler (1981)	$8,6 \pm 0,4$	traços em mica, dosímetro: emulsão carregada com urânio
Nishimura (1981)	$7,1 \pm 0,6$	traços em mica, dosímetro: monitor meálico
de Carvalho <i>et al.</i> (1982)	$11,8 \pm 0,7$	traços em vidros calibrados com fonte de ^{252}Cf
Vartanian (1984)	$8,23 \pm 0,43$	traços em plástico, dosímetro: monitor metálico
Liu e Zhang (1991)	$7,06 \pm 0,22$	traços em lexan e mica, dosimetria: vidro dopado calibrado por monitor metálico
Grupo C – MTF em artefatos ou amostras de idades conhecidas por outros métodos		
Fleischer e Price (1964)	$6,9 \pm 0,2$	comparação com idades obtidas por K/Ar, Rb/Sr, dosimetria: monitor metálico (não medido pelos autores)

<i>autor (ano)</i>	$\lambda_f (10^{-17} a^{-1})$	<i>comentários</i>
Storzer (1970)	$8,49 \pm 0,76$	datação de vidros manufaturados em data conhecida, dosimetria: monitor metálico
Gentner e Storzer (1972)	8,4	comparação com idades obtidas por K/Ar, dosimetria: monitor metálico
Nishimura (1972)	$7,0 \pm 0,3$	
Suzuki (1973)	7,5	Comparação com idades obtidas por K/Ar
Wagner <i>et al.</i> (1975)	$8,7 \pm 0,6$	datação de vidros manufaturados em data conhecida, dosímetro: vidro dopado calibrado com ouro
Thiel e Herr (1976)	$8,57 \pm 0,42$	datação de vidros manufaturados em data conhecida, vidro dopado calibrado com ouro
Hurford e Gleadow (1977)	$7,00 \pm 0,28$	Comparação com idades obtidas por K/Ar, dosímetro: vidro dopado calibrado com Co
Naeser <i>et al.</i> (1977)	6,85	comparação com idades obtidas por K/Ar
Liu e Zhang (1991)	$6,82 \pm 0,58$	comparação com idades obtidas por K/Ar, dosímetro: monitor metálico

Na Figura 2.1, podemos ter um panorama geral da evolução temporal das medidas de λ_f .

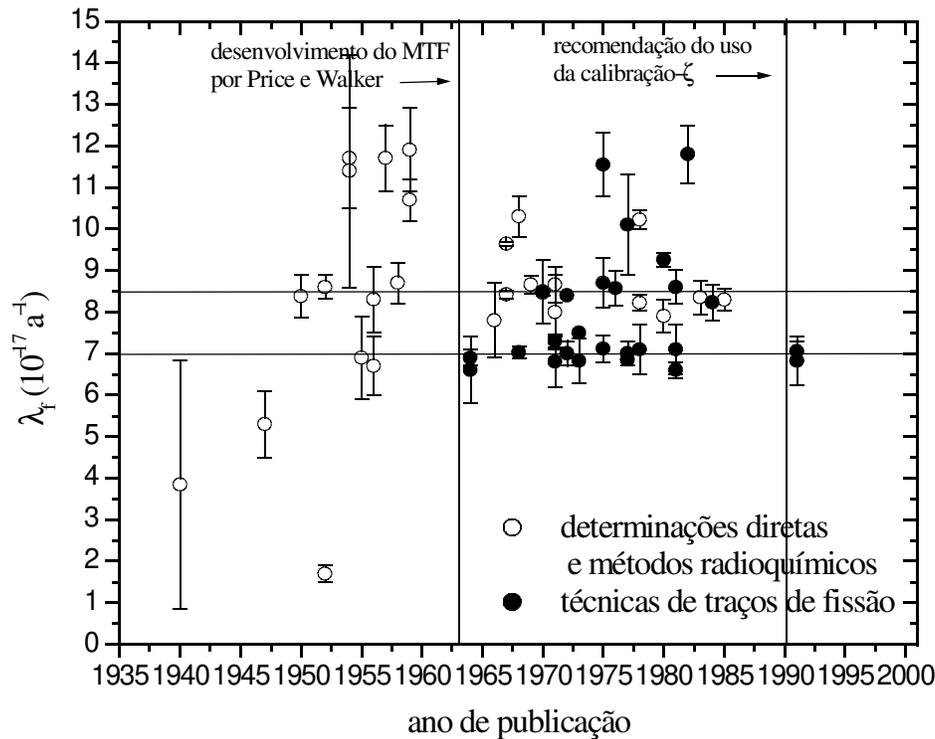


Figura 2.1. Evolução temporal das medidas de λ_f . No grupo relativo a técnicas de traços de fissão estão os resultados dos grupos B e C da tabela 1. As medidas pelo MTF estão concentradas principalmente em $7,0 \times 10^{-17} a^{-1}$. Quando todas as medidas são consideradas, dois valores aparecem: $7,0 \times 10^{-17} a^{-1}$ e $8,5 \times 10^{-17} a^{-1}$. O desenvolvimento do MTF e a recomendação do uso da calibração- ζ estão assinalados por serem fatos marcantes na história das medidas de λ_f

Até 1964 usaram-se contadores com BF₃ /parafina, métodos radioquímicos e determinações diretas (câmaras de ionização e rotativas de bolhas). Com a descoberta de que materiais dielétricos registram a passagem de partículas carregadas por Young, em 1958, e com o desenvolvimento do Método dos Traços de Fissão entre 1962 e 1964, por Price e Walker, o valor da constante de desintegração do ²³⁸U por fissão espontânea, passou a ser fundamental para pesquisadores que desejavam aplicar o novo método. É de Fleischer e Price (1964) a primeira medida por este método. Muitas outras seguiram-se a esta, na maioria das vezes resultando em valores em torno de $7,0 \times 10^{-17} a^{-1}$. Também na Figura 1, podemos observar que, considerando todos os métodos utilizados, o valor

desta constante tende para dois valores principais: 7,0 e $8,5 \times 10^{-17} \text{ a}^{-1}$. As medidas com o MTF têm, em geral, resultado em valores discordantes dos encontrados por outros métodos.

Independentemente do método utilizado na medida de λ_f , os seguintes problemas precisam ser tratados: 1) estatística baixa de eventos devido à longa meia-vida deste processo; 2) calibração da fonte, ou seja, determinação da quantidade de material gerando fragmentos de fissão e 3) calibração do detector, que é a determinação da sua eficiência de detecção para fragmentos de fissão.

Medidas do Grupo A

Neste grupo de medidas incluímos todas aquelas que não utilizam métodos de traços de fissão.

As medidas usando métodos radioquímicos são as mais inaccuradas dentro deste grupo. Neste método, a quantidade de elementos que são produtos da fissão espontânea do ^{238}U são medidas e a razão entre eles e o ^{238}U é determinada. Por exemplo, para se determinar a quantidade de ^{140}Ba , o elemento Ba é separado por processos químicos. Feita a separação, a quantidade do isótopo ^{140}Ba é determinada por medida da sua atividade β^- . Conhecendo-se a porcentagem de ^{140}Ba entre os produtos de decaimento por fissão espontânea do ^{238}U , pode-se calcular a taxa com que este produto específico foi gerado e conseqüentemente a taxa de fissão espontânea, ou seja, λ_f . Os resultados obtidos variam de 6,7 a $11,7 \times 10^{-17} \text{ a}^{-1}$. Os erros apresentados muitas vezes passam de 10%. Em geral, estas medidas aceitam, dentro de um ou dois desvios o valor $8,5 \times 10^{-17} \text{ a}^{-1}$. Kuroda, sozinho ou com outros colaboradores é o responsável pela maior parte destas medidas. A principal fonte de erros deste tipo de medida está na determinação das quantidades dos isótopos resultantes da desintegração do ^{238}U por fissão espontânea, já que os inúmeros isótopos formados, nos casos mais favoráveis, aparecem em quantidades muito pequenas, bem menores a do processo que os gerou. Além disso este tipo de medida requer procedimentos que geralmente consistem de muitas etapas.

Outro tipo de medida dentro deste grupo é a que envolve contagem de nêutrons. Neste tipo de medida, nêutrons resultantes de uma fonte de urânio são contados. Daí divide-se o número de nêutrons pelo número médio de emissões por evento de fissão. Desta forma, pode-se determinar λ_f . Assumindo que um nêutron era emitido por evento de fissão, Maurer e Pose (1943) e Pose (1943), obtiveram respectivamente 28 e $22 \times 10^{-17} \text{ a}^{-1}$ para λ_f . Considerado que aproximadamente 2,2 nêutrons são emitidos por evento de fissão, os resultados destes autores se tornam em $(12,7 \pm 3,2)$ e $(10,0 \pm 0,9) \times 10^{-17} \text{ a}^{-1}$. Resultados obtidos a partir da década de 1970, foram mais cuidadosos neste aspecto (Thurry, 1971; Popeko e Ter-Akopian, 1980; Belenky, 1983). Os resultados obtidos por eles concordam com o valor nominal $8,5 \times 10^{-17} \text{ a}^{-1}$.

As medidas mais precisas, porém, foram obtidas com as câmaras de ionização. Partículas carregadas, emitidas de uma fonte em uma câmara contendo um gás entre duas placas paralelas (carregadas de forma a gerar um campo), ionizam o meio. Os elétrons são coletados em uma das placas e o pulso resultante é amplificado. Este método apresenta a vantagem de detectar 100% dos eventos ocorridos. Nos experimentos deste tipo, são utilizadas fontes de espessuras pequenas comparadas ao alcance dos fragmentos de fissão (filmes finos), que podem ser facilmente calibradas por medida de atividade alfa ou, como fez Segrè (1952), irradiando com nêutrons de uma fonte de Ra+Be, ao mesmo tempo, um padrão (previamente calibrado por atividade alfa). Para que se obtenham boas medidas, porém, é preciso que o sistema tenha sido cuidadosamente calibrado. O sistema é sensível a partículas alfa, que geram pulsos 10 a 20 vezes menores que os fragmentos de fissão. Devido às flutuações estatísticas inerentes aos processos de decaimento, estes pulsos podem interferir no experimento, ou seja, se a fonte usada for muito ativa, ela pode emitir um número grande de partículas alfa durante o tempo de resolução do equipamento gerando pulsos que podem ser confundidos com os gerados por fragmentos de fissão. Este efeito também limita a quantidade do material usado como fonte. As medidas feitas por este método, em sua maioria, aceitam o valor nominal $8,5 \times 10^{-17} \text{ a}^{-1}$. Porém, uma

medida aparentemente bastante cuidadosa (Podguskaia *et al.*, 1955) resultou em $(6,9 \pm 1,0) \times 10^{-17} \text{ a}^{-1}$. Este é um exemplo de como medidas que não apresentam erro sistemático aparente, geram resultados conflitantes.

Duas medidas bastante precisas foram obtidas usando câmaras rotativas de bolhas (Spadavecchia e Hahn, 1967; Gallinker, 1970). Uma câmara contendo um líquido aquecido numa temperatura conveniente, é posta em rotação para que o líquido fique sob pressão adequada. Quando ocorre um evento de fissão há a formação de uma bolha (com a emissão de som audível) que é registrada por uma fotocélula. A temperatura e a pressão do líquido são ajustadas de forma a evitar a interferência de partículas alfa. Este método apresenta 100% de eficiência de detecção. Os resultados obtidos por este método concordam com $\lambda_f \sim 8,5 \times 10^{-17} \text{ a}^{-1}$.

Medidas do Grupo B

As medidas de λ_f pelo método dos traços de fissão foram realizadas a partir da equação (1) da introdução, que pode ser reescrita como:

$$\lambda_f = \left(\frac{\rho_s}{\rho_l} \right) \frac{\phi \sigma I}{T} \quad (2.1)$$

A razão entre as densidades de traços de fragmentos de fissão espontânea e induzida pode ser uma importante fonte de erros. Normalmente, as densidades encontradas para ambos os casos podem apresentar diferenças da ordem de 10^3 ou maiores, o que poderia ocasionar diferenças na eficiência de contagem, a qual supõe-se ser a mesma. Esta diferença de densidades ocorreu na maioria das medidas apresentadas na Tabela 2.1. A manutenção da eficiência é fundamental em aplicações do MTF. Por

exemplo, na medida de λ_f realizada por Spaggiari (Spaggiari, 1980), os valores de densidades de traços são bastante discordantes entre si. Quando se aplica o teste χ^2 , encontramos um $P_\chi \ll 0,001$, indicando que não há coerência entre as medidas apresentadas. O valor encontrado por ela foi $\lambda_f = (9,26 \pm 0,17) \times 10^{-17} \text{ a}^{-1}$.

Porém, como discutido nos capítulos anteriores, a maior fonte de erro dentro do MTF é a dosimetria de nêutrons. A maioria das medidas foi feita usando monitores metálicos como dosímetros de nêutrons (ou vidros dopados calibrados por monitores metálicos). As exceções são Ivanov e Petrzhak (1975), Hadler *et al.* (1981), Roberts *et al.* (1968) (Apêndice A), que usaram a reação U(n,f) e de Carvalho *et al.* (1982), que calibrou os detectores através de fonte de ^{252}Cf .

Neste último trabalho usou-se filmes finos de urânio em vidro comum em exposições de 15,75 anos. A principal fonte de erro deste trabalho foi uso de vidro comum como detector. Este material apresenta uma eficiência de detecção muito baixa (da ordem de 30%). Além disso, os autores encontraram que o número de traços de fundo no detector era da ordem de 15%, o que pode ter influenciado na eficiência de contagem. O resultado encontrado por eles foi $(11,8 \pm 0,7) \times 10^{-17} \text{ a}^{-1}$.

Ivanov e Petrzhak (1975) irradiaram uma folha de urânio metálico (previamente calibrada) juntamente com pastilhas de U_3O_8 , para determinar a quantidade de material nestas últimas (usadas como fontes de fragmentos de fissão espontânea). Eles supuseram que a eficiência era a mesma nos dois casos, o que não pode ser assumido, pois estas duas fontes apresentam densidades e composições químicas diferentes. O valor obtido por eles foi $(7,12 \pm 0,32) \times 10^{-17} \text{ a}^{-1}$.

É comum, nas medidas dentro do MTF, o uso de valores operacionais de λ_f , como declarado nos artigos de Nishimura (1981) e Liu e Zhang (1991). O valor obtido é usado para datação como parte da calibração da dosimetria utilizada. Para datação, este procedimento é aceitável, mas λ_f perde o significado físico. Os valores encontrados por estes dois autores foi $\sim 7,0 \times 10^{-17} \text{ a}^{-1}$. Ainda referente à

dosimetria de nêutrons, é importante chamar a atenção para um outro procedimento, o qual foi explicitamente assumido nos trabalhos de Fleischer e Price (1964) e Khan e Durrani (1973), que tem grande chance de influenciar nos resultados. Estes autores usaram valores de fluência de nêutrons fornecidos pelas equipes os reatores que eles usaram. A equipe do reator mediu um valor nominal de fluência para caracterizar a irradiação, sem levar em conta eventuais gradientes ou depressões de fluxo, que poderiam ser causadas, por exemplo, por outros experimentos sendo realizados na mesma irradiação. O procedimento indicado seria a colocação de um dosímetro acoplado à montagem. Estes autores encontraram valores de $\sim 7,0 \times 10^{-17} \text{ a}^{-1}$.

Os resultados dentro do MTF são bastante conflitantes entre si, predominando o valor $\sim 7,0 \times 10^{-17} \text{ a}^{-1}$.

Medidas do Grupo C

Além dos problemas do grupo B, a datação de amostras geológicas carrega fontes adicionais de erros. Os traços de fissão sofrem encurtamento devido à temperatura, em alguns casos mesmo à temperatura ambiente, o que resulta na diminuição das densidades de traços. Portanto, medidas de λ_f precisam levar em conta este efeito. Datação em vidros contendo urânio, cujas idades de fabricação eram conhecidas (Storzer, 1970; Wagner et al., 1975; Thiel e Herr, 1976) foram corrigidas para o efeito da temperatura. Todas elas resultaram em $\sim 8,5 \times 10^{-17} \text{ a}^{-1}$.

A maioria das outras medidas deste grupo foram feitas em padrões largamente utilizados no MTF: a apatita de Durango, México e apatita e zircão de Fish Canyon Tuff, Colorado, EUA. Os autores argumentam que não há necessidade de correção devido ao encurtamento de traços nestas amostras. Por outro lado, Iunes (1999) mostrou que a apatita de Durango apresenta um alto conteúdo de tório, que introduz erro sistemático maior que 10%, mesmo em reatores bem termalizados. Estes

últimos autores obtiveram em geral, $\sim 7,0 \times 10^{-17} \text{ a}^{-1}$.

Em 1989, Holden (Holden, 1989) recomendou um valor de $8,45 \times 10^{-17} \text{ a}^{-1}$, para a constante de desintegração por fissão espontânea do ^{238}U . Nesta recomendação, ele descartou a maioria das medidas do MTF, argumentando que os traços de fissão, que na quase totalidade dos casos foram registrados em micas muscovitas, teriam sido encurtados durante a exposição para coleta dos traços espontâneos, que é feita em temperatura ambiente. Porém, Bigazzi (1967) já havia mostrado que neste mineral o encurtamento dos traços em temperatura ambiente é pequeno mesmo para idades geológicas (da ordem de 20% para várias centenas de milhões de anos). As exposições das medidas do MTF (grupo B) foram feitas em temperaturas ambientes com duração de, no máximo, uns poucos anos. Portanto, os argumentos usados por Holden não são aplicáveis às medidas do grupo B.

Discussão

Analisadas individualmente, a maioria dos resultados apresentados parece ser bastante confiável. Porém, quando analisados em grupo, podemos encontrar procedimentos que, de forma sistemática, parecem contribuir para a discrepância nos resultados de λ_f . Particularmente, no caso das medidas dos grupos B e C, os procedimentos de dosimetria surgem como sendo os principais responsáveis pelo desacordo criado dentro do MTF e que se estende para o conjunto completo das medidas realizadas.

Entendemos que a recomendação de um valor para a constante em questão não é adequado, devido à grande dispersão de resultados. O procedimento mais adequado é a realização de novas medidas, evitando os erros identificados, até que os valores encontrados tendam para um valor comum.

Medida de λ_f usando filmes finos de urânio natural como dosímetro de nêutrons

Neste capítulo, apresentamos a metodologia e os procedimentos experimentais que levam à determinação de λ_f usando filmes finos de urânio natural, como dosímetros de nêutrons. Apresentaremos as equações que levam à expressão que permite calcular o valor da constante de desintegração por fissão espontânea do ^{238}U . Faremos descrições das montagens experimentais e em seguida apresentaremos os resultados obtidos, seguidos por uma discussão referente ao resultado desta medida.

Método

Para determinar a taxa de decaimentos de fissão espontânea do ^{238}U precisamos contar o número de eventos de fissão ocorridos no intervalo de tempo, Δt , de uma fonte contendo N_u átomos de urânio. A pastilhas de urânio natural, acoplamos pedaços de mica muscovita, como mostrado na Figura 3.1.

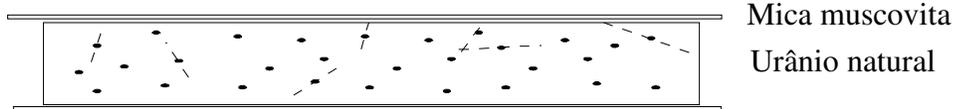


Figura 3.1. Montagem para coleta de traços de fissão espontânea. Os núcleos de ^{238}U tem uma certa probabilidade de se fissionar, emitindo fragmentos em direções opostas. Se o fragmento atinge a superfície com energia maior que zero, ele deixa uma trilha de ionização na mica. Duas placas de mica muscovita foram acopladas, uma a cada base, a uma pastilha cilíndrica. Para a realização desta medida foram feitas 5 montagens iguais a estas.

Depois da exposição, atacamos as micas quimicamente e os traços são contados ao microscópio óptico.

A densidade superficial de traços é dada por:

$$\rho_s = \epsilon N_U C_{238} \frac{\lambda_f}{\lambda_{\alpha 238}} \left(e^{\lambda_{\alpha 238} \Delta t} - 1 \right) \quad (3.1)$$

A equação acima é a equação (3) do capítulo 1. Aqui, porém, ela se aplica a um detector acoplado a uma fonte por um tempo de exposição conhecido, sob uma geometria 2π . As exposições deste trabalho foram de, no máximo, 4 anos. E como $\lambda_{\alpha 238} = 1,55136 \times 10^{-10} \text{ a}^{-1}$, podemos assumir que $(\lambda_{\alpha 238} \Delta t) \ll 1$ e a equação (1) torna-se:

$$\rho_s = \epsilon N_U C_{238} \lambda_f \Delta t \quad (3.2)$$

Para determinar o produto $N_U \epsilon$, usamos uma montagem como a da figura abaixo.

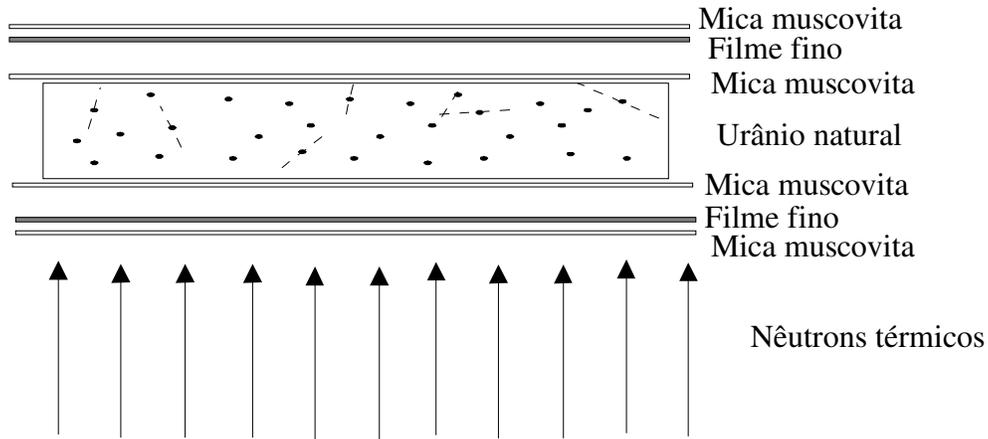


Figura 3.2. Montagem para coleta de traços de fissão induzida nas pastilhas de urânio natural. As mesmas pastilhas usadas na coleta de traços de fissão espontânea foram acopladas a micas muscovitas e irradiadas no reator do Instituto Peruano de Energia Nuclear. Para a determinação da fluência de nêutrons, filmes finos de urânio natural foram acoplados a micas e irradiados na mesma montagem.

Acoplamos a mesma pastilha usada na coleta de traços de fragmentos de fissão espontânea a outros pedaços de mica muscovita, que são irradiadas com nêutrons juntamente com filmes finos de urânio natural também acoplados a micas detectoras. O número de traços de fragmentos de fissão induzida por nêutrons no U, por unidade de superfície, ρ_I , que podem ser contados em cada detector é, conforme discussão que leva à equação (1.8):

$$\rho_I = \epsilon N_U \left[\sum_{i=^{234}\text{U}, ^{235}\text{U}, ^{238}\text{U}} C_i \int_0^{\infty} \sigma_i(E) \phi_i(E) dE \right] \quad (3.3)$$

Da mesma forma, para as micas acopladas aos filmes finos, teremos

$$\rho_F = \epsilon^F N_U^F \left[\sum_{i=^{234}\text{U}, ^{235}\text{U}, ^{238}\text{U}} C_i \int_0^{\infty} \sigma_i(E) \phi_i(E) dE \right] \quad (3.4)$$

onde

N_U^F = número de átomos de urânio por unidade de superfície contidos na filme.

ϵ^F = eficiência da mica para fragmentos de fissão provenientes do filme de urânio.

Dividindo a equação (3.3) pela equação (3.4) encontramos para $N_u \epsilon$:

$$N_u \epsilon = \frac{\rho_I}{\rho_F} \epsilon^F N_U^F \quad (3.5)$$

Para que a eficiência, ϵ , seja a mesma tanto para fragmentos de fissão espontânea quanto para aqueles de fissão induzida, é necessário que as exposições e condições de contagens de traços sejam as mesmas. A primeira condição é inteiramente preenchida, desde que a mesma pastilha é usada em ambas as coletas de traços. As condições de contagem serão as mesmas se os critérios de contagem de traços forem mantidos e, sobretudo, se o tamanho e a forma dos traços forem iguais nos dois casos. Neste requisito, o ataque químico desempenha um papel fundamental, já que o tamanho e forma dos traços depende, além da energia e ângulo de incidência do fragmento de fissão, das condições (reagente, temperatura e duração) do ataque químico. Para preencher este requisito, os detectores de traços de fissão espontânea e induzida foram atacados em conjunto para garantir que os traços fossem revelados de forma idêntica. Para prevenir possíveis variações de densidade devido a diferenças entre as densidades de traços de fissão espontânea e induzida, foram estabelecidos critérios de contagem a serem seguidos. Desta forma podemos assegurar que a eficiência de contagem será constante (Guedes *et al.*, 1998).

Na equação acima ϵ^F é medido diretamente, via emulsão (Bigazzi *et al.*, 1991) e N_u^F é encontrado medindo-se a atividade alfa do filme. Pode-se afirmar que o filme utilizado contém urânio em concentração isotópica natural, portanto ^{234}U , ^{235}U , ^{238}U contribuem para a sua atividade α . Supondo equilíbrio secular entre ^{234}U e ^{238}U e se o filme é acoplado a um detector de partículas alfa, depois de

um tempo $\Delta t'$, a densidade superficial de traços de partículas α , ρ_α , provenientes do filme fino, contados no detector depois de ataque químico conveniente, é:

$$\rho_\alpha = N_U^F \frac{\epsilon'}{2} \left(2 C_{238} \lambda_{\alpha 238} + C_{235} \lambda_{\alpha 235} \right) \Delta t' \quad (3.6)$$

onde

ϵ' = eficiência de detecção de partículas α do detector utilizado (no nosso caso CR-39)

$\lambda_{\alpha 235}$ = constante de desintegração por emissão α do ^{235}U .

A eficiência, ϵ' , é medida diretamente com o uso de emulsão nuclear (Hadler *et al.*, 1996), as constantes de decaimento α e as concentrações isotópicas são bem conhecidas. O fator 2 no denominador da equação (3.6) aparece porque as partículas α podem ser emitidas com igual probabilidade em todas as direções. O mesmo fator não aparece na equação (3.1) porque, em geral, no evento de fissão são emitidos dois fragmentos, cada um movendo-se no sentido oposto em relação ao outro.

Usando as equações (3.2), (3.5) e (3.6), chegamos a:

$$\lambda_f = \frac{\rho_S \rho_F \epsilon' \Delta t'}{\rho_I \rho_\alpha \epsilon^F \Delta t} \frac{\left(2 \lambda_{\alpha 238} C_{238} + \lambda_{\alpha 235} C_{235} \right)}{2 C_{238}} \quad (3.7)$$

Usando a equação acima podemos medir λ_f apenas medindo densidades de traços e tempos de exposição. Mesmo as medidas de eficiência resumem-se a medidas de densidades. Vale ainda destacar que na equação (3.7) não está presente nenhum parâmetro associado à medida da fluência de nêutrons.

Ou seja, a particular forma do espectro de nêutrons e a existência de gradientes não interfere no resultado final. A determinação explícita da fluência de nêutrons não se faz necessária para a obtenção de λ_f quando a reação U(n,f) é diretamente empregada na dosimetria.

Procedimento experimental e resultados

Coleta de traços de fissão espontânea do ^{238}U

Acoplamos uma pastilha cilíndrica de U_3O_8 , onde o urânio tem concentração natural, a duas placas de mica atacadas previamente ($\text{HF}(40\%)$, 160min, 20°C) para revelar os traços fósseis, que são aqueles provenientes de fissões ocorridas no interior da própria mica durante sua história geológica. Devido aos 2 ataques químicos (pré-ataque e ataque para revelar os traços produzidos durante a exposição), traços fósseis são facilmente diferenciados daqueles provenientes de fragmentos de fissão da pastilha de urânio. O tempo de exposição foi $\Delta t = 0,493$ a, após o qual a montagem foi desfeita.

Da mesma forma, acoplamos duas outras pastilhas cilíndricas, nomeadas I e J, de urânio metálico, também em concentração isotópica natural, a placas de mica pré-atacadas quimicamente. Depois de um período de tempo $\Delta t = 0,493$ a, a montagem com a pastilha J foi desfeita. A pastilha I continuou em exposição, que foi encerrada depois de $\Delta t = 3,234$ a de exposição. Após a irradiação com nêutrons, as pastilhas I e U_3O_8 foram novamente acopladas a micas, desta vez por um período $\Delta t = 3,983$ a. As dimensões das pastilhas utilizadas estão mostradas na Tabela 3.1.

Tabela 3.1. Dimensões das pastilhas usadas como fontes fragmentos de fissão neste experimento

<i>pastilha</i>	<i>diâmetro (mm)</i>	<i>altura (mm)</i>	<i>massa (gramas)</i>
U ₃ O ₈	33,0	10,0	61,2
I	12,7	0,1778	0,3939
J	12,7	0,1778	0,4035

Antes de atacar quimicamente as micas retiradas das montagens, escolhemos uma para fazer uma curva da densidade de traços em função do tempo de ataque. Como dissemos antes, a eficiência de contagem depende fortemente das condições de ataque. Fixamos a concentração e a temperatura do reagente (HF 48%, 15°C) e variamos o tempo do ataque. Atacávamos a mica por 15 minutos e medíamos a sua densidade superficial de traços. Em seguida, atacávamos a mica novamente por 15 minutos e medíamos a sua densidade e assim sucessivamente até que o tempo acumulado de ataque chegou a 120 minutos. As densidades encontradas estão na Tabela 3.2.

Tabela 3.2. Resultados para a curva de ataque para fragmentos de fissão espontânea do U-238 em mica muscovita.

<i>tempo acumulado de ataque (min)</i>	<i>número de traços contados</i>	σ (%)	<i>densidade superficial, ρ_F (cm⁻²)</i>
15	204	7	130±9
30	394	5	251±13
60	369	5	235±12
75	365	5	233±12
90	345	5	219±12
105	348	5	221±12
120	339	5	216±12

Os resultados estão mostrados na Figura 3.3.

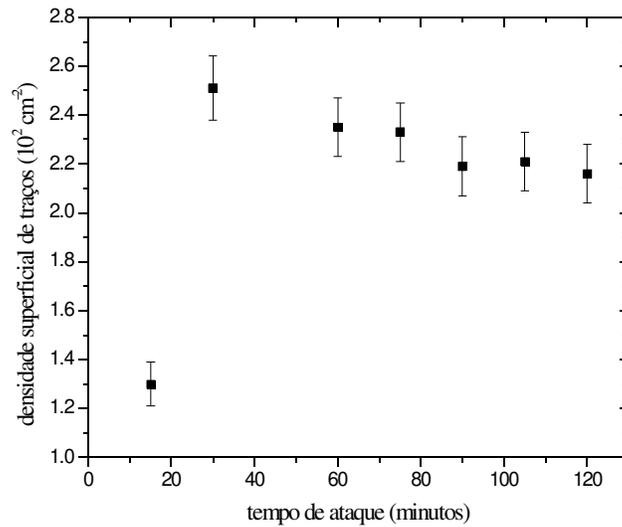


Figura 3.3. Curva de ataque químico para traços de fissão espontânea provenientes das pastilhas. A concentração do reagente e a temperatura foram fixados enquanto a duração do ataque era variada. Levando-se em conta a curva da Figura 4, as condições de ataque foram fixadas como HF 48%, 15°C por 75 minutos.

Nesta figura, observamos que a densidade de traços se estabiliza a partir de 60 minutos de ataque.

Levando em conta também a curva de ataque para traços de fissão induzida (Figura 3.4 deste capítulo), escolhemos 75 minutos como o melhor tempo de ataque, tanto para traços de fissão induzida como para traços de fissão espontânea.

Escolhido o melhor tempo de ataque, atacamos as outras 8 micas e medimos a sua densidade superficial de traços. A Tabela 3.3 mostra as densidades de traços das 9 micas expostas a fragmentos de fissão espontânea.

Tabela 3.3. Resultados das exposições de micas muscovita às pastilhas de urânio natural para coleta de fragmentos de fissão espontânea

<i>detector</i>	<i>tempo de exposição, Δt (anos)</i>	<i>número de traços contados</i>	σ (%) (Poisson)	<i>densidade superficial de traços, $\rho_s (\pm 1\sigma)$ (10^2 cm^{-2})</i>
EU ₃ O ₈ Q	0,493	376	5,2	2,40±0,12
EJ1	0,493	153	8,1	2,71±0,22
EJ2	0,493	171	7,6	3,04±0,23
EI1	3,234	2127	2,2	17,7±0,4
EI2	3,234	2199	2,1	18,8±0,4
E2U ₃ O ₈	3,983	1864	2,3	22,2±0,5
E2U ₃ O ₈ Q	3,983	1936	2,3	23,0±0,5
E2J1	3,983	1365	2,7	23,4±0,6
E2J2	3,983	1363	2,7	23,4±0,6

Determinação da eficiência do CR-39 para partículas alfa, ϵ'

Expusemos 7 pedaços de CR-39 a 5 filmes finos de urânio por tempos determinados (a exposição foi repetida em dois deles). Em seguida, atacamos o CR-39 quimicamente numa solução de NaOH 6,25N, a 70°C por 400 minutos e medimos a sua densidade superficial de traços. Anteriormente esses mesmos filmes finos, confeccionados para serem usados como calibradores, haviam sido acoplados a emulsões por tempos determinados e as densidades resultantes haviam sido medidas.

A eficiência da emulsão nuclear para partículas alfa de urânio é igual a 1,00±0,02 (Hadler et al.,1996), então podemos calcular ϵ' como sendo a razão entre a atividade α detectada pelo CR-39 e

aquela detectada pela emulsão. A Tabela 3.4 mostra as densidades, ρ , divididas pelos tempos de exposição, Δt , do CR-39 e da emulsão nuclear e as eficiências calculadas.

Tabela 3.4. Resultados do experimento para determinação de ϵ' .

<i>filme</i>	<i>densidade de traços por tempo de exposição na emulsão*</i> $(X10^3 \text{ cm}^{-2} \text{ h}^{-1})$	<i>densidade de traços por tempo de exposição no CR-39</i> $(X10^3 \text{ cm}^{-2} \text{ h}^{-1})$	<i>eficiência</i> ϵ'
XXII-1	0,305±0,006	0,235±0,004	0,77±0,02
XXII-1(2)	0,305±0,006	0,228±0,005	0,75±0,02
XXII-2	0,288±0,08	0,208±0,04	0,72±0,02
XXII-4	0,290±0,007	0,217±0,004	0,75±0,02
XXIII-3	1,304±0,019	0,946±0,032	0,73±0,03
XXIV-4	2,090±0,025	1,583±0,029	0,76±0,02
XXIV-4(2)	2,090±0,025	1,570±0,031	0,75±0,02

* medida realizada anteriormente pelo Grupo de Cronologia, DRCC, IFGW, UNICAMP

O valor médio encontrado para a eficiência foi $\epsilon' = 0,75 \pm 0,01$.

Confecção e calibração de filmes finos de urânio

O substrato escolhido para a confecção dos filmes foi a mica muscovita. A mica muscovita apresenta baixo conteúdo de urânio e as superfícies clivadas são suficientemente lisas (importante para a uniformidade do filme). Por esses dois motivos a mica é usada como base para os filmes.

Escolhemos e clivamos alguns pedaços de mica (para garantir superfícies lisas) . Cortamos as

micas e fixamos com fita adesiva sobre uma mesa niveladora, formando assim "piscinas" cuja altura corresponde a duas vezes a espessura da fita .

Misturamos uma solução de nitrato de uranila, com a ajuda de uma pipeta, a uma outra contendo parlódio , éter e álcool . Despejamos a solução resultante na piscina .

Depois de aproximadamente 24 horas , levamos os filmes a um forno com temperatura constante de 400°C durante 1 hora . Após esse período resta apenas o UO₃ aderido à mica.

Fizemos 12 filmes que receberam os nomes de S1, S2, S3, S4, S5, S6, S7, S8, S9, S10, S11 e S12. O filme S2 foi cortado em duas partes que foram chamadas de S2-1 e S2-2. Da mesma forma, o filme S9 foi dividido em duas partes, S9-1 e S9-2. Os filmes S3, S4, S6, S7, S8, S9-2 e S12 não foram aproveitados.

Para encontrar o número de átomos de urânio presentes em cada filme, acoplamos um pedaço de CR-39 ao filme durante um período de tempo Δt . Após esse período retiramos o detector e o atacamos quimicamente (NaOH 6,25N, 400min, 70°C), para que os traços deixados pelas partículas alfa se tornassem visíveis ao microscópio óptico e, então, medimos a densidade ρ_α . Da equação (3.6) podemos escrever :

$$N_U^F = (5,58 \pm 0,03) \times 10^{13} \frac{\rho_\alpha}{\epsilon' \Delta t'} \quad (3.8)$$

Δt é dado em horas e ρ_α em cm^{-2} .

Em um mol de urânio natural temos 238,03g, portanto

238,03g de urânio natural _____ $6,02 \times 10^{23}$ átomos

X1g de urânio natural _____ N_u^F átomos

$$\Rightarrow \text{massa de U por cm}^2 = 3,954 \times 10^{-22} \cdot N_u \text{ por cm}^2$$

mas

$$286,03 \text{ g de UO}_3 \quad \text{_____} \quad 238,03 \text{ g de U}$$

$$X \text{ g de UO}_3 \quad \text{_____} \quad \text{massa de U}$$

$$\Rightarrow M = \text{massa de UO}_3 \text{ por cm}^2 = 1,2016553 \cdot (\text{massa de U por cm}^2). \text{ Logo,}$$

$$M = (2,65 \pm 0,01) \times 10^{-8} \frac{\rho_\alpha}{\epsilon' \Delta t'} \quad (3.9)$$

A densidade de UO_3 é $7,29 \text{ g/cm}^3$, ou seja, um filme de espessura 1 cm terá $7,29 \text{ g}$ de UO_3 por cm^2 .

$$1 \text{ cm} \quad \text{_____} \quad 7,29 \text{ g de UO}_3/\text{cm}^2$$

$$X \text{ cm} \quad \text{_____} \quad \text{massa de UO}_3/\text{cm}^2$$

$$\Rightarrow d = \text{espessura do filme de UO}_3 = 0,1371742 \cdot (\text{massa de UO}_3)$$

$$d = 3,64 \times 10^{-9} \frac{\rho_\alpha}{\epsilon' \Delta t'} \quad (3.10)$$

A tabela abaixo mostra os valores medidos e calculados para os filmes S1, S2-1, S2-2, S5, S9-1, S10 e S11.

Tabela 3.5. Calibração dos filmes finos de urânio natural usados na dosimetria de nêutrons.

<i>filme</i>	<i>número de traços contados</i>	σ (%) (Poisson)	$(\rho_\alpha/\Delta t)$ ($10^2 \text{ cm}^{-2} \text{ h}^{-1}$)	N_u^F (10^{16} cm^{-2})	d ($10^{-2} \mu\text{m}$)
S1	2542	2,0	8,10±0,16	6,03±0,15	3,93±0,09
S2-1	2570	2,0	7,65±0,15	5,69±0,14	2,78±0,07
S2-2	2691	1,9	8,01±0,15	5,96±0,14	2,91±0,07
S5	5007	1,4	9,24±0,13	6,87±0,10	4,48±0,06
S9-1	4615	1,5	17,53±0,26	13,04±0,21	8,51±0,13
S10	3341	1,7	16,48±0,28	12,26±0,22	8,00±0,14
S11	2975	1,8	13,69±0,25	10,19±0,19	6,64±0,12

Montagem para traços de fissão induzida

As montagens foram feitas usando as mesmas pastilhas de urânio usadas na coleta de fragmentos de fissão espontânea. As pastilhas I e de U_3O_8 foram irradiadas duas vezes cada uma. Acoplamos a cada pastilha duas micas pré-atacadas (22°C, HF 48%, 180 min). Acoplamos a cada um dos filmes finos uma mica pré-atacada nas mesmas condições das acopladas às pastilhas. Um conjunto mica-filme foi justaposto a cada um dos lados de cada uma das pastilhas. A Figura 2 mostra o esquema das montagens.

Foram feitas 3 irradiações no *beam hole* do reator do Instituto Peruano de Energia Nuclear, Lima, Peru. O feixe usado na irradiação é bastante uniforme num diâmetro de aproximadamente 18 cm. A fluência de nêutrons foi variada de uma irradiação para outra, de ~ 1 a 7×10^{10} nêutrons por cm^2 . A razão cádmio medida para o Au resultou em ~ 5 .

Depois da irradiação, desfizemos as montagens e, antes de atacar quimicamente os detectores fizemos curvas de densidade superficial de traços em função do tempo de ataque, para um detector que estava acoplado a uma das pastilhas e um que estava acoplado a um dos filmes. Usamos os mesmos procedimentos usados no caso dos traços de fissão espontânea.

A Tabela 3.6 mostra os resultados para o detector acoplado à pastilha. Estes resultados estão representados na Figura 3.4.

Tabela 3.6. Resultados para a curva de ataque químico de traços de fissão induzida provenientes de pastilha de urânio natural em mica muscovita.

<i>tempo acumulado de ataque químico (minutos)</i>	<i>número de traços contados</i>	$\sigma(\%)$ <i>(Poisson)</i>	<i>densidade superficial de traços, $\rho (\pm 1\sigma)$ (10^6 cm^{-2})</i>
15	5760	1,3	1,071±0,014
30	9724	1,0	1,809±0,018
45	4557	1,5	1,907±0,028
60	4623	1,5	1,934±0,029
75	4633	1,5	1,939±0,029
90	4401	1,5	1,842±0,028

Na Figura 3.4 vemos que a densidade se estabiliza por volta de 45 minutos de ataque.

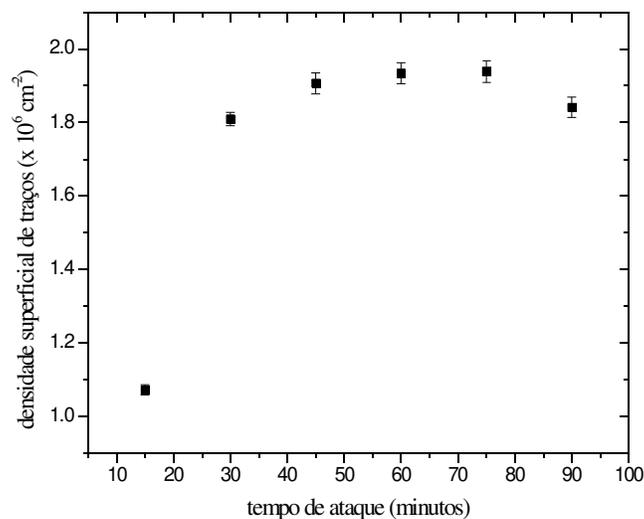


Figura 3.4. Curva de ataque químico para fragmentos de fissão induzida das pastilhas. A concentração do reagente e a temperatura foram fixados enquanto a duração do ataque era variada. Levando-se em conta a curva da Figura 3, as condições de ataque foram fixadas como HF 48%, 15°C por 75 minutos.

Como dissemos anteriormente, o tempo de ataque químico escolhido foi 75 minutos, levando-se também em conta a curva de ataque químico feita para os traços de fissão espontânea (Figura 2).

A Tabela 3.7 e a Figura 3.5 apresentam os resultados para a curva de ataque químico para traços provenientes do filme fino.

Tabela 3.7. Resultados para a curva de ataque químico de traços de fissão induzida provenientes de filme fino de urânio natural em mica muscovita.

<i>tempo acumulado de ataque químico (minutos)</i>	<i>número de traços contados</i>	$\sigma(\%)$ <i>(Poisson)</i>	<i>densidade superficial de traços, $\rho (\pm 1\sigma)$ (10^4 cm^{-2})</i>
15	2833	1,9	1,186±0,022
30	3591	1,7	1,503±0,025
60	3793	1,6	1,588±0,026
90	3881	1,6	1,624±0,026
120	3991	1,6	1,670±0,026
150	3870	1,6	1,620±0,026
180	4072	1,6	1,704±0,027
210	3995	1,6	1,672±0,026
240	3970	1,6	1,662±0,026

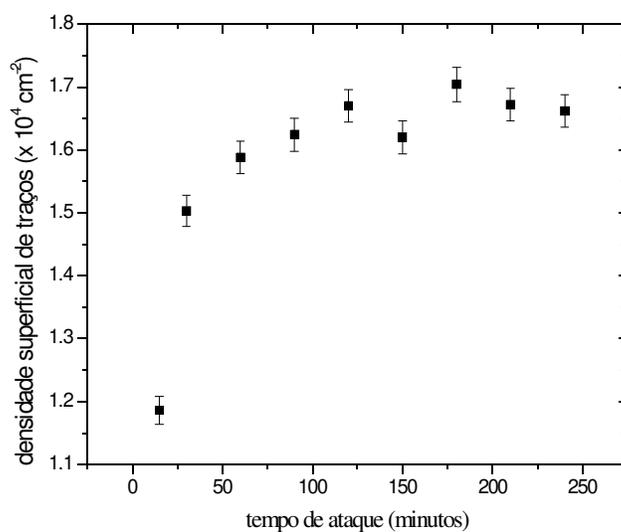


Figura 5. Curva de ataque químico para fragmentos de fissão induzida dos filmes finos de urânio natural. concentração do reagente e a temperatura foram fixados enquanto a duração do ataque era variada. As condições de ataque foram fixadas como HF 48%, 15°C por 180 minutos.

Esta curva se estabiliza por volta de 90 minutos de ataque químico. Escolhemos 180 minutos para ser o tempo de ataque.

Atacamos as outras 3 micas que foram irradiadas acopladas às pastilhas nas condições escolhidas (75 min, HF 48%, 15°C) e medimos as suas densidades superficiais de traços. Da mesma forma, atacamos os outros detectores que foram acoplados aos filmes finos nas condições escolhidas (180 min, HF 48%, 15 °C) e medimos as suas densidades superficiais de traços. Os resultados para as micas que foram acopladas às pastilhas estão na Tabela 3.8 e os resultados para as micas acopladas aos filmes finos estão na Tabela 3.9.

Tabela 3.8. Resultados das exposições de micas muscovita às pastilhas de urânio natural para coleta de fragmentos de fissão induzida durante irradiação com nêutrons.

<i>detector</i>	<i>irradiação</i>	<i>número de traços contados</i>	σ (%) (<i>Poisson</i>)	<i>densidade superficial de traços, $\rho_1 (\pm 1\sigma)$</i> (10^6 cm^{-2})
IU ₃ O ₈ Q	I	4418	1,5	1,85±0,03
IJ1	I	4398	1,5	2,09±0,03
IJ2	I	4451	1,5	2,12±0,03
II1	II	6716	1,2	0,320±0,004
II2	II	6704	1,2	0,320±0,004
I2U ₃ O ₈	III	3683	1,6	0,438±0,007
I2U ₃ O ₈ Q	III	3557	1,7	0,423±0,007
I2J1	III	3803	1,6	0,453±0,007
I2J2	III	3600	1,7	0,429±0,007

Tabela 3.9. Resultados das exposições de micas muscovita aos filmes finos de urânio natural para coleta de fragmentos de fissão induzida durante irradiação com nêutrons.

<i>detector</i>	<i>irradiação</i>	<i>número de traços contados</i>	σ (%) (<i>Poisson</i>)	<i>densidade superficial de traços, $\rho_F(\pm 1\sigma)$ (10^4 cm^{-2})</i>
MS1	I	4186	1,6	1,75±0,03
MS2-1	I	4022	1,6	1,68±0,03
MS2-2	I	4237	1,6	1,77±0,03
MS2-1	II	2454	2,0	0,274±0,006
MS2-2	II	2604	2,0	0,271±0,005
MS10	III	3892	1,6	0,667±0,011
MS11	III	2768	1,9	0,741±0,015
MS9-1	III	3052	1,8	0,818±0,014
MS5	III	2531	2,0	0,434±0,009

Determinação da eficiência da mica para fragmentos de fissão provenientes de filmes finos, ϵ^F

Na montagem empregada nesta parte do experimento usou-se o fato que uma fissão produz dois fragmentos que viajam em direções opostas e que ambos escapam do filme fino. A montagem está descrita em Bigazzi *et al.*, 1991. Dois filmes finos de UO_3 foram preparados sobre bases de mica muscovita, acoplados a emulsões, formando sanduíches mica-filme-emulsão, e irradiados com nêutrons térmicos no reator do IPEN/CNEN, em São Paulo. Depois da irradiação, o UO_3 foi dissolvido em um banho químico (HNO_3 65%, 60°C, 30 horas). Após processamento químico apropriado (Hadler

et al.,1996) a densidade de traços de fragmentos de fissão induzida foi medida na emulsão. As micas foram atacadas nas mesmas condições usadas nesse experimento (180 min, 15°C, HF 48%). Para determinar ϵ^F , medimos as densidades de traços superficiais dessas micas e as comparamos com aquelas encontradas nas emulsões. A eficiência da emulsão para fragmentos de fissão é $1,00 \pm 0,02$ (Hadler *et al.*, 1996), então podemos calcular ϵ^F como sendo a razão entre a densidade de traços da mica e a densidade de traços da emulsão. Os resultados estão na Tabela 10.

Tabela 3.10. Resultados para a determinação da eficiência ϵ^F .

<i>filme</i>	<i>densidade superficial de traços na emulsão*</i> (10^4 cm^{-2})	<i>densidade superficial de traços na mica</i> (10^4 cm^{-2})	ϵ^F
XXIII-2	$1,69 \pm 0,04$	$1,73 \pm 0,03$	$1,02 \pm 0,03$
XXIV-5	$8,18 \pm 0,17$	$8,26 \pm 0,03$	$1,01 \pm 0,03$

* medidas feitas anteriormente pelo Grupo de Cronologia do DRCC, IFGW, UNICAMP.

O valor usado será $\epsilon^F = 1,00 \pm 0,04$.

Determinação de λ_f

Neste experimento usamos três pastilhas de urânio natural, sendo que duas delas, J e U_3O_8 , foram usadas duas vezes. Para cada lado de cada pastilha, exceto um dos lados da pastilha de U_3O_8 na primeira exposição, medimos todos os valores de densidades de traços, eficiências e tempos de exposição necessários para o cálculo de λ_f pela equação (3.7). Assim, encontramos 9 valores de λ_f .

As eficiências encontradas nas seções anteriores são:

$$\varepsilon^{\text{C}} = 0,75 \pm 0,01$$

$$\varepsilon^{\text{F}} = 1,00 \pm 0,04$$

As densidades de traços medidos valores calculados de λ_f são mostrados na Tabela 3.11.

Tabela 3.11. Resultados para o cálculo de λ_f pela equação (3.6).

<i>montagem/ lado (filme*)</i>	<i>densidade superficial de traços, $\rho_F (\pm 1\sigma)$ (10^4 cm^{-2})</i>	<i>densidade superficial de traços, $\rho_I (\pm 1\sigma)$ (10^6 cm^{-2})</i>	<i>densidade superficial de traços, $\rho_s (\pm 1\sigma)$ (10^2 cm^{-2})</i>	$\rho_{\alpha_f} / \Delta t' (\pm 1\sigma)$ ($10^7 \text{ cm}^{-2} \text{ a}^{-1}$)	$\lambda_f (\pm 1\sigma)$ (10^{-17} a^{-1})
U ₃ O ₈ Q (S1)	1,75±0,03	1,85±0,03	2,40±0,12	0,710±0,014	7,72±0,53
J1(S2-1)	1,68±0,03	2,09±0,03	2,71±0,22	0,670±0,013	7,85±0,73
J2(S2-2)	1,77±0,03	2,12±0,03	3,04±0,23	0,702±0,014	8,73±0,81
I1(S2-1)	0,274±0,006	0,320±0,004	17,7±0,4	0,670±0,013	8,31±0,42
I2(S2-2)	0,271±0,005	0,320±0,004	18,8±0,4	0,702±0,014	8,89±0,44
2U ₃ O ₈ (S10)	0,667±0,011	0,438±0,007	22,2±0,5	1,445±0,025	8,39±0,46
2U ₃ O ₈ Q(S11)	0,741±0,015	0,423±0,007	23,0±0,5	1,200±0,022	8,31±0,46
2J1(S9-1)	0,818±0,014	0,453±0,007	23,4±0,6	1,537±0,023	8,18±0,46
2J2(S5)	0,434±0,009	0,429±0,007	23,4±0,6	0,810±0,011	8,69±0,49

* filme usado como dosímetro da irradiação pertencente a esta medida

A média ponderada destes valores resulta em

$$\lambda_f = (8,37 \pm 0,17) \times 10^{-17} \text{ a}^{-1} \text{ (incerteza de 1,98\%)}$$

O teste de coerência χ^2 com $\nu = 8$ graus de liberdade resulta em

$$\chi_{\nu}^2 = 0,52933 \text{ e}$$

$$P_{\chi} \approx 0,80$$

Este resultado indica que há uma boa coerência interna entre os valores obtidos para a constante de desintegração por fissão espontânea do ^{238}U .

Discussão

Na Tabela 3.12 mostramos algumas quantidades que nos ajudarão nas discussões que seguem.

Tabela 12. Valores de algumas quantidades de interesse para a discussão sobre a medida de λ_f usando filmes finos de urânio natural como dosímetro de nêutrons.

<i>montagem/ lado (filme)</i>	λ_f ($10^{-17} a^{-1}$)	ρ_f/ρ_s	<i>irradiação*</i>	<i>fluência de neutrons**</i> ($10^{10} cm^{-2}$)
U ₃ O ₈ Q (S1)	7,72±0,53	7,7 x 10 ³	I	7,0±0,2
J1(S2-1)	7,85±0,73	7,7 x 10 ³	I	7,1±0,2
J2(S2-2)	8,73±0,81	7,0 x 10 ³	I	7,1±0,2
I1(S2-1)	8,31±0,42	1,8 x 10 ²	II	1,16±0,05
I2(S2-2)	8,89±0,44	1,7 x 10 ²	II	1,17±0,05
2U ₃ O ₈ (S10)	8,39±0,46	2,0 x 10 ²	III	1,57±0,07
2U ₃ O ₈ Q(S11)	8,31±0,46	1,8 x 10 ²	III	1,45±0,07
2J1S9-1	8,18±0,49	1,9 x 10 ²	III	1,50±0,07
2J2S5	8,69±0,49	1,8 x 10 ²	III	1,51±0,07

*irradiação com nêutrons que fez parte da medida

**supondo que a contribuição de nêutrons epitérmicos pode ser desconsiderada.

Utilizamos neste trabalho 3 irradiações. Na última coluna da Tabela 3.12, vemos que a dosimetria de nêutrons produziu resultados consistentes dentro de cada irradiação. Eles concordam entre si em um desvio. Como discutido no capítulo 2, acreditamos que o uso de monitores metálicos na dosimetria de nêutrons é uma importante fonte de erros sistemáticos dentro do MTF. Um exemplo disto pôde ser observado durante a realização desta medida. A equipe do reator do Instituto Peruano de Energia Nuclear nos forneceu um valor de fluência de nêutrons medido com um monitor de Au, $\phi_{\text{térmico}} = 9,78 \times 10^9 \text{ cm}^{-2}$ ($\pm 5\%$) para a segunda irradiação. As fluências de nêutrons medidas por Au não nos foram fornecidas nas outras irradiações. Se usássemos este valor, ao invés daquele mostrado na Tabela 3.12, encontraríamos, para a constante que desejamos medir, $\lambda_f = 7,1 \times 10^{-17} a^{-1}$. A posição de irradiação

utilizada possui razão cádmio ~ 5 para o Au. Portanto, segundo recomendação de Green e Hurford (1984), ele pode ser considerado bem termalizado para aplicações de MTF. Procedimento semelhante pode ser encontrado nas medidas de Fleischer e Price (1964) e Khan e Durrani (1973) (ver Capítulo 2).

Note-se que com exceção da medida de Roberts e colaboradores (1968), a dosimetria feita em todas as medidas que resultaram em valores em torno de $7 \times 10^{-17} \text{ a}^{-1}$, está de alguma forma relacionada à dosimetria com ouro, seja usando diretamente o monitor de ouro ou indiretamente através de monitores (vidro ou outros monitores metálicos) calibrados por ouro. Em princípio, este fato poderia ser apenas coincidência, já que a dosimetria vem sendo aplicada há várias décadas e os parâmetros envolvidos são bem estudados. Todavia, tal coincidência não deveria ser desprezada. Faz-se necessário um estudo aprofundado dos procedimentos de dosimetria com ouro em busca de alguma eventual fonte de erros sistemáticos.

Outro ponto importante a ser discutido neste trabalho, é que as coletas de traços de fissão foram realizadas em tempos de exposição variando de 0,5 a 4,0 anos, resultando em densidades de traços bem diferentes. Não encontramos diferenças significativas nas eficiências de contagem numa faixa de densidades variando de 250 traços/cm² a 2000 traços/cm⁻², o que confere confiabilidade a estas medidas. Além disso, a manutenção de eficiência com a variação da densidade já havia sido testada em trabalho anterior (Guedes *et al.*, 1998). Neste trabalho concluímos que, se um critério de contagem de traços fosse estabelecido, não encontraríamos problemas na manutenção da eficiência. A eficiência nas contagens de traços é apontada como outra fonte importante de erros dentro do MTF, já que uma das hipóteses fundamentais deste método é que a eficiência é a mesma tanto para traços de fissão induzida em ²³⁵U quanto para traços de fissão espontânea do ²³⁸U.

Outra possível fonte de erros é a oxidação do urânio metálico no ambiente. Como duas das três pastilhas usadas nesta medida são feitas de urânio metálico, este efeito precisa ser levado em conta. Cálculos feitos no Apêndice B mostram que a influência da oxidação é menor que 0,5%.

Acreditamos que o valor de λ_f apresentado nesta parte do trabalho está livre dos erros sistemáticos encontrados em outras medidas desta constante, podendo ser usado para a datação pelo MTF. Este resultado já foi aplicado para a datação de amostras da Serra do Mar e Serra da Mantiqueira (Guedes *et al.*, 2000) produzindo resultados bastante coerentes com outros indícios geológicos.

Utilização de elemento transurânico de meia-vida curta e conhecida,

²⁴²Pu

Neste capítulo apresentamos a medida de λ_f sem irradiação com nêutrons. Esta medida baseia-se no fato de que as distribuições de massa e energia dos fragmentos de fissão são similares para os processos de fissão espontânea e induzida no urânio e nos isótopos transurânicos. Apresentaremos os aspectos metodológicos, bem como os experimentais relacionados a esta medida. Em seguida, apresentaremos os resultados e uma discussão sobre esta parte do projeto.

Método

Considere uma pastilha espessa de urânio cuja espessura é maior que o alcance das partículas alfa (de ²³⁸U, ²³⁵U e ²³⁴U) e, conseqüentemente, maior que o alcance médio dos fragmentos de fissão. Se esta fonte, chamada aqui de fonte infinita, é acoplada a um pedaço de mica muscovita, a densidade superficial de traços de fissão espontânea por unidade de tempo de exposição, $\rho_s/\Delta t$, depois de um ataque químico conveniente, é:

$$\left(\frac{\rho_s}{\Delta t} \right) = \epsilon C_{238} N_U \lambda_f \quad (4.1)$$

onde

ϵ = eficiência da mica muscovita para fragmentos de fissão;

N_U = número de átomos de urânio por unidade de volume e

C_{238} = abundância isotópica do ^{238}U .

Considere, agora, uma pastilha espessa obedecendo à mesma geometria e procedimentos de confecção, porém dopada com algum elemento transurânico de meia-vida curta (mais curta que a do ^{238}U) de tal modo que a quantidade necessária de transurânico seja a menor possível. Assim, podemos garantir que a densidade do filme não será afetada por uma possível diferente densidade associada ao transurânico. A densidade superficial de traços de fissão espontânea por unidade de tempo de exposição, $\rho_{ST}/\Delta t_{ST}$ em uma mica muscovita acoplada a este filme é

$$\left(\frac{\rho_{ST}}{\Delta t_{ST}} \right) = \epsilon \left(N_T \lambda_{fT} + C_{238} N'_U \lambda_f \right) \quad (4.2)$$

onde

N_T = número de átomos de elemento transurânico por unidade de volume;

λ_{fT} = constante de desintegração por fissão espontânea do isótopo de interesse do elemento transurânico

e

N'_U = número de átomos de urânio no filme dopado.

Adicionalmente, pode ser estabelecido que

$$N_U = N_T + N'_U \quad (4.3)$$

O vínculo (4.3) será válido se usarmos os mesmos procedimentos na confecção de ambos os cilindros considerados acima e estivermos tratando com filmes infinitos. É, ainda, necessário que os fragmentos de fissão provenientes do ^{238}U e do isótopo transurânico tenham o mesmo alcance. Desde que fragmentos de fissão de urânio e de isótopos de transurânicos possuem distribuições similares de massa e energia, o último requerimento fica satisfeito. Podemos usar os argumentos deste parágrafo para justificar o fato de termos considerado a mesma eficiência nas equações (4.1) e (4.2).

Dividindo a equação (4.2) pela equação (4.1), obtemos, após alguma algebra

$$\lambda_f = \frac{\lambda_{fT} N_T}{C_{238} N_U} \left[\frac{(\rho_{ST} / \Delta t_{ST})}{(\rho_S / \Delta t)} - \frac{N'_U}{N_U} \right]^{-1} \quad (4.4)$$

Na equação (4.4) somente as razões envolvendo elementos físeis (N_T/N_U e N'_U/N_U) são incógnitas, mas elas podem ser medidas repetindo-se os procedimentos acima, porém trocando o detector de traços de fissão por um detector de partículas alfa. No nosso caso, o CR-39.

Considere as mesmas fontes infinitas que temos tratado até agora. A densidade superficial de traços de partículas alfa por unidade de tempo de exposição em um CR-39 acoplado ao cilindro de urânio natural é

$$\left(\frac{\rho_\alpha}{\Delta t_\alpha} \right) = \frac{1}{8} \epsilon_\alpha N_U \left(\sum_{i=234, 235, 238} R_i C_i \lambda_{\alpha i} \right) \quad (4.5)$$

onde

ϵ_α = eficiência de detecção do CR-39 para partículas alfa;

C_i = abundância isotópica do ${}^i\text{U}$ no urânio natural;

R_i = alcance das partículas alfa provenientes do ${}^i\text{U}$ no U_3O_8 e

$\lambda_{\alpha i}$ = constante de decaimento alfa para o ${}^i\text{U}$.

Para o cilindro de urânio dopado com elemento transurânico temos

$$\left(\frac{\rho_{\alpha T}}{\Delta t_{\alpha T}} \right) = \frac{1}{8} \epsilon_{\alpha} \left[R_T N_T \lambda_{\alpha T} + N'_U \left(\sum_{i=234,235,238} R_i C_i \lambda_{\alpha i} \right) \right] \quad (4.6)$$

onde

$\lambda_{\alpha T}$ = constante de decaimento alfa para o isótopo de interesse do transurânico.

Nas equações (4.5) e (4.6) as eficiências geométricas, $R_i/4$, precisam aparecer explicitamente pois as energias das partículas alfa são diferentes para os diferentes isótopos considerados. Destas equações, pode ser mostrado que

$$\frac{N_T}{N_U} = \frac{\left(\sum_{i=234,235,238} R_i C_i \lambda_{\alpha i} \right)}{R_T \lambda_{\alpha T}} \left[\frac{(\rho_{\alpha} / \Delta t_{\alpha})}{(\rho_{\alpha T} / \Delta t_{\alpha T})} - \frac{N'_U}{N_U} \right] \quad (4.7)$$

Podemos, ainda, modificar a equação (7) introduzindo uma nova quantidade $r_T = (R_T / R_U)$,

onde

$$R_U = \frac{\sum_{i=234,235,238} R_i C_i \lambda_{\alpha i}}{\sum_{i=234,235,238} C_i \lambda_{\alpha i}} \quad (4.8)$$

Desta forma, podemos reescrever a equação (4.7) como

$$\frac{N_T}{N_U} = \frac{\left(\sum_{i=234,235,238} C_i \lambda_{\alpha i} \right)}{r_T \lambda_{\alpha T}} \left[\frac{(\rho_{\alpha} / \Delta t_{\alpha})}{(\rho_{\alpha T} / \Delta t_{\alpha T})} - \frac{N'_U}{N_U} \right] \quad (4.9)$$

Desta forma, o valor de λ_f segue das equações (4.3), (4.4) e (4.9). Assim, a determinação desta constante depende, utilizando-se a técnica explicitada acima, apenas de medidas de densidades de traços, sem a necessidade de irradiação com nêutrons.

Os isótopos de elementos transurânicos usados neste trabalho foram fornecidos pelo Dr. Jorge Eduardo de Souza Sarkis, que chefia o Grupo de Caracterização Isotópica do IPEN/CNEN (São Paulo). Ele colocou à nossa disposição uma solução de nitrato de ^{241}Am e uma solução de nitrato de ^{242}Pu . Devido ao risco potencial que este tipo de material oferece à saúde, o acesso a ele é bastante restrito. Particularmente, o ^{242}Pu estava disponível em quantidades bastante limitadas. Por outro lado, o presente projeto dependia da utilização de filmes infinitos. Para satisfazer estas duas condições, deveríamos obter fontes usando a menor quantidade de material possível, mas garantindo que elas pudessem ser consideradas infinitas. Muitos dos procedimentos experimentais desta parte do projeto foram realizados no laboratório do grupo de Caracterização Isotópica do IPEN/CNEN, com a ajuda de Aline Katuscia Mateus Joaquim Burke, Maurício Kakazu e João Cristiano Ulrich.

Procedimentos experimentais e resultados

Obtenção dos filmes infinitos de urânio

Neste trabalho pretendíamos conseguir filmes de UO_x com $2 < x < 3$. No sistema UO_2-UO_3 existem 3 fases estáveis: UO_2 , U_3O_8 ($x=2,67$) e o UO_3 e algumas fases intermediárias: U_4O_9 ($x=2,25$), U_3O_7 ($x=2,33$) e U_2O_5 ($x=2,50$). O UO_2 é um óxido marrom de estrutura cristalina do tipo da fluorita (Allen e Holmes, 1995) que se transforma em U_3O_8 através de uma reação de dois passos (Belle, 1961): $UO_2 \rightarrow U_3O_7/U_4O_9 \rightarrow U_3O_8$. Quanto maior for a temperatura mais rápido será este processo (McEachern e Taylor, 1998).

Durante esta transformação o material sofre um aumento de 36% no seu volume total, provocado pela diminuição na densidade cristalina de cerca de 22%, o que pode causar rachaduras nos grãos (McEachern e Taylor, 1998). O U_3O_8 é um óxido preto-verde de estrutura cristalina ortorrômbica. O U_3O_8 pode ser obtido, também, a partir do UO_3 por aquecimento. Hoekstra e Siegel, 1960, estudaram em profundidade essas transformações. Eles mostraram que algumas das formas cristalinas do UO_3 (α, β e amorfa) são bastante estáveis até temperaturas em torno de 650°C quando começam a se transformar em U_3O_8 . Outras, δ e ϵ , se transformam na forma γ em temperaturas por volta de 450°C. Esta última resiste bem até cerca de 700°C. A partir daí passa a U_3O_8 .

O UO_3 existe na forma amorfa (laranja) e nas modificações cristalinas α (marrom, ortorrômbica), β (laranja, monoclinica), γ (amarela, ortorrômbica), δ (vermelha escura, cúbica), ϵ (vermelha, triclinica) e η (ortorrômbica). Esta última não é ainda muito bem estudada e há a possibilidade da existência de uma outra forma, ζ (marrom), ainda indefinida. O UO_3 pode ser obtido a

partir do nitrato de uranila.

Usamos, nos primeiros testes, filmes confeccionados a partir de soluções de nitrato de uranila diluídas em álcool. O álcool foi acrescentado para diminuir a viscosidade da solução. Preparamos soluções de concentração de urânio diferentes, da seguinte forma: aquecemos uma solução de nitrato de uranila de conteúdo de urânio conhecido para que o ácido nítrico evaporasse. Dissolvemos o urânio resultante numa quantidade de ácido nítrico suficiente para formar uma nova solução de nitrato de uranila e adicionamos o álcool até a mistura atingir a concentração de urânio desejada.

Depositamos a mistura sobre superfícies planas. Notamos que a mistura, quando depositada sobre uma superfície de alumínio ou aço inox, tomava a forma daquela superfície sem vazar pelas bordas. Os primeiros testes no forno resultaram em filmes aparentemente estáveis. Adotamos os metais como material de base nos filmes que confeccionamos daí em diante.

Depositamos a mistura, através de micropipetas, sobre cilindros de alumínio, aço inox e aço inox níquelado. Em geral, a mistura se espalhava pela base tomando a forma da superfície do cilindro. Nos casos onde as quantidades depositadas eram muito baixas a mistura não se espalhava pela base toda e nos casos onde as quantidades depositadas eram muito altas houve algum vazamento da mistura. Neste experimento variamos as concentrações das soluções e em cada concentração as quantidades depositadas sobre as bases.

Para transformar o nitrato em óxido seguimos os procedimentos descritos em Khillia e Rofail, 1986. Estes autores sugerem alguns procedimentos para a obtenção das diversas formas cristalinas do UO_3 .

Deixamos os filmes para secar em temperatura ambiente para que o álcool se evaporasse. Durante essa primeira secagem colocamos alguns filmes sobre uma plataforma giratória para que o urânio se espalhasse uniformemente pela base, enquanto os outros ficaram sobre uma mesa niveladora. Depois eram expostos a uma lâmpada de infra-vermelho e então levados ao forno que era aquecido em

intervalos de 50°C. Entre 50°C e 100°C o nitrato de uranila se transforma em cristal de nitrato uranilo hexahidratado (Khillia e Rofail, 1986). Aumentamos a temperatura do forno até 350°C e esta permaneceu estável por cerca de 15 horas (filmes 1 a 30). Em seguida, acoplamos placas de CR-39 aos filmes para a coleta de traços de partículas alfa e realizamos o ataque químico (NaOH 6,25N, por 400 minutos a 70°C). Contamos os traços ao microscópio óptico e determinamos as suas densidades superficiais de traços. Na Tabela 4.1, apresentamos um resumo da confecção destes filmes.

Tabela 4.1. Propriedades e detalhes da confecção dos filmes confeccionados a 350°C.

filme	volume depositado (µl)	concentração de urânio na solução (mg/ml)	área do filme** (cm ²) (material da base*)	quantidade de urânio por unidade de área do filme (mg/cm ²)	densidade de traços por tempo de exposição (10 ⁵ cm ⁻² h ⁻¹)
1	120	197,0	(I)		
2	160	197,0	3,02(A)	10,44	1,16±0,02
3	200	197,0	(I)		
4	240	197,0	3,14(A)	15,06	1,31±0,02
5	280	197,0	3,14(I)	17,57	1,18±0,02
6	320	197,0	3,14(A)	20,08	1,31±0,02
7	360	197,0	3,14(I)	22,59	1,29±0,02
8	240	197,0	3,14(A)	15,06	1,21±0,02
9	180	197,0	3,14(I)	11,29	1,26±0,02
10	120	132,0	1,99 (A)	7,98	1,24±0,02
11	135	132,0	(I)		
12	150	132,0	2,72 (A)	7,29	1,20±0,02
13	165	132,0	2,43 (I)	8,96	1,28±0,02

filme	volume depositado (µl)	concentração de urânio na solução (mg/ml)	área do filme** (cm ²) (material da base*)	quantidade de urânio por unidade de área do filme (mg/cm ²)	densidade de traços por tempo de exposição (10 ⁵ cm ⁻² h ⁻¹)
14	180	132,0	2,85 (A)	8,34	1,30±0,02
15	195	132,0	(I)		
16	210	132,0	2,88 (A)	9,63	1,14±0,02
17	225	132,0	(I)		
18	240	132,0	2,99 (A)	10,60	
19	255	132,0	(I)		
20	270	132,0	2,94 (A)	12,12	1,24±0,02
21	360	265,0	4,16(N)	22,98	1,30±0,02
22	360	265,0	4,16(N)	22,98	1,23±0,02
23	300	265,0	4,16(N)	19,16	1,28±0,02
24	330	265,0	4,16(N)	21,07	1,23±0,02
25	270	265,0	4,16(N)	17,24	1,29±0,02
26	390	265,0	4,16(N)		
27	390	265,0	4,16(N)		
28	360	197,0	4,16(N)	17,09	1,24±0,02
29	360	197,0	4,16(N)	17,09	1,23±0,02
30	300	265,0	4,16 (N)	19,11	

* A – alumínio; I – aço inox; N – aço inox niquelado.

** nos campos onde a área não foi marcada, o filme se estragou.

Os filmes que foram levados a 350°C apresentam coloração marrom alaranjada bastante uniforme. Os principais candidatos a constituintes desses filmes são o βUO_3 e o UO_3 amorfo. Alguns destes filmes apresentaram rachaduras após o aquecimento.

Num outro conjunto de filmes a temperatura foi aumentada até 700°C onde permaneceu também por cerca de 15 horas (filmes 31 a 44).

A Tabela 4.2 mostra um resumo da confecção destes filmes.

Tabela 4.2. Propriedades e detalhes da confecção dos filmes confeccionados a 700°C.

filme	volume depositado (µl)	concentração de urânio na solução (mg/ml)	área do filme** (cm ²) (material da base*)	quantidade de urânio por unidade de área do filme (mg/cm ²)	quantidade de urânio por unidade de área (mg/cm ²)
31	120	143,5	4,16 (N)	4,14	0,873±0,002
32	240	143,5	4,16 (N)	8,28	
33	300	143,5	4,16 (N)	10,35	1,14±0,02
34	180	143,5	4,16 (N)	6,21	
35	180	143,5	4,16 (N)	6,21	1,03±0,02
36	240	143,5	4,16 (N)	8,28	
37	300	143,5	4,16 (N)	10,35	
38	240	287,0	4,16 (N)	16,56	1,18±0,02
39	180	287,0	4,16 (N)	12,42	1,15±0,02
40	300	287,0	4,16 (N)	20,69	1,12±0,02
41	300	400,0	4,16 (N)	28,85	
42	240	215,5	4,16 (N)	12,43	
43	240	33,95	(N)		
44	200	19,92	(N)		

* N – aço inox niquelado.

** nos campos onde a área não foi marcada, o filme se estragou.

Os filmes que foram aquecidos até 700°C apresentaram uma mistura de cores (principalmente amarelo, laranja e marrom). Os filmes foram aquecidos lentamente, portanto as mudanças de fase deveriam

ocorrer lentamente. A primeira mudança que deveríamos esperar era a do nitrato para o UO_3 por volta de 200°C (Lainetti e Gracher Riella, 1991). Por volta de 700°C , o UO_3 deveria começar a se transformar em U_3O_8 . Pelo procedimento utilizado, somos levados a crer que os filmes são formados por uma mistura de diferentes formas cristalinas do UO_3 e U_3O_8 . Diferentemente dos filmes levados a 350°C , estes não apresentaram rachaduras após o aquecimento.

As Figuras 4.1 e 4.2 mostram curvas de densidades de traços em função da espessura dos filmes.

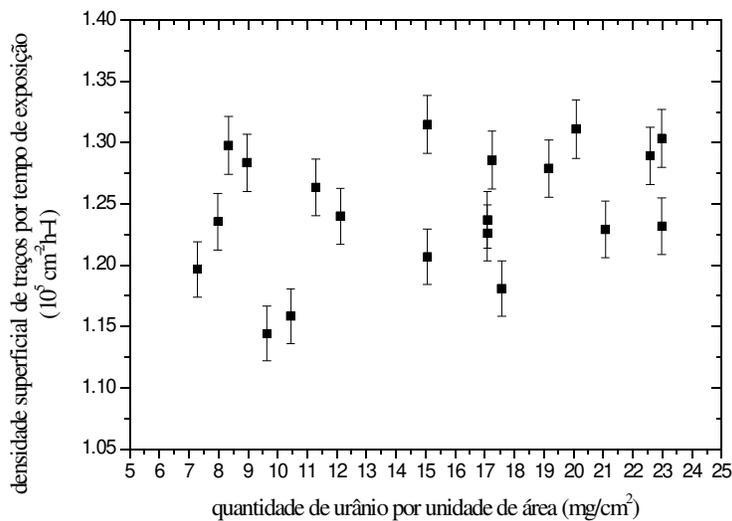


Figura 4.1. Gráfico de densidades de traços, por unidade de tempo de exposição do detector à fonte, em função da espessura dos filmes levados a 350°C . A figura mostra que houve uma grande dispersão dos pontos

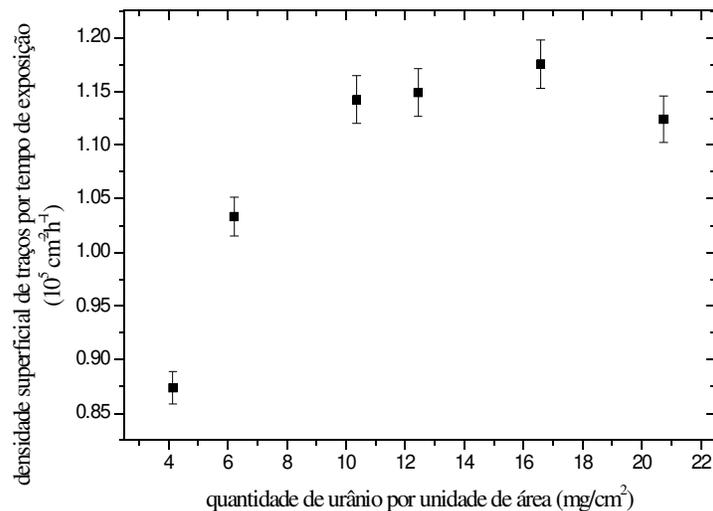


Figura 4.2. Curva de densidades de traços, por unidade de tempo de exposição do detector à fonte, em função da espessura dos filmes levados a 700°C. A curva se estabiliza para valores de espessura de aproximadamente 10 mg/cm².

A Figura 4.1 mostra uma grande dispersão nas medidas de densidades de traços. Tal dispersão poderia ser consequência da mistura de óxidos resultante ou das rachaduras formadas após o aquecimento e que podem ter ocasionado perda de material e/ou alteração da eficiência. Já na Figura 4.2, onde estão representados os filmes que foram aquecidos até 700°C, encontramos o comportamento esperado: a densidade de traços cresce com o aumento da espessura das fontes até atingir um patamar onde não há variação na densidade de traços. Podemos concluir da figura que os filmes com espessura maior do que aproximadamente 10 mg/cm² podem ser considerados infinitos. No Apêndice C há uma explicação detalhada sobre o comportamento da densidade de traços no detector como função da espessura das fontes.

O mesmo procedimento de confecção foi usado em todos os filmes apresentados até aqui. A diferença entre eles foi a temperatura a que foram submetidos. Os filmes levados a 700°C apresentaram melhores resultados do que os filmes levados a 350°C. No entanto, persiste uma mistura de óxidos, que

poderia ser eliminada se os filmes fossem aquecidos até 850°C (Hoekstra e Siegel, 1960), onde obteríamos filmes de U_3O_8 . Entretanto, o procedimento que usamos até aqui não é conveniente para prosseguirmos aumentando a temperatura. Testes preliminares produziram filmes com muitas fissuras e pouco aderidos à base. Portanto, outro método foi testado na tentativa de produzir os filmes de U_3O_8 que é um óxido que tem apenas uma forma cristalina estável, αU_3O_8 (Allen e Holmes, 1995).

Com a ajuda de uma pipeta, depositamos a solução de nitrato de uranila num cadinho de porcelana. Expusemos a solução a uma lâmpada de infra-vermelho para que houvesse uma primeira secagem, após a qual levamos o cadinho contendo a solução ao forno. Variamos a temperatura da temperatura ambiente ($\sim 25^\circ C$) até 850°C, onde permaneceu por cerca de 10 horas.

O produto obtido é um pó cinza escuro, provavelmente U_3O_8 . Transferimos o óxido para um almofariz forrado com papel alumínio, onde realizamos uma moagem com a ajuda de um pistilo, também coberto com papel alumínio. O papel alumínio é usado para evitar que o óxido se deposite nas rugosidades do almofariz e do pistilo. Além disso, o uso do papel alumínio facilita o transporte do óxido de um recipiente para outro. Após a moagem, transferimos o óxido (aproximadamente 100 mg) para um becker de 5,0 ml. Através de uma pipeta pasteur, depositamos aproximadamente 0,5 ml de álcool ao becker. Agitamos o becker até o óxido formar uma mistura com o álcool.

Depositamos a mistura sobre um cilindro de alumínio ou aço inox de dimensões aproximadas 2,0 cm de diâmetro e 2,0 mm de altura, cuja massa havíamos previamente medido numa balança analítica. Submetemos o conjunto a uma secagem com o auxílio de uma lâmpada de infra-vermelho e determinamos a sua massa também na balança analítica. Para aumentar a espessura do filme, repetimos o processo. A área do filme fica delimitada pela própria área do cilindro. Devido à tensão superficial do álcool sobre as bases metálicas usadas neste trabalho, a mistura óxido-álcool fica confinada à superfície do cilindro sem vazar pelas bordas. O urânio, então, deposita-se sobre superfície e o álcool evapora promovendo uma compactação do óxido pulverizado. A cada deposição, em cada filme,

acoplamos pedaços de CR-39 para a coleta de traços de partículas alfa. Depois de atacados por 400 minutos em NaOH 6,25N a 70°C, os traços foram contados ao microscópio óptico e as suas densidades superficiais foram calculadas. Os resultados estão mostrados na Tabela 4.3.

Tabela 4.3. Resultados para a confecção dos filmes levados a 850o C.

Detector*	quantidade de U ₃ O ₈ por unidade de área do filme (mg/cm ²)	densidade de traços por tempo de exposição (x10 ⁹ cm ⁻² a ⁻¹)
50i	4,85	1,048±0,017
50ii	7,93	1,205±0,018
51	6,14	1,199±0,018
52	6,86	1,263±0,018
53i	10,3	1,291±0,021
53ii	15,8	1,212±0,019
53iii	19,5	1,276±0,021
54	4,9	0,890±0,015
55	5,6	1,143±0,017
56	4,4	1,027±0,017
57	7,8	1,231±0,018
59i	11,35	1,244±0,025
59ii	16,01	1,271±0,021
62	23,13	1,285±0,012
64	14,13	1,269±0,012
65	16,8	1,247±0,013
66	14,72	1,239±0,025
67	16,24	1,247±0,023

* o número arábico indica o filme e o número romano distingue a exposição.

A Figura 4.3 mostra a representação gráfica dos valores mostrados na Tabela 4.3.

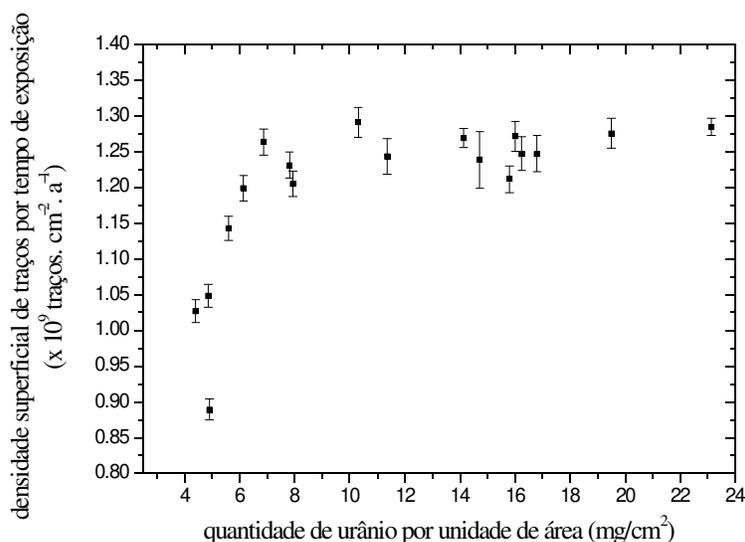


Figura 4.3. Curva de densidades de traços, por unidade de tempo de exposição do detector à fonte, em função da espessura dos filmes levados a 850°C. A curva se estabiliza em aproximadamente 10 mg/cm².

Os filmes de U₃O₈ ficaram bastante estáveis, não apresentando variações de cor. Da Figura 4.3, vemos que a curva de densidade de traços em função da espessura do filme tende para um patamar começando em aproximadamente 10 mg/cm². Este resultado é semelhante àquele encontrado para os filmes levados a 700°C. Estes dois últimos conjuntos mostraram-se oportunos para os nossos propósitos: conseguimos fabricar filmes infinitos e os filmes ficaram bastante estáveis em ambos os casos. Porém, os filmes de U₃O₈ resultaram numa fase única, cinza escuro, em oposição à mistura encontrada naqueles aquecidos à 700°C. Além disso, o processo levando aos filmes de U₃O₈ é mais conveniente, já que o óxido é aquecido antes de ser depositado sobre a base. Escolhemos, portanto, usar o último método de confecção de filmes infinitos. Para tornar possível a realização desta medida, faltava ainda encontrar um método para dopar os filmes de urânio com um elemento transurânico. No cálculo de N_T / N_U (equação (4.9)), usaremos o valor de $(\rho_\alpha / \Delta t_\alpha)$, que é a média do platô da curva da Figura 4.3:

$$(\rho_{\alpha}/\Delta t_{\alpha}) = (1,274 \pm 0,006) \times 10^9 \text{ cm}^{-2} \text{ a}^{-1}.$$

Realizando um teste χ^2 para os 10 pontos nesta região da curva encontramos, para $\nu = 9$ graus de liberdade:

$$\chi^2 = 8,425$$

$$\chi_{\nu}^2 = 0,94$$

$$P_{\chi} \sim 0,50.$$

Tal teste indica que há uma boa coerência interna entre os pontos considerados e que a média encontrada é compatível com estes pontos.

Dopagem das fontes de urânio

Para testar a dopagem do urânio, escolhemos o ^{241}Am como dopante. Este isótopo do amerício tem uma meia-vida muito curta ($t_{1/2} = 432,2 \text{ a}$), que torna possível a análise alfa via CR-39 mesmo quando a razão entre átomos de ^{241}Am e urânio é tão pequena quanto 10^{-6} .

Na confecção dos filmes contendo amerício, usamos uma solução de nitrato cuja concentração de amerício era $6,9 \mu\text{g/g}$ e uma solução de nitrato de uranila de concentração 150 mg/ml . Usamos $100 \mu\text{l}$ da solução de amerício para $3,0 \text{ ml}$ de N.U. Seguindo os procedimentos descritos anteriormente, confeccionamos dois filmes, que denominamos A1 e A2. Fizemos exposições de CR-39 aos filmes por $2,0$ minutos. Os detectores foram atacados quimicamente em $\text{NaOH } 6,25\text{N}$ por 400 minutos a 70°C e os traços contados ao microscópio óptico. A tabela abaixo mostra os resultados obtidos da análise alfa destes filmes:

Tabela 4.4. Resultados dos testes de dopagem das fontes de urânio com

^{241}Am .

<i>filme</i>	<i>Teste χ^2</i>			$(\rho_{\alpha}^{241}/\Delta t)^*$ $(10^4 \text{ cm}^{-2} \text{ min}^{-1})$	$(N_{241}/N_U)^{**}$ (10^{-6})
	<i>Número de graus de liberdade, ν</i>	χ^2_{ν}	P_{χ}		
I	96	0,97	0,6	$4,03 \pm 0,07$	$3,06 \pm 0,06$
II	96	0,79	0,9	$3,99 \pm 0,07$	$3,03 \pm 0,06$

* densidade de traços de partículas alfa no CR-39 por tempo de exposição ao filme.

** razão entre os números de átomos de ^{241}Am e U natural no filme.

Contamos os traços no detector em posições determinadas, distribuídas em uma rede quadrada. Se somamos os traços contados em todas as posições de uma linha (ou coluna) desta rede, temos um valor que é proporcional à atividade alfa média nesta linha (ou coluna). Se colocamos num gráfico a atividade média das linhas em função da posição de cada linha, obtemos um perfil médio de atividade do filme na direção das linhas. Se repetimos isto para as colunas temos um perfil médio de atividade na direção perpendicular. Desta forma, podemos descobrir possíveis desuniformidades na distribuição de material no filme. A Figura 4.4 mostra um esquema ilustrando este procedimento e a Figura 4.5 mostra os perfis médios de atividade destes filmes.

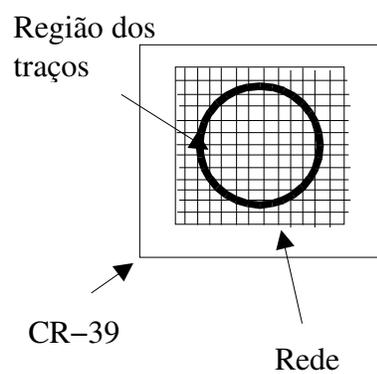


Figura 4.4. Esquema do método de contagem de traços. Uma rede quadrangular é definida numa região contendo a área exposta ao filme e os traços são contados em todas as posições desta rede.

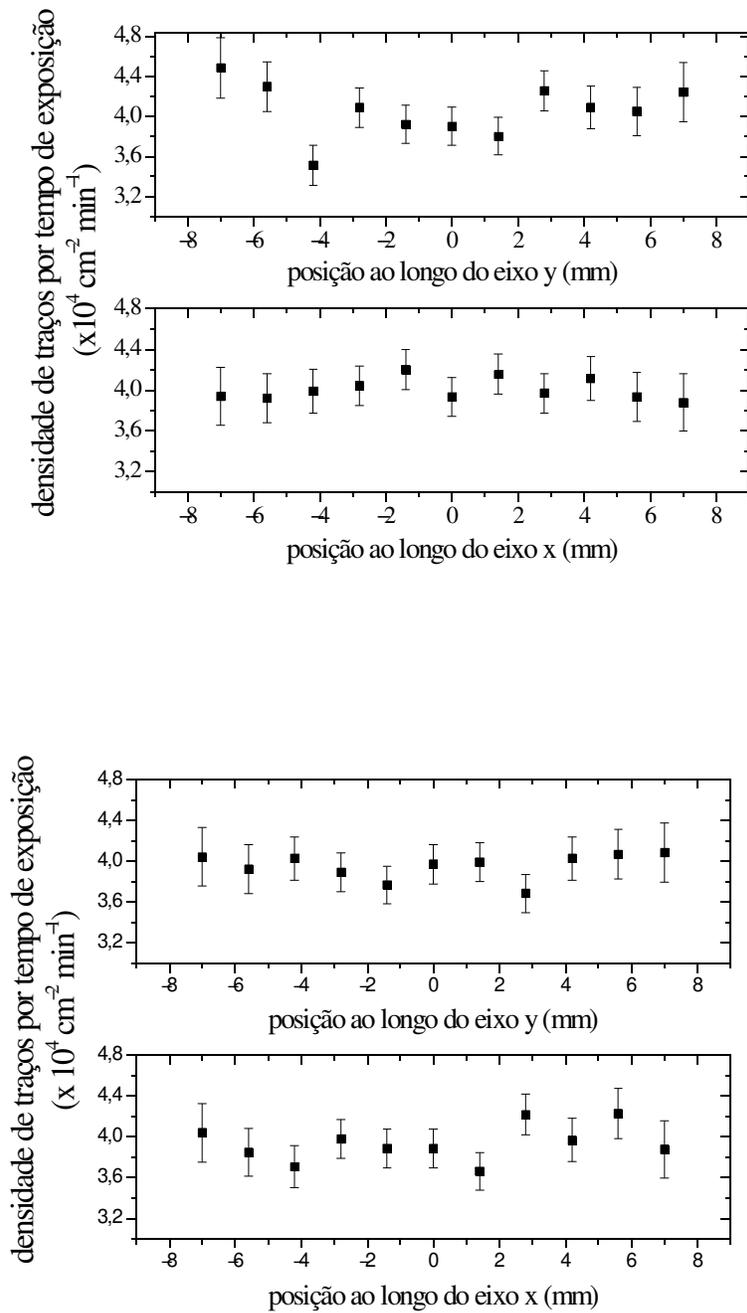


Figura 5. Perfis de atividade alfa dos filmes de urânio dopados com ²⁴¹Am.

Podemos ver dos resultados mostrados na Tabela 4.4 que as atividades dos 2 filmes concordam entre si dentro de um desvio. Isto é compatível com o fato dos filmes serem infinitos. O teste χ^2

mostrado na mesma tabela foi feito usando os números de traços dos 97 campos contados em cada filme. Os resultados obtidos neste teste indicam uma boa coerência entre os dados, que é confirmada pelos perfis de atividade da Figura 4.5. É importante notar que a atividade alfa encontrada é, principalmente, devida ao amerício. Para um filme de urânio somente esperaríamos obter densidades de traços por tempo de exposição de aproximadamente $2,5 \times 10^3$ traços.cm⁻².min⁻¹. Na Tabela 4.4 vemos que os valores encontrados para estes filmes são de aproximadamente $4,0 \times 10^4$ traços.cm⁻².min⁻¹. Do que foi dito aqui podemos concluir que o dopante, no caso o amerício, está uniformemente distribuído no filme. O método se mostrou adequado mesmo para proporções tão pequenas de dopante (da ordem de 3 ppm). Infelizmente, devido à sua meia-vida para fissão espontânea não ser tão curta ($1,0 \times 10^{14}$ a), o ²⁴¹Am não é uma boa fonte de fragmentos de fissão. Por exemplo, precisaríamos de 1,2% em massa de ²⁴¹Am para obter tantos traços de fissão espontânea de ²⁴¹Am quanto traços de fissão espontânea de ²³⁸U. Este número se torna bem menor quando consideramos o ²⁴²Pu, $8,3 \times 10^{-6}$. Além disso, este isótopo tem uma meia-vida para decaimento alfa apropriada para a análise apresentada neste trabalho ($3,733 \times 10^5$ a) e a constante de decaimento para fissão espontânea, $1,0287 \times 10^{-11}$ a⁻¹, é conhecida com uma precisão de 1,1%.

Confecção e análise de atividade alfa, via CR-39, de fontes de urânio dopadas com ²⁴²Pu

Para a confecção de filmes dopados com ²⁴²Pu usamos uma solução de nitrato de concentração nominal 20 µg/ml e a mesma solução de nitrato de uranila de concentração 150 mg/ml usada nos filmes dopados com amerício. Preparamos os filmes com três proporções diferentes de plutônio e urânio, que estão mostradas na Tabela 4.5.

Tabela 4.5. Quantidades de material usados na confecção das pastilhas dopadas com ^{242}Pu

<i>lote</i>	<i>volume de nitrato de uranila (ml)</i>	<i>volume de nitrato de plutônio (ml)</i>	<i>(N₂₄₂/N_U) estimado</i>
P1	2	3	2×10^{-4}
P2	5	0,1	3×10^{-6}
P3	5	2	5×10^{-5}

Foram confeccionados 3 filmes para cada lote, seguindo os mesmos procedimentos adotados para os filmes dopados com amerício. Detectores CR-39 foram expostos aos filmes por tempos de exposição determinados. Em seguida, os detectores foram atacados quimicamente em NaOH 6,25 N por 400 minutos a 70°C e os traços foram contados ao microscópio óptico. Os resultados estão mostrados na Tabela 6. O filme III do lote P1 e o filme III do lote P2 não puderam ser analisados.

Tabela 4.6. Densidades de traços nos detectores acoplados aos filmes dopados com ^{242}Pu e valores da razão N_{242}/N_U .

<i>filme</i>	$(\rho_{\alpha 242}/\Delta t)^*$ $(10^3 \text{ cm}^{-2} \text{ min}^{-1})$	$(N_{242}/N_U)^{**}$
I-P1	$36,4 \pm 0,7$	$(2,38 \pm 0,05) \times 10^{-3}$
II-P1	$36,6 \pm 0,3$	$(2,40 \pm 0,03) \times 10^{-3}$
I-P2	$2,92 \pm 0,08$	$(3,45 \pm 0,10) \times 10^{-5}$
II-P2	$2,87 \pm 0,08$	$(3,09 \pm 0,09) \times 10^{-5}$
I-P3	$10,88 \pm 0,15$	$(5,94 \pm 0,10) \times 10^{-4}$
II-P3	$11,16 \pm 0,17$	$(6,13 \pm 0,11) \times 10^{-4}$
III-P3	$11,10 \pm 0,14$	$(6,09 \pm 0,10) \times 10^{-4}$

Comparando os valores da 3ª. coluna da Tabela 4.6 com aqueles da 4ª. coluna da Tabela 4.5, notamos que eles apresentam uma enorme discrepância. Os valores obtidos na Tabela 4.6 poderiam somente ser explicados se a concentração da solução fosse cerca de 17 vezes maior que a concentração nominal. Outra hipótese, esta mais provável, é a contaminação desta solução por emissores alfa, o que também explicaria os resultados encontrados já que eles são derivados da medida de atividades alfa via CR-39.

Exposição para coleta de traços de fissão espontânea nos filmes de U_3O_8

Estabelecido o método de confecção e calibração de fontes de U_3O_8 com e sem ^{242}Pu , o próximo passo foi a exposição para coleta de traços de fissão espontânea de ambos os tipos de fonte. Nesta seção apresentaremos os detalhes e resultados da exposição dos filmes sem o transurânico e, na próxima, para os filmes contendo o ^{242}Pu .

A 4 filmes (62, 64, 65 e 67; ver Tabela 4.3) acoplamos pedaços de mica muscovita pelo mesmo tempo de exposição $\Delta t = 0,515$ anos. Após as exposições, os detectores foram atacados quimicamente em HF 48% por 90 minutos a 15°C. O ataque foi feito em conjunto com as micas expostas aos filmes contendo ^{242}Pu (ver próxima seção), para garantir que o ataque seria idêntico nos dois casos. Em seguida, contamos os traços e determinamos a sua densidade superficial. Os resultados estão mostrados na Tabela 4.7.

Tabela 4.7. Resultados das exposições das micas muscovitas aos filmes infinitos de U_3O_8 .

<i>fonte</i>	<i>Número de traços</i>	σ (%) (Poisson)	<i>Densidade de traços de fissão por tempo de exposição ($\pm 1\sigma$)</i> ($10^2 \text{ cm}^{-2} \text{ a}^{-1}$)
62	532	4,3	$4,66 \pm 0,20$
64	547	4,3	$4,79 \pm 0,20$
65	526	4,4	$4,61 \pm 0,20$
67	540	4,3	$4,73 \pm 0,20$

Podemos ver nesta Tabela que a contagem de traços produziu valores de densidades coerentes entre si, concordantes dentro de um desvio. O número total de traços contados, 2145 traços, garante que a contribuição destas exposições para o erro final da medida de λ_f será pequena, $\sim 2\%$.

Exposição para coleta de traços de fissão espontânea nos filmes de U_3O_8 contendo ^{242}Pu

Acoplamos a todos os filmes mostrados na Tabela 4.6 pedaços de mica muscovita por um tempo de exposição $\Delta t_{ST} = 0,192$ anos. Após as exposições, os detectores foram atacados quimicamente em conjunto com aqueles expostos às fontes sem ^{242}Pu . Aqui, porém, encontramos um número significativo de traços somente nos filmes do grupo P1 que receberam uma maior quantidade de ^{242}Pu . Os resultados estão na Tabela 4.8.

Tabela 4.8. Resultados das exposições das micas muscovitas aos filmes infinitos de U_3O_8 dopados

com ^{242}Pu

<i>fonte</i>	<i>Número de traços</i>	σ (%) (Poisson)	<i>Densidade de traços de fissão por tempo de exposição ($\pm 1\sigma$)</i> ($10^3 \text{ cm}^{-2} \text{ a}^{-1}$)
I-P1	1172	2,9	$2,758 \pm 0,081$
II-P1	1147	3,0	$2,699 \pm 0,080$

O valor médio das densidades de traços por unidade de tempo de exposição, dados na quarta coluna da Tabela 4.8 resulta em

$(\rho_{\text{ST}} / \Delta t_{\text{ST}}) = (2,727 \pm 0,057) \times 10^3 \text{ cm}^{-2} \text{ a}^{-1}$. Este valor será usado no cálculo de λ_f pela equação 4.4.

O número de traços encontrados nestes dois detectores, 2319 no total, é bastante razoável em termos estatísticos, porém é bem menor que o esperado. Nos filmes dos outros grupos, P2 e P3, encontramos um número muito baixo de traços impossibilitando a utilização destes detectores.

O fato de termos encontrado menos traços do que o inicialmente suposto, reforça a hipótese de que a solução de plutônio usada neste trabalho continha algum tipo de contaminação, provavelmente de isótopos emissores alfa. Para verificar esta hipótese, pedimos análises de espectrometria alfa e gama da solução utilizada. A análise gama foi realizada pela Dra. Mitiko Saiki utilizando um detector de germânio. A análise alfa foi realizada pela Dra. Mitiko Yamaura. Ambas as análises foram realizadas no IPEN/CNEN, em São Paulo.

Os resultados da espectrometria gama estão mostrados na Figura 4.6.

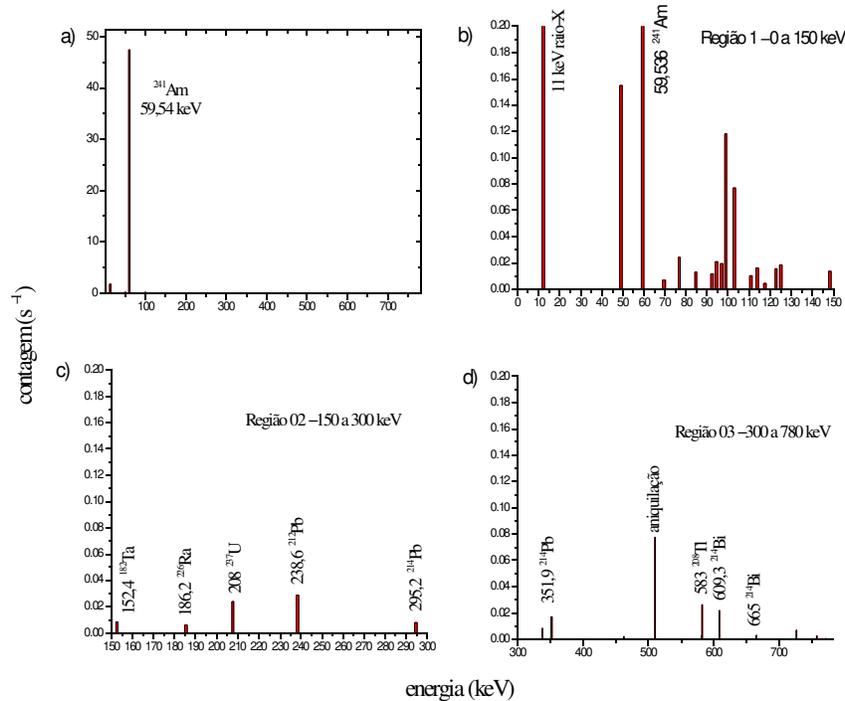


Figura 4.6. Resultado da espectrometria gama com detector de Ge. O espectro foi dividido em regiões para que o espectro pudesse ser integralmente visualizado. a) visão geral do espectro. A linha em 59,54 keV é atribuída ao ^{241}Am ; b) região 1: 0–150 keV; c) região 2: 150–300 keV e d) região 3: 300–780 keV.

A Figura 4.6 (a) mostra um pico bastante pronunciado, que pode ser atribuído ao ^{241}Am . O pico de 11 keV, Figura .6 (a) e (b), é característico do detector, assim como aquele em 510 keV (Figura 4.6 (d)). Na região entre 45 e 120 keV, Figura 4.6 (b), aparecem vários picos que são emissões gama do ^{241}Am e raios-X do urânio. Particularmente, deve ser notado que a emissão destes raios-X ocorre após o decaimento do plutônio em urânio por emissão alfa (Matzke, 1999), o que indica a presença de isótopos de plutônio na solução analisada. Os outros picos, Figura 4.6 (c) e (d),

são devidos a elementos aparecendo no final das cadeias do urânio e tório. Tais emissões poderiam ter sido geradas por radônio (^{222}Rn e ^{226}Rn) e filhos no ar ou por elementos resultantes da cadeia de decaimento dos isótopos do Pu que passam pelas cadeias de decaimento de urânio e tório. Portanto, da análise da Figura 4.6, podemos concluir que a solução utilizada contém plutônio e ^{241}Am .

Análise de energia alfa

O resultado da espectrometria alfa está mostrado na Figura 4.7.

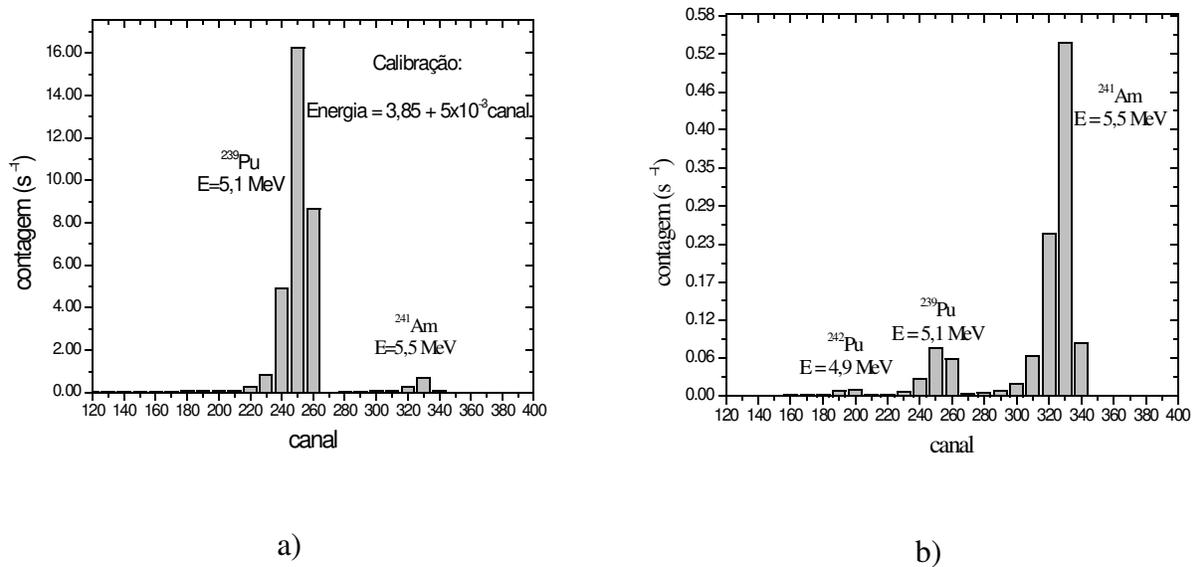


Figura 4.7. Resultados da espectrometria alfa. A calibração do detector foi feita através do padrão em a) e aplicada à amostra em b). Desta forma foi possível determinar as energias correspondentes a cada pico.

O histograma (a) da Figura 7 é o espectro de energias de uma solução padrão de ^{239}Pu com uma pequena parte de ^{241}Am . A partir desta distribuição, podemos encontrar a calibração do detector, relacionando energia com canal, que, para a região de energias estudada resulta em

$$\text{energia} = 3,85 + 5 \times 10^{-3} \text{ canal}$$

Vale lembrar que esta calibração é uma aproximação linear, que deve ser usada somente na região considerada. Não necessariamente ela é válida para todo o espectro de energias alcançado pelo detector.

O histograma da Figura 4.7 (b) é o espectro de energias da solução usada neste trabalho. Aplicando a calibração encontrada, podemos distinguir 3 picos: 4,8 MeV (^{242}Pu), 5,1 MeV (^{239}Pu e/ou ^{240}Pu e 5,5 MeV (^{241}Am). Mesmo após analisar este histograma, ainda persiste a dúvida sobre a exata composição isotópica da solução. Como veremos a seguir esta dúvida é resolvida se levamos em conta os resultados de atividade alfa obtidos com a exposição do CR-39 às fontes dopadas e não-dopadas.

Determinação da composição isotópica da solução utilizada

Das análises de energia alfa e gama, podemos definir a presença de ^{242}Pu e ^{241}Am . O pico de 4,9 MeV na Figura 4.7 (b) poderia ser devido ao ^{239}Pu ou ao ^{240}Pu . Destes somente o ^{240}Pu é fonte importante de fragmentos de fissão. Portanto, precisávamos saber se este isótopo estava presente e em que quantidade. Para isso, usamos as informações obtidas até aqui da seguinte forma: 1) calculamos qual deveria ser a razão de densidades de traços de partículas alfa para diferentes combinações de isótopos pela seguinte fórmula:

$$\left(\frac{\rho_{\alpha T} / \Delta t_{\alpha T}}{\rho_{\alpha} / \Delta t_{\alpha}} \right) = \frac{1}{\sum_{i=\text{urânio}} C_i \lambda_{\alpha i}} \left[a'_U \sum_{i=\text{urânio}} C_i \lambda_{\alpha i} + \sum_{j=\text{trans}} a_j \lambda_{\alpha j} r_j \right] \quad (4.10)$$

Onde

a_j = razão entre o número de átomos do transurânico j e o número de átomos de urânio, N_j / N_U ;

$a'_U = N'_U / N_U$;

$\lambda_{\alpha j}$ = constante de decaimento alfa do transurânico j e

$r_j = R_j / R_U$.

A equação (4.10) pode ser derivada da equação (4.9) se considerarmos a contribuição para a atividade alfa de mais de um isótopo transurânico. Valores de a_j foram sorteados obedecendo à seguinte equação:

$$a'_U + \sum_{j=trans} a_j = 1 \quad (4.11)$$

A equação (4.11) é a generalização da equação (4.3).

Os valores obtidos pela equação (4.10) foram comparados àqueles obtidos experimentalmente e, quando houve acordo dentro de um desvio, a combinação sorteada foi aceita. O valor experimental usado para comparação foi

$$[(\rho_{\alpha 242} / \Delta t_{\alpha 242}) / (\rho_{\alpha} / \Delta t_{\alpha})] = 15,09 \pm 0,13$$

onde $(\rho_{\alpha} / \Delta t_{\alpha})$ é a média dos pontos no platô da Figura 4.3 e $(\rho_{\alpha 242} / \Delta t_{\alpha 242}) = (1,923 \pm 0,057) \times 10^{10} \text{ cm}^{-2} \text{ a}^{-1}$, é a média dos valores para os filmes do grupo P1 na Tabela 4.6.

2) O espectro de energias das partículas alfa gerado por cada combinação aceita no primeiro teste foi comparado com aquele mostrado na Figura 4.7 (b).

Todo o processo, desde o sorteio dos a_j 's até a comparação de espectros de energia, foi repetido

10 milhões de vezes para cada combinação de isótopos considerada com ajuda de um *script* desenvolvido por Kesley Moraes Godinho de Oliveira em linguagem Perl para Linux, denominado *simulação.pl*.

Realizando estes testes, concluímos que a única combinação que obedece, simultaneamente, às condições impostas pela análise de atividades alfa via CR-39 e pelo espectro de energias alfa da Figura 4.7 (b) e que necessariamente incluía o ^{241}Am (inferido do espectro de energias de raios gama) é ^{241}Am , ^{242}Pu , ^{239}Pu e ^{241}Pu . Este último isótopo não contribui com atividades alfa e de fissão espontânea. Porém, se considerarmos que a solução original era uma mistura de isótopos de plutônio, poderíamos explicar a presença de ^{241}Am como produto de decaimento por emissão de partículas beta do ^{241}Pu . De qualquer forma, a presença deste isótopo não influencia o resultado. Na Tabela 4.9 apresentamos os resultados concernentes à composição química da solução usada para dopar os filmes.

Tabela 4.9. Quantidades relativas e contribuição para fissão espontânea dos isótopos presentes na solução estudada

<i>isótopo</i>	<i>Atividade alfa relativa (%)</i>	<i>Quantidade relativa de átomos (%)</i>	<i>Razão entre as fissões do isótopo e as do ^{242}Pu</i>
^{242}Pu	2,2	64	1
^{239}Pu	15,0	31	4×10^{-6}
^{241}Am	82,8	3	3×10^{-5}
^{241}Pu	–	2 (estimativa)	4×10^{-8}

Na última coluna desta tabela, estão mostradas as contribuições para as fissões espontâneas dos isótopos compondo a solução em relação às fissões do ^{242}Pu . As atividades de fissão provenientes dos

outros isótopos podem ser desconsideradas pois não interferirão no resultado final. Deste modo, precisamos apenas conhecer a quantidade relativa entre átomos de ^{242}Pu e átomos de urânio. Isso pode ser feito modificando a equação (4.10), introduzindo uma nova variável k_j definida por $a_j \lambda_{\alpha_j} = k_j \times a_{242} \lambda_{\alpha_{242}}$. Assim podemos determinar $a_{242} = N_{242}/N_U$ por

$$\frac{N_{242}}{N_U} = \frac{\sum_{i=\text{urânio}} C_i \lambda_{\alpha_i}}{\lambda_{\alpha_{242}} \sum_{j=\text{trans}} k_j r_j} \left(\frac{\rho_{\alpha T} / \Delta t_{\alpha T}}{\rho_{\alpha} / \Delta t_{\alpha}} - \frac{N'_U}{N_U} \right) \quad (4.12)$$

As constantes k_j podem ser obtidas diretamente da segunda coluna da Tabela 4.9. Na Tabela 4.10, mostramos os resultados deste cálculo para os filmes do grupo P1.

Tabela 4.10. Calibração dos filmes de urânio dopados com ^{242}Pu

<i>filme</i>	$\rho_{\alpha T} / \Delta t_{\alpha T}$ $(10^{10} \text{ cm}^{-2} \text{ a}^{-1})$	N_{242}/N_U (10^{-5})
I-P1	$1,914 \pm 0,037$	$4,01 \pm 0,39$
II-P1	$1,925 \pm 0,016$	$4,04 \pm 0,39$

A média ponderada dos valores da terceira coluna da Tabela 4.10 é

$$(N_{242}/N_U) = (4,03 \pm 0,28) \times 10^{-5}.$$

É este valor que usaremos no cálculo de λ_f .

Cálculo de λ_f

Temos agora todos os valores necessários para o cálculo da constante de desintegração por fissão espontânea do urânio natural pela equação (4.4). A Tabela 11 mostra os valores calculados desta constante.

Tabela 11. Resultados de λ_f obtidos pela equação (4)

<i>fonte</i>	<i>densidade de traços de fissão por tempo de exposição</i> <i>(10² cm⁻² a⁻¹)</i>	λ_f <i>(10⁻¹⁷ a⁻¹)</i>	<i>desvio</i> <i>(%)</i>
62	4,66 ± 0,20	8,60 ± 0,77	8,9
64	4,79 ± 0,20	8,89 ± 0,79	8,9
65	4,61 ± 0,20	8,49 ± 0,76	8,9
67	4,73 ± 0,20	8,76 ± 0,78	8,9

A média ponderada dos valores de λ_f da terceira coluna da Tabela 11 é

$$\lambda_f = (8,7 \pm 0,4) \times 10^{-17} \text{ a}^{-1} \text{ (incerteza de 4,5 \%)}.$$

Discussão

A maior fonte de erros no resultado acima foi a determinação da razão entre átomos de ²⁴²Pu e de urânio. Isto ocorreu porque a solução continha outros isótopos, além daquele desejado. O uso de solução pura de ²⁴²Pu eliminaria a necessidade do uso do espectro de energias alfa e os erros envolvidos seriam somente devidos às determinações das densidades de traços.

As outras quantidades envolvidas: densidades de traços de fragmentos de fissão e de partículas alfa nos detectores puderam ser determinadas com erros pequenos. O maior erro envolvido, se considerarmos as somas dos traços de todos os detectores, foi encontrado para as densidades de fragmentos de fissão espontânea nas pastilhas não-dopadas, ~ 2%. Os erros encontrados para os outros casos são ainda menores.

O resultado acima é calculado em função da constante de decaimento por fissão espontânea do ^{242}Pu . Esta constante é bem conhecida dentro de uma incerteza de 1,1%. As outras constantes são todas conhecidas com erros menores que 0,1%.

Vale ainda destacar que esta medida está livre de alguns dos problemas mais comuns dentro do MTF: medida da dose nêutrons, diferenças significativas nas densidades de traços de fissão, o que poderia causar diferença na eficiência de observação e baixa estatística de traços de fragmentos de fissão espontânea do ^{238}U .

O resultado obtido concorda com valor nominal $8,5 \times 10^{-17} \text{ a}^{-1}$.

Discussão e Conclusões

No presente trabalho, obtivemos dois valores de λ_f , que resultaram em $(8,37 \pm 0,17) \times 10^{-17} \text{ a}^{-1}$ (medida com filmes finos) e $(8,7 \pm 0,4) \times 10^{-17} \text{ a}^{-1}$ (medida usando o ^{242}Pu). Estes valores são resultantes de medidas independentes e concordam entre si e com o valor nominal $8,5 \times 10^{-17} \text{ a}^{-1}$.

Acreditamos que ambas as medidas estão livres das fontes de erros sistemáticos identificadas em outras medidas realizadas pelo MTF. Na primeira delas usamos a mesma irradiação e a mesma reação nuclear para induzir fissões tanto no dosímetro (filme fino de urânio) como nos alvos de urânio. Para que essa medida possa ser considerada independente da dosimetria de neutrons, cujos termos, note-se, não aparecem na equação através da qual λ_f é extraída, é preciso que não parem dúvidas sobre as eficiências de contagem dos traços induzidos produzidos nesta irradiação. Ou seja, que a eficiência associada aos filmes finos não introduza um erro sistemático nesta medida. Neste trabalho, estes erros foram evitados porque utilizou-se uma medida de eficiência de contagem independente (Hadler *et al.*, 1996) e as medidas feitas nesta tese foram feitas exatamente dentro dos mesmos critérios de contagem usados na medição daquela eficiência. Com relação à eficiência de contagem relacionada com os traços induzidos nos alvos, ela é cancelada com a eficiência dos traços espontâneos produzidos nos mesmos alvos. Isto pode ser feito porque nos dois casos temos eventos muito similares, i. e., fissões de isótopos do urânio, basicamente, produzidos nos mesmos alvos, detectados por lâminas, do mesmo tipo de detector, acopladas ao alvo, que foram atacadas juntas e contadas sob o mesmo critério de contagem, onde um trabalho anterior (Guedes *et al.*, 1998) mostra como proceder para que eventuais diferenças de densidades superficiais não influenciem as contagens. Resta a eficiência de

contagem relacionada com o uso do CR-39 (calibração do conteúdo de urânio dos filmes finos). É muito improvável que haja erro sistemático aí, pois o mesmo e experiente observador (SG) fez a calibração, contra emulsão nuclear, e as contagens nesta tese, sob o mesmo critério. Além disso, nas nossas condições de ataque químico os traços de filmes finos em CR-39 são muito claros e dão margem a pouquíssimas dúvidas. Assim, a medida de λ_f feita com filme fino de urânio não carrega erros sistemáticos de nenhuma espécie, seja na dosimetria de neutrons como nas contagens, sendo, portanto confiável.

Quanto à segunda medida, não há erros sistemáticos associados às contagens. No caso dos traços de fissão espontânea, tanto os de ^{238}U como os de ^{242}Pu provêm praticamente do mesmo alvo (alvo infinito de U_3O_8 no primeiro caso e alvo infinito de U_3O_8 dopado com elementos transurânicos, feitos através do mesmo procedimento). Além disso, os dois tipos de traços foram coletados sob a mesma geometria e pelo mesmo detector (mica muscovita acoplada aos alvos) e foram analisados ao microscópio sob os mesmos critérios, após terem sido atacados juntos. No caso dos traços de partículas alfa, vale o mesmo arrazoado da frase anterior, apenas que neste caso os detectores são lâminas de CR-39. O fato de que as energias das partículas alfa variam (de 4,2 MeV (U-238) até 5,5 MeV (Am-241)) não introduz erro sistemático. Isto foi levado em conta uma vez que a eficiência associada a cada energia é proporcional ao alcance da partícula alfa correspondente. Finalmente, é muito pouco provável que a solução de plutônio-amerício tenha introduzido erro sistemático na medida de λ_f . A composição de seus emissores alfa foi determinada levando em conta apenas a atividade alfa total. A solução encontrada foi única em 10 milhões de composições testadas. A quantidade de ^{242}Pu daí decorrente (este isótopo é o único dentre os transurânicos da solução que produziu fissões espontâneas durante a exposição) gerou o λ_f obtido.

Como consequência, podemos afirmar que este trabalho contribuiu para o propósito de tornar independente o Método dos Traços de Fissão, pois atende às duas condições colocadas por Hurford

(1998): i) apresentamos uma medida sem a irradiação com nêutrons e ii) o acordo entre as medidas mostra que a dosimetria empregada na primeira medida produziu resultados coerentes. Ou seja, a técnica de dosimetria com filmes finos desenvolvida na tese de Pedro José Iunes (Iunes, 1999), que é um método absoluto de medida da taxa de reação $U(n,f)$ pode ser usado juntamente com o valor de λ_f obtido neste trabalho para a datação de amostras geológicas pelo MTF.

A medida de Roberts *et al.* (1968)

A medida de λ_f de Roberts *et al.*, 1968 é um dos trabalhos mais conceituados dentre os que utilizaram técnicas de traços de fissão para a determinação de λ_f . Como já dissemos anteriormente, um dos objetivos desta tese era medir λ_f seguindo os procedimentos usados por Roberts e colaboradores, porém evitando algumas fontes de erros que afetaram a medida deles. Abaixo, serão apresentados e discutidos os procedimentos adotados por estes pesquisadores. É importante frisar que as análises que seguem são observações feitas originalmente pelo Dr. Pedro José Iunes.

Para se obter traços de fissão espontânea, uma mica muscovita foi acoplada durante um tempo, T, a um cilindro de urânio empobrecido (*Depleted*) (concentração isotópica de ^{235}U menor que no urânio natural) ($C_{238}^D \cong 99,8\%$ e $C_{235}^D \cong 0,2\%$). Desta forma:

$$\frac{\rho_S}{T} = N_U \epsilon \lambda_f C_{238}^D \quad (\text{A.1})$$

Como $C_{238}^D \cong 99,8\% \sim 1$, eles definiram $S_\infty \cong N_U \epsilon C_{238}^D = N_U \epsilon$ e aproximaram a equação anterior para

$$\frac{\rho_S}{T} \approx S_\infty \lambda_f \quad (\text{A.2})$$

Assim, medindo-se ρ_s/T pode-se determinar λ_f se S_∞ é conhecido.

Para determinar S_∞ , eles acoplaram detectores a pastilhas de urânio natural ($C_{238}^N \cong 99,3\%$ e $C_{235}^N \cong 0,7\%$) e em filmes de urânio enriquecido (concentração isotópica de ^{235}U maior que no urânio natural) ($C_{238}^E \cong 5,6\%$ e $C_{235}^E \cong 93,2\%$) e irradiaram as montagens dentro de uma caixa de cádmio no refletor de grafite do reator do *Argonne National Laboratory* (ANL). O cádmio tem uma seção de choque muito alta para absorção de nêutrons térmicos, ≈ 5.000 b. Portanto, eles irradiaram as montagens com nêutrons epicádmios, $E > E_{CD} \cong 0,55$ eV.

As densidades de traços nas muscovitas que foram acopladas às pastilhas e aos filmes podem ser escritas respectivamente como:

$$\rho_I = N_U \epsilon \left[C_{235}^N \int_{E_{cd}}^{\infty} \phi_{235}(E) \sigma_{235}(E) dE + C_{238}^N \int_{E_{cd}}^{\infty} \phi_{238}(E) \sigma_{238}(E) dE \right] \quad (\text{A.3})$$

e

$$\rho_F = N_U^F \epsilon^F \left[C_{235}^E \int_{E_{cd}}^{\infty} \phi_{235}(E) \sigma_{235}(E) dE + C_{238}^E \int_{E_{cd}}^{\infty} \phi_{238}(E) \sigma_{238}(E) dE \right] \quad (\text{A.4})$$

onde

$N_U^F = \mu =$ número de átomos de urânio por unidade de volume. Este valor foi obtido com detecção eletrônica.

$\varepsilon^F = \eta$ = eficiência da mica para detecção de fragmentos de fissão provenientes do filme fino. A medida desta quantidade foi obtida através de uma fonte de ^{244}Cm com atividade conhecida.

E na nomenclatura deles, $\rho_I = T_\infty$ e $\rho^F = T(\mu)$. Das equações anteriores, obtém-se:

$$S_\infty = \frac{T_\infty}{T(\mu)} \mu \eta \left[\frac{C_{235}^E \int_{E_{cd}}^{\infty} \phi_{235}(E) \sigma_{235}(E) dE + C_{238}^E \int_{E_{cd}}^{\infty} \phi_{238}(E) \sigma_{238}(E) dE}{C_{235}^N \int_{E_{cd}}^{\infty} \phi_{235}(E) \sigma_{235}(E) dE + C_{238}^N \int_{E_{cd}}^{\infty} \phi_{238}(E) \sigma_{238}(E) dE} \right] \quad (\text{A.5})$$

No artigo, o cálculo de S_∞ foi feito como sendo

$$S_\infty = \frac{T_\infty}{T(\mu)} \mu \eta \frac{C_{235}^E}{C_{238}^N} \quad (\text{A.6})$$

Ou seja, eles desprezaram as fissões do ^{238}U por nêutrons epitérmicos. Porém, se as fissões por nêutrons rápidos (que não são necessariamente desprezíveis quando comparadas com as do ^{235}U por epitérmicos e rápidos no refletor de um reator) fossem levadas em conta, S_∞ seria menor que o obtido e, portanto, o valor de λ_f obtido por eles ($\lambda_f = (\rho_S / T.S_\infty) = 7,03 \times 10^{-17} \text{ a}^{-1}$) seria maior.

Para quantificar os erros que podem ser introduzidos utilizamos as seguintes aproximações (IAEA, 1970):

$$C_{235} \int_{E_{cd}}^{\infty} \phi_{235}(E) \sigma_{235}(E) dE = C_{235} \phi_{ep} I_{235} + C_{235} \phi_{rap} \sigma_{ef}^{235} \quad (\text{A.7})$$

$$C_{238} \int_{E_{cd}}^{\infty} \phi_{238}(E) \sigma_{238}(E) dE = C_{238} \phi_{ep} I_{238} + C_{238} \phi_{rap} \sigma_{ef}^{238} \quad (A.8)$$

Utilizaremos os seguintes valores das constantes (IAEA, 1970):

$$I_{235} = 275 \text{ b}$$

$$\sigma_{ef}^{235} = 1,4 \text{ b}$$

$$\sigma_{ef}^{238} = 0,6 \text{ b}$$

Em um refletor de gradiente, a razão entre o fluxo de nêutrons rápidos e epitérmicos não é necessariamente pequena. Por exemplo, em Tagami e Nishimura (1992) e em Suzuki e Tomura (1988) vemos que posições em refletores com razão entre fluxo rápido e epitérmico variando entre 3 e 20. Tomaremos, para efeito de cálculo, uma subestimativa desta razão:

$$\frac{\phi_{rap}}{\phi_{epi}} = 1 \quad (A.9)$$

Vemos, então que:

$$\frac{C_{235} \phi_{rap} \sigma_{ef}^{235}}{C_{235} \phi_{ep} I_{235}} = 0,005 \quad (A.10)$$

Ou seja, as fissões do ^{235}U por nêutrons rápidos são desprezíveis comparadas àquelas do ^{235}U para epitérmicos. Assim, o segundo termo da equação (A.7) pode ser negligenciado.

Para o urânio enriquecido, a razão entre (A.7) e (A.8) fica:

$$\frac{C_{238}^E \phi_{rap} \sigma_{ef}^{238}}{C_{235}^E \phi_{ep} I_{235}} = 0,0001 \quad (\text{A.11})$$

Portanto, as fissões por nêutrons rápidos do ^{238}U no urânio enriquecido podem, como Roberts *et al.* fizeram, ser desprezadas. Para o urânio natural, a razão entre (A.7) e (A.8) fica:

$$\frac{C_{238}^N \phi_{rap} \sigma_{ef}^{238}}{C_{235}^N \phi_{ep} I_{235}} = 0,31 \quad (\text{A.12})$$

Eles não poderiam ter desprezado as fissões por nêutrons rápidos no urânio natural.

Para evitar as dificuldades apresentadas nesta seção, os autores deveriam ter usado fontes com as mesmas composições isotópicas e/ou feito as irradiações fora de caixas de cádmio, de forma que as fissões por nêutrons térmicos fossem predominantes.

Influência da oxidação do urânio metálico na medida de λ_f

A transformação do urânio em óxido altera a densidade por onde viajam os fragmentos de fissão e pode alterar a eficiência para a contagem destes fragmentos. Se a densidade do meio muda com o tempo, a eficiência, em princípio, variará com o tempo, o que nos permite escrever $\epsilon = \epsilon(t)$.

Suponhamos uma mica muscovita acoplada a uma pastilha de urânio metálico por um tempo de exposição dt . A densidade superficial de traços de fissão que poderá ser observada num elemento de superfície na mica, depois de ataque químico conveniente, será

$$d\rho_s = N_U C_{238} \lambda_f \epsilon(t) dt \quad (\text{B.1})$$

Se a exposição começa no tempo t_0 depois que a pastilha foi confeccionada e termina no instante t_1 ($t_1 > t_0$):

$$\rho_s = N_U C_{238} \lambda_f \int_{t_0}^{t_1} \epsilon(t) dt \quad (\text{B.2})$$

Se, num instante t_2 ($t_2 > t_1$), a pastilha é acoplada a uma mica muscovita e irradiada com nêutrons num reator:

$$\rho_I = N_U C_{235} \sigma \phi \epsilon(t_2) \quad (\text{B.3})$$

Na equação (B.3) fizemos a hipótese de que a duração da irradiação é pequena comparada com t_2 . De fato, as irradiações não passam de uma hora enquanto t_2 é da ordem de anos. Dividindo a equação (B.3) pela (B.2) chegamos a uma expressão para λ_f :

$$\lambda_f = \frac{\rho_s C_{235}}{\rho_l C_{238}} \sigma \phi \frac{\epsilon(t_2)}{\int_{t_0}^{t_1} \epsilon(t) dt} \quad (\text{B.4})$$

Temos assumido que $\epsilon(t) = \text{constante}$, de tal forma que $\int_{t_0}^{t_1} \epsilon(t) dt = \epsilon(t_1 - t_0)$. Esta hipótese

deverá ser verdadeira se o processo de oxidação ocorre num intervalo de tempo muito ou muito longo comparado com a duração do experimento.

McGillivray e colaboradores (1994) propuseram um modelo de oxidação a uma taxa constante, r . Para efeito de estimativa, usaremos o modelo proposto por estes autores. Suporemos que o processo de oxidação é constante e contínuo, estendendo-se por toda a duração da experiência. De McGillivray *et al.* (1994):

$$r = \frac{k_1 P}{1 + k_2 P} + D \quad (\text{B.5})$$

onde

$$D = \exp\{11,093 - (8077/T(K))\}$$

$$k_1 = \exp \{7,831 - (6432/T(K))\} \quad (B.6)$$

$$k_2 = \exp \{-15,208 + 5327/T(K)\}$$

onde T(K) é a temperatura dada em kelvin e P é a pressão do vapor de água atmosférico em KPa.

A nossa tarefa agora é relacionar a variação de eficiência com a variação de densidade do meio.

A eficiência pode ser escrita como o produto $\epsilon = \epsilon_0 \cdot \epsilon_g$. ϵ_0 é uma eficiência de observação, que não deve variar com a mudança na densidade do meio, pois as condições de revelação e contagem de traços permanecem inalteradas. ϵ_g é a eficiência geométrica, que, para filmes infinitos é diretamente proporcional ao alcance, R, dos fragmentos de fissão: $\epsilon_g = (1/4)R$. Este resultado pode ser obtido fazendo $d = R$ na equação (B.10) do Apêndice C e incluindo o efeito do ângulo crítico em ϵ_0 . O que varia com a densidade é o alcance do fragmento de fissão.

Suponhamos um filme que já teve x(t)% da sua espessura transformada em óxido. A eficiência deste filme será:

$$\epsilon(t) = \left[x(t) \epsilon_g^o + (1-x(t)) \epsilon_g^u \right] \quad (B.7)$$

onde os sobrescritos “o” e “u” são para óxido e urânio metálico, respectivamente.

Podemos definir x(t) como a espessura do filme que já se transformou em óxido sobre o alcance médio dos fragmentos de fissão:

$$x(t) = \frac{r \cdot t}{R} \quad (B.8)$$

e

$$\bar{R} = x(t)R^o + (1-x(t))R^u \quad (\text{B.9})$$

onde R^o é o alcance dos fragmentos de fissão no óxido e R^u é o alcance dos fragmentos de fissão no urânio metálico. De (B.8) e (B.9):

$$x^2(t)(R^o - R^u) + R^u x(t) - r t = 0 \quad (\text{B.10})$$

Resolvendo a equação (B.10) e impondo que $x(t)$ seja uma quantidade positiva, chegamos a:

$$x(t) = \frac{R^u}{2(R^o - R^u)} \left[\sqrt{\frac{1 + 4(R^o - R^u) r t}{(R^u)^2}} - 1 \right] \quad (\text{B.11})$$

Vamos testar a equação (B.11) em dois limites:

- I) $r.t < R^u$. Esta é a situação de uma taxa de oxidação muito lenta. Neste caso, teríamos $x(t) \rightarrow 0$ e pela equação (7), $\epsilon(t) \rightarrow \epsilon_0 \cdot \epsilon_g^u$, ou seja, teríamos uma eficiência constante igual àquela para o urânio metálico.
- II) $r.t \geq R^o$. Esta é a situação onde toda a faixa que contribui com fragmentos de fissão já foi transformada em óxido. Aqui temos $x(t) = 1$ e $\epsilon(t) = \epsilon_0 \cdot \epsilon_g^o$, que é também uma constante. Portanto, se, no início da exposição, já se houver passado um tempo, t_0 , desde a confecção da pastilha tal que $r.t_0 \geq R^o$, teremos o caso de eficiência constante novamente.

Substituindo (B.11) em (B.7) lembrando que $\epsilon_g = (1/4)R$:

$$\epsilon(t) = \epsilon_0 \frac{R''}{8} \left[\sqrt{\frac{1 + 4(R'' - R'')r t}{(R'')^2}} - 1 \right] \quad (\text{B.12})$$

A integral da equação (B.4) fica:

$$I_S = \int_{t_0}^{t_1} \epsilon(t) dt = \int_{t_0}^{t_1} \epsilon_0 \frac{R''}{8} \left[\sqrt{\frac{1 + 4(R'' - R'')r t}{(R'')^2}} - 1 \right] dt \quad (\text{B.13})$$

Usando a tabela de integrais do Handbook of Chemistry and Physics, 40ª. edição, página 254:

$$I_S = \epsilon_0 \frac{R''}{8} \left[(t_1 - t_0) + \frac{(R'')^2}{6(R'' - R'').r} \left[\sqrt[3/2]{\frac{1 + 4(R'' - R'')r t_1}{(R'')^2}} - \sqrt[3/2]{\frac{1 + 4(R'' - R'')r t_0}{(R'')^2}} \right] \right] \quad (\text{B.14})$$

e $\epsilon(t_2)$ da equação (B.4) é, pela equação (B.12)

$$\epsilon(t_2) = \epsilon_0 \frac{R''}{8} \left[\sqrt{\frac{1 + 4(R'' - R'')r t_2}{(R'')^2}} - 1 \right] \quad (\text{B.15})$$

Se não houvesse variação alguma da eficiência deveríamos ter:

$$\frac{(t_1 - t_0) \epsilon(t_2)}{I_s} = 1 \quad (\text{B.16})$$

Vamos usar valores numéricos para calcular a razão (B.16) e ver o quanto ela se afasta da unidade. Para efeito de estimativa, usaremos, sempre que possível, valores que produzam uma superestimativa no resultado final.

a– taxa de oxidação, r . Usaremos as equações (B.5) e (B.6) com os seguintes valores:

$P = 101,3$ KPa. Este valor de pressão é uma superestimativa, pois corresponde a uma taxa de humidade relativa do ar de 100%.

$T = 300$ K

Encontramos então:

$$r = 2,3 \times 10^{-7} \text{ (mg/cm}^2\text{)/minuto}$$

b– alcances. Usaremos os alcances fornecidos por Segrè e Wiegand (1946):

$$R^o = 10,0 \text{ mg/cm}^2$$

$$R^u = 12,6 \text{ mg/cm}^2$$

c– As pastilhas foram confeccionadas em 1990. Como não sabemos a data exata, usaremos como referência 01/01/1990.

A Tabela B.1 mostra os tempos usados e os resultados obtidos para a razão da equação (B.16).

Tabela B.1. Influência da oxidação do urânio metálico na medida de λ_f

<i>pastilha</i>	<i>t₀ (10⁶ min)</i>	<i>t₁ (10⁶ min)</i>	<i>t₂ (10⁶ min)</i>	<i>razão da equação (16)</i>
J (1 ^a exposição)	2,3668	2,6298	2,6736	0,9993
I	2,3668	4,0762	4,1639	0,9963
J (2 ^a exposição)	2,7174	4,8213	4,8651	0,9957

Os resultados obtidos indicam que a oxidação não interfere significativamente, pois os erros introduzidos por este fenômeno são menores que 0,5%, enquanto enquanto os erros associados a cada valor individual de λ_f são maiores que 4%. Além disso, como já dissemos, estes resultados representam uma superestimativa do efeito da oxidação no nosso resultado final.

Geometria das exposições

Nesta seção encontraremos a dependência da atividade medida pelo detector e a espessura do filme de urânio e aplicaremos esta relação a um exemplo. Embora as contas que apresentaremos sejam para partículas alfa em CR-39, elas podem ser aplicadas a outros tipos de partículas incidindo sobre outros tipos de detectores de traços. Por exemplo, fragmentos de fissão incidindo sobre mica muscovita.

Geometria

Suponhamos uma lâmina de CR-39 acoplada à superfície de um filme de urânio de espessura d . As partículas alfa percorrerão, no máximo, uma distância igual ao seu alcance, R , no material. Se esta distância percorrida não for suficiente para a partícula atingir a superfície do filme, ela não será registrada pelo detector. Por outro lado, para uma determinada energia de incidência, só serão registrados os traços que incidirem sobre o detector em um ângulo (a contar da normal) menor que um ângulo crítico a partir do qual os traços não serão mais visíveis depois de um ataque químico específico. A probabilidade, por unidade de área do detector, de uma partícula emitida com um ângulo θ atingir a superfície plana do detector depois de percorrer uma distância r no filme é:

$$P(\vartheta, r) = \frac{\cos(\vartheta)}{4\pi r^2} \quad (\text{C.1})$$

Podemos incorporar o efeito do ângulo crítico a esta probabilidade:

$$P(\vartheta, r) = \frac{\cos(\vartheta)}{4\pi r^2} \Theta(\vartheta - \vartheta_c(r)) \quad (\text{C.2})$$

Na equação (C.2) $\vartheta_c(r)$ é o ângulo crítico que, em princípio, deve depender da energia de incidência e portanto da distância percorrida pela partícula no interior do filme. $\Theta(\vartheta - \vartheta_c(r))$ é uma função “degrau” com:

$$\Theta(\vartheta - \vartheta_c(r)) = \begin{cases} 1, & \text{se } \vartheta < \vartheta_c(r) \\ 0, & \text{se } \vartheta > \vartheta_c(r) \end{cases} \quad (\text{C.3})$$

Definindo a eficiência geométrica, χ , como a razão entre o número de partículas alfa que são reveladas no detector depois de um ataque químico conveniente e o número de emissões ocorridas, podemos calculá-la como:

$$\chi = \iiint dr d\vartheta d\phi r^2 \sin(\vartheta) P(\vartheta, r) \quad (\text{C.4})$$

A geometria da montagem pode ser visualizada na Figura C.1.

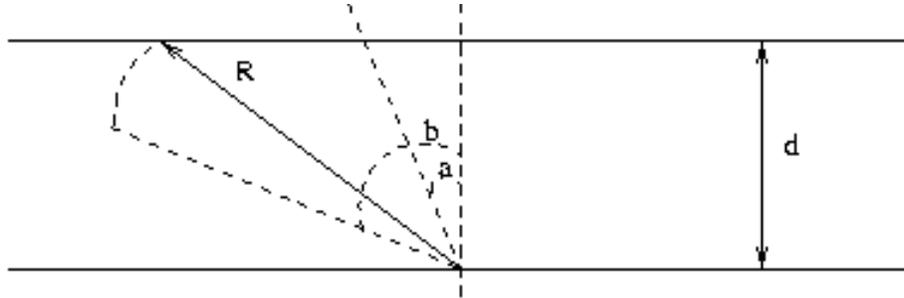


Figura C.1. Geometria da montagem: a figura mostra as duas situações encontradas na resolução da integral (10): a. $\theta_c < \arccos(d/R)$ e b. $\theta_c > \arccos(d/R)$.

Há dois casos a serem considerados na resolução da integral (C.4): a. $\theta_c(r) < \arccos(d/R)$. e b. $\theta_c(r) > \arccos(d/R)$. O primeiro caso se aplica aos filmes mais finos e o segundo aos filmes mais espessos.

Todos os cálculos que faremos aqui são válidos para $d < R$.

a. $\theta_c(r) < \arccos(d/R)$

Neste caso temos:

$$0 < r < d/\cos(\theta)$$

$$0 < \varphi < 2\pi$$

$$0 < \theta < \theta_c(r)$$

$$\chi = \int_0^{2\pi} d\phi \int_0^{\vartheta_c(r)} d\vartheta \sin(\vartheta) \int_0^{d/\cos(\vartheta)} dr \frac{\cos(\vartheta)}{4\pi} \quad (C.5)$$

Nós não conhecemos a forma explícita de $\theta_c(r)$. Apenas sabemos que para o CR-39, o ângulo crítico diminui com o aumento da energia de incidência da partícula. Vamos assumir como primeira aproximação que o ângulo crítico seja aproximadamente constante. Resolvendo a integral (C.5) obtemos:

$$\chi = \frac{d}{2} \left(1 - \cos(\vartheta_c) \right) \quad (\text{C.6})$$

Podemos escrever a densidade superficial de traços que podem ser contados no detector depois de ataque químico conveniente, ρ_{menor} :

$$\rho_{menor} = A \chi \eta \quad (\text{C.7})$$

onde A é a atividade alfa por unidade de volume no filme e η é uma eficiência de observação que depende dos critérios de contagem do observador. A equação (C.7) pode ser reescrita como:

$$\rho_{menor} = N t \sum_i C_i \lambda_{\alpha i} \frac{d}{2} \left(1 - \cos(\vartheta_c) \right) \eta \quad (\text{C.8})$$

onde $i = 234, 235, 238$ são os isótopos do urânio presentes no urânio natural, C_i é a concentração isotópica e $\lambda_{\alpha i}$ é a constante de decaimento alfa do ${}^i\text{U}$. N é o número de átomos de urânio por unidade de volume do filme.

b. $\theta_c(r) > \arccos(d/R)$

Aqui temos que dividir a integral em duas regiões:

$$\begin{array}{ll}
 0 < r < d/\cos(\theta) & 0 < r < R \\
 1) \quad 0 < \varphi < 2\pi & 2) \quad 0 < \varphi < 2\pi \\
 0 < \theta < \arccos(d/R) & \arccos(d/R) < \theta < \theta_c(r)
 \end{array}$$

Calculando a eficiência geométrica:

$$\chi = \int_0^{2\pi} \frac{d\phi}{4\pi} \left[\int_0^{\arccos(d/R)} d\vartheta \sin(\vartheta) \cos(\vartheta) \int_0^{d/\cos(\vartheta)} dr + \int_0^R dr \int_{\arccos(d/R)}^{\vartheta_c(r)} d\vartheta \sin(\vartheta) \cos(\vartheta) \right] \quad (C.9)$$

Resolvendo:

$$\chi = \frac{d}{2} \left(1 - \frac{d}{2R} \right) - \frac{1}{4} \int_0^R dr \cos^2(\vartheta_c(r)) \quad (C.10)$$

Novamente teríamos que conhecer a forma explícita do ângulo crítico para podermos resolver a integral (C.10). Aqui, porém, vemos que o termo envolvendo $\theta_c(r)$ é uma constante com relação a espessura d . Somente para uniformizar o tratamento, suporemos $\theta_c(r)$ constante. Daí:

$$\chi = \frac{d}{2} \left(1 - \frac{d}{2R} \right) - \frac{R}{4} \cos^2(\vartheta_c(r)) \quad (C.11)$$

E usando o mesmo procedimento que leva à equação (C.14) podemos determinar também neste caso a densidade superficial de traços de partículas alfa que podem ser observados no detector depois de ataque químico conveniente, ρ_{maior} :

$$\rho_{\text{maior}} = N t \sum_i C_i \lambda_{\alpha i} \left[\frac{d}{2} \left(1 - \frac{d}{R} \right) - \frac{R}{4} \cos^2(\vartheta_c) \right] \eta \quad (\text{C.12})$$

A equação (C.12) vale para $d \leq R$. No caso limite de $d=R$ temos um filme infinito e o aumento de sua espessura ($d>R$) não produz qualquer efeito sobre a densidade de traços no CR-39.

Experimentalmente, a variável sobre a qual temos controle não é a espessura d mas sim sobre a quantidade de urânio por unidade de área, μ , que se relaciona com d por:

$$N d = \frac{N_a}{238,07 \times 10^3} \mu \quad (\text{C.13})$$

onde N_a é o número de Avogrado, $238,07 \times 10^3$ mg é a massa de um mol de urânio natural e μ é dado em mg/cm^2 . Podemos escrever também uma relação entre o alcance das partículas alfa provenientes do urânio natural, R , e o seu equivalente, R_U , dado em mg/cm^2 :

$$N R = \frac{N_a}{238,07 \times 10^3} R_U \quad (\text{C.14})$$

Usando (C.13) e (C.14) podemos reescrever (C.8) e (C.12) na nova variável:

$$\rho_{menor} = \frac{N_a}{238,07 \times 10^3} t \sum_i C_i \lambda_{\alpha i} \frac{1}{2} (1 - \cos(\vartheta_c)) \eta \mu \quad (C.15)$$

e

$$\rho_{maior} = \frac{N_a}{238,07 \times 10^3} t \sum_i C_i \lambda_{\alpha i} \left[\frac{1}{2} \left(1 - \frac{\mu}{R_U} \right) \mu - \frac{R_U}{4} \cos^2(\vartheta_c) \right] \eta \quad (C.16)$$

As equações (C.15) e (C.16) nos dizem o que deveríamos esperar numa curva de densidade de traços no CR-39 (ou outro detector de traços) em função da quantidade de urânio do filme. Para filmes muito finos o crescimento é linear. Como há pouca perda energia o ângulo crítico deve permanecer constante, assim como a forma e o tamanho dos traços, mantendo inalterada a eficiência do observador.

À medida que a espessura do filme é aumentada, a distribuição angular das partículas que incidem sobre o CR privilegia os ângulos mais baixos (em relação à normal). Os traços de partículas que incidem com ângulos menores são mais fáceis de se observar, pois a sua forma é mais regular, o que poderia causar um aumento na eficiência de observação. Neste caso, deveríamos escrever $\eta = \eta(\mu)$ e o ângulo crítico que aparece nas equações (C.15) e (C.16) seria afetado por η . Ou seja, não poderíamos mais tomar θ_c como um ângulo limite, a partir do qual os traços não são mais revelados, mas sim como o ângulo limite a partir do qual os traços não são mais contados. θ_c seria um ângulo crítico de observação. Por outro lado, com aumento da espessura, o espectro de energias se abre causando aumento do ângulo crítico.

Quando μ tende a R_U a densidade de traços tende para um valor constante, que caracteriza a

região de filme infinito. Nesta região começam a aparecer traços de partículas com energias perto de zero. Estes traços são menores e mais claros, dificultando a sua observação. É possível, portanto, que haja uma diminuição na eficiência de observação. Se conseguirmos fazer uma curva de densidade de traços no CR em função da quantidade de urânio no filme podemos encontrar experimentalmente uma região segura para a confecção de filmes infinitos.

Exemplo de aplicação

Vamos usar a curva da Figura 4.2 para entender melhor as relações representadas nas equações (4.15) e (4.16). A partir desta podemos conseguir informações sobre o detector, o material do filme e sobre as condições de observação.

Na equação (4.16) podemos deixar livres 3 parâmetros: R_U , η , e θ_c , e ajustando a equação pelos pontos da curva da Figura 4.2, determinar o valor destes 3 parâmetros. Infelizmente, temos apenas 2 pontos nesta região da curva. Precisariamos de pelo menos mais dois pontos para fazer o ajuste com segurança. Apenas como exemplo, faremos algumas hipóteses adicionais para fazer este ajuste e mostrar que é possível obter bons resultados por este método. Primeiro, vamos colocar $\rho_\alpha = 0$ quando $\mu = 0$. Consideraremos também que o primeiro ponto que aparece na região do platô, $((\rho_\alpha/\Delta t_\alpha), \mu) = (1,14 \times 10^5 \text{cm}^{-2}\text{h}^{-1}, 10,34 \text{mg/cm}^2)$ ainda faz parte da curva. Na prática, isto corresponde a dar um valor inicial para o alcance, $R_U = 10,34 \text{mg/cm}^2$. Se colocamos a equação (C.16) na forma:

$$\frac{\rho_\alpha}{\Delta t_\alpha} = A + B1 \mu + B2 \mu^2 \quad (\text{C.17})$$

teremos

$$B1 = \frac{N_a \left(\sum_i C_i \lambda_{\alpha i} \right)}{2 \times 238,07 \times 10^3} \eta \quad (\text{C.18})$$

$$B2 = - \frac{N_a \left(\sum_i C_i \lambda_{\alpha i} \right)}{4 \times 238,07 \times 10^3} \frac{\eta}{R_U} \quad (\text{C.19})$$

$$A = - \frac{N_a \left(\sum_i C_i \lambda_{\alpha i} \right)}{4 \times 238,07 \times 10^3} \eta R_U \cos^2(\vartheta_c) \quad (\text{C.20})$$

Assim, fazendo o ajuste de (C.17) encontramos novos valores para o alcance e o ângulo crítico e um valor inicial para a eficiência de observação. Substituímos, então, os valores iniciais de R_U e θ_c por esses novos e repetimos o ajuste da equação (C.17). Recursivamente, faremos isto até que não haja mais mudanças significativas nestes parâmetros. A Tabela C.1 mostra a evolução dos parâmetros durante este processo.

Tabela C.1. Evolução dos valores de eficiência de observação

<i>passo</i>	R_U (mg/cm ²)	η
1°.	10,34	
2°.	8,76	0,58
3°.	8,35	0,60
4°.	8,28	0,60
5°.	8,28	0,60

Houve uma estabilização dos valores de alcance e eficiência. Vamos adotar esses valores para os cálculos que faremos a frente. Vamos tomar a dispersão em volta da curva ajustada para o erro em R_U e em η . Esse erro é de 8% para a eficiência e 15% para o alcance da partícula alfa. Assim:

$$R_U = (8,3 \pm 1,2) \text{ mg/cm}^2$$

$$\eta = (0,60 \pm 0,05)$$

Tentaremos agora obter alguma informação sobre o ângulo crítico a partir da curva que estamos usando neste exemplo. Usando a integral (C.4) podemos calcular a diferença de atividade correspondente à diferença de espessura dos filmes de urânio e conseguir valores para os ângulos críticos em cada faixa de espessura (ver Figura C.2).

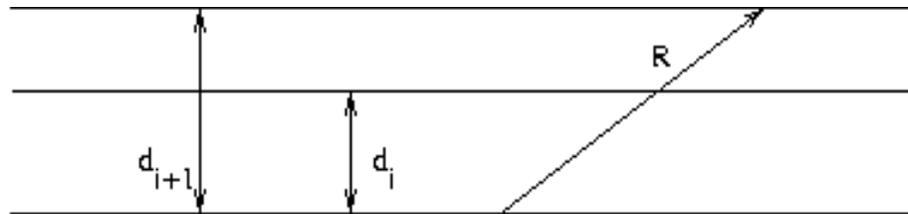


Figura C.2. Esquema para o cálculo do ângulo crítico. Aqui d_{i+1} é a espessura do filme

Como já fizemos antes vamos dividir a integral (C.4) em duas regiões:

$$0 < \varphi < 2\pi$$

$$0 < \theta < \arccos(d_{i+1}/R)$$

$$(d_i/\cos\theta) < \rho < (d_{i+1}/\cos\theta)$$

$$0 < \varphi < 2\pi$$

$$\arccos(d_{i+1}/R) < \theta < \theta_c^{i+1}$$

$$(d_i/\cos\theta) < \rho < R$$

A eficiência geométrica fica:

$$\chi = \int_0^{2\pi} \frac{d\phi}{4\pi} \left[\int_0^{\arccos(d_{i+1}/R)} d\vartheta \operatorname{sen}(\vartheta) \cos(\vartheta) \int_{d_i/\cos(\vartheta)}^{d_{i+1}/\cos(\vartheta)} dr + \int_{d_{i+1}/\cos(\vartheta)}^R dr \int_{\arccos(d_{i+1}/R)}^{\vartheta_c^{i+1}} d\vartheta \operatorname{sen}(\vartheta) \cos(\vartheta) \right] \quad (\text{C.21})$$

Resultando em:

$$\chi = \frac{d_{i+1}}{2} \left(1 - \frac{d_{i+1}}{2R} \right) - \frac{d_i}{2} \left(1 - \cos(\vartheta_c^{i+1}) \right) - \frac{R}{4} \cos^2(\vartheta_c^{i+1}) \quad (\text{C.22})$$

E a diferença na atividade, em unidades de massa por área, é

$$\Delta \left(\frac{\rho_\alpha}{\Delta t_\alpha} \right) = \frac{N_a}{238,07 \times 10^3} \sum_i C_i \lambda_{\alpha i} \left[\frac{\mu_{i+1}}{2} \left(1 - \frac{\mu_{i+1}}{R_U} \right) \frac{\mu_i}{2} \left(1 - \cos(\vartheta_c^{i+1}) \right) - \frac{R_U}{4} \cos^2(\vartheta_c^{i+1}) \right] \eta \quad (\text{C.23})$$

A partir desta última equação podemos calcular o ângulo crítico em cada faixa de espessura dos filmes. Apenas como ilustração vamos calcular θ_c^i das faixas da curva da Figura 4.2: 0 a 4,14mg/cm² e 4,14 a 6,22 mg/cm². Os resultados estão na Tabela C.2.

Tabela C.2. Cálculos para ângulo crítico das partículas alfa incidindo sobre o CR-39

μ_i (mg/cm^2)	<i>distância média da faixa ao detetor</i> (mg/cm^2)	$(\mu_i - \mu_{i-1})$ (mg/cm^2)	$\Delta(\rho_\alpha / \Delta t_\alpha)$ ($cm^{-2} h^{-1}$)	θ_c^i ($^\circ$)
0				
4,14	2,07	4,14	$8,73 \pm 0,02$	$71,5 \pm 3,0$
6,22	5,18	2,08	$1,59 \pm 0,04$	$73,6 \pm 3,0$

Como temos poucos pontos na região desta curva que obedece à equação (C.17) não podemos chegar a conclusões sobre a variação do ângulo crítico.

Constantes usadas nos cálculos que levam aos valores de λ_f

Constantes de decaimento e outras constantes dos isótopos radioativos

Na Tabela D.1 estão as constantes relacionadas aos isótopos radioativos usados neste trabalho.

Estes dados retirados de *Table of Isotopes* (Firestone et al., 1996).

Tabela D.1. Constantes de decaimento e outras constantes dos isótopos radioativos usados neste trabalho

<i>isótopo</i>	<i>energia alfa (MeV)</i>	<i>concentrações isotópicas (%)</i>	<i>meia-vida (anos)</i>	<i>branching ratio para fissão espontânea</i>	$\lambda_\alpha (a^{-1})$	$\lambda_f (a^{-1})$
²³⁴ U	4,75	0,0054	2,455x10 ⁵ (0,24%)	1,64x10 ⁻¹¹ (13%)	2,283x10 ⁻⁶ (0,24%)	4,63x10 ⁻¹⁷ (13%)
²³⁵ U	4,45	0,720	7,038x10 ⁸ (0,071%)	7x10 ⁻¹¹ (30%)	9,84864x10 ⁻¹⁰ (0,071%)	7x10 ⁻²⁰ (30%)
²³⁸ U	4,2	99,2745	4,468x10 ⁹ (0,067%)	-----	1,55136x10 ⁻¹⁰ (0,067%)	-----
²³⁸ Pu	5,5	-----	87,7 (0,34%)	1,85x10 ⁻⁹ (2,2%)	7,904x10 ⁻³ (0,34%)	1,462x10 ⁻¹¹ (2,2%)
²³⁹ Pu	5,1	-----	2,411x10 ⁴ (0,12%)	3x10 ⁻¹² (27%)	2,875x10 ⁻⁵ (0,12%)	8,62x10 ⁻¹⁷ (27%)
²⁴⁰ Pu	5,2	-----	6,563x10 ³ (0,11%)	5,75x10 ⁻⁸ (0,87%)	1,056x10 ⁻⁴ (0,107%)	6,073x10 ⁻¹² (0,88%)
²⁴¹ Pu		-----	14,35	2,4x10 ⁻¹⁶	4,83x10 ⁻²	1,159x10 ⁻¹⁷
²⁴² Pu	4,9	-----	3,733x10 ⁵ (0,32%)	5,54x10 ⁻⁶ (1,1%)	1,857x10 ⁻⁶ (0,32%)	1,0287x10 ⁻¹¹ (1,1%)
²⁴¹ Am	5,5	-----	4,322x10 ²	4,3x10 ⁻¹²	1,604x10 ⁻³	6,897x10 ⁻¹⁵

Valores de r_T

Os valores das razões entre os alcances das partículas alfa de energia E_i e o alcance médio das partículas alfa provenientes do urânio natural no U_3O_8 , $r_T = (R_T/R_U)$ estão dados na Tabela D.2. Estes valores foram calculados a partir de *Handbook of range distributions of energetic ions in all elements* (Littmark e Ziegler, 1980).

Tabela D.2. Valores de r_T para os cálculos envolvendo as equações (4.9), (4.10) e (4.12).

<i>isótopo</i>	<i>energia</i> <i>(MeV)</i>	<i>r_T</i>
²⁴² Pu	4,9	1,123
²³⁹ Pu	5,2	1,206
²⁴¹ Am	5,5	1,320

- Allen, G.C. e Holmes, N.R. (1995), A mechanism for the UO_2 to $\alpha\text{-U}_3\text{O}_8$ phase transformation, *J. Nucl. Mat.*, **233**: 231–237.
- Baptista, Z.N.R., Mantovani, M.S.M. e Ribeiro, F.B. (1981), Contribuição para a Determinação da Constante de Fissão Espontânea do Urânio, *An. Acad. Brasil. Ciênc.*, **53**: 437–441.
- Belle, J. (1961), Uranium dioxide: properties and nuclear applications, Naval Reports, Division of Reactor Development, USAEC.
- Belenky, S.N., Shorokhvatov, M.D. e Etenko, A.V. (1983), Measurement of the Characteristics of Spontaneous Fission of ^{238}U e ^{236}U , *At. Energ.*, **55** : 528–530.
- Bigazzi, G. (1981), The Problem of the Decay Constant λ_f of ^{238}U , *Nuclear Tracks* , **5** : 35–44.
- Bigazzi, G., Hadler, J.C., Iunes, P.J., Oddone, M., Paulo, S.R. e Poupeau, G. (1990), On neutron dosimetry: comparison between different dosimeters: preliminary results, *Nuclear Tracks and Radiation Measurements*, **17**: 217–221.
- Bigazzi, G., Hadler, J.C., Iunes, P.J. e Osório, A.M. (1991), Muscovite SSNTD: Detection Efficiency for Fission Fragments, *Nuclear Tracks and Radiation Measurements*, **19** : 451–452.
- de Carvalho, H.G., Martins, J.C., de Souza, I.O. e Tavares, O.A.P. (1975), Spontaneous Emission of Heavy Ions from Uranium, Centro Brasileiro de Pesquisas Físicas, Rio de Janeiro, Brasil, apresentado a Academia Brasileira de Ciências.
- de Carvalho, H.G., Martins, J.C., Medeiros, E.L. e Tavares, O.A.P. (1982) , Decay Constant for the Spontaneous–Fission Process in ^{238}U , *Nucl. Instrum. Meth.*, **197** :417–426.
- Castro Rizzo, D.M. (1978), *An. Acad. Brasil. Ciênc.*, **50**: 303.
- Crowley, K.D. (1986), Neutron Dosimetry in Fission Track Analysis, *Nucl. Tracks Radiat. Meas.* , **11** : 237–243.
- Emma, V. e Lo Nigro, S. (1975), Decay Constant for Spontaneous Fission of ^{238}U and ^{232}Th , *Nucl. Instrum. Methods*, **128**: 355–357.
- Firestone, R.B., Shirley, V.S., Chu, S.Y.F., Baglin, C.M. E Zieplein (1996), J., Table of Isotopes, John

Wiley and Sons, New York.

Fleisher, R.L. e Price, P.B. (1964), Decay Constant for Spontaneous Fission of ^{238}U , *Phys. Rev.*, **133** : 2975–2976(B63–B64).

Fleischer, R.L. e Hart, H.R. (1972), Fission track dating: techniques and problems. In: calibration of humanoid evolution (eds W.W. Bishop, J.A. Miller e S. Cole), Scottish Academic Press, Edinburgh, 135–170.

Flerov, G.N. e Petrzhak, K.A. (1940), Spontaneous Fission of Uranium. , *J. Phys*, **3**: 275–280.

Gallinker, D., Hugentobler, E. e Hahn, B. (1970), Spontane Kernspaltung von ^{238}U and ^{241}Am , *Helv. Phys. Acta*, **43**: 593–606.

Gentner, W. e Storzer (1972), Calibration of the Constant of ^{238}U Spontaneous Fission, *Trans. Amer. Nucl. Soc.*, **15**:125.

Green, P.F. e Hurford, A.J. (1984), Thermal neutron dosimetry for fission track dating, *Nucl. Tracks*, **9**: 231– 241.

Gerling, E.K., Shukoljukov, A. e Makarotshkin, A.(1959), *Radiokhimiya*, **1**: 223–226.

Guedes, S., Hadler, J.C., Iunes, P.J., Paulo, S.R. and Tello, C.A.(1998), On the Reproducibility of SSNTD Track Counting Efficiency, *Nucl. Instrum. Meth. A*, **418**: 429–433.

Guedes, S., Hackspacher, P., Hadler, J.C., Iunes, P.J., Paulo, S.R., Ribeiro, L.F.B. e Tello S., C.A. (2000), Recognition of Cretaceous, Paleocene e Plio–Pleistocene Activities, through AFTA, in Precambrian Areas of de Southeast Brazil: Association with the South Atlantic Opening. In: 9th International Conference on Fission Track Dating and Thermochronology, *Geological Society of Australia Abstracts Series*, **58**: 139–141.

von Gunten, H.R. (1969), Distribution of Mass in Spontaneous and Neutron–Induced Fission, *Actinides Rev.*, **1**: 275–298.

Hadler, J.C., Lattes, C.M.G.,Marques,A.,Marques,M.D.D., Serra, D.A.B., e Bigazzi,G. (1981), Measurement of the Spontaneous–Fission Desintegration Constant of ^{238}U , *Nuclear Tracks*, **5** : 45–52.

Hadler, J.C. (1982) , Medida da Constante de Desintegração do ^{238}U por Fissão Espontânea, Tese de Doutorado , UNICAMP , Campinas–SP , Brasil.

Hadler, J.C., Iunes , P.J., Mello, T.C.W.P., Navia, L.M.S. e Paulo, S.R. (1996), On the Nuclear Emulsion Detection Efficiency For Alpha Particles and Fission Fragments, *Radiation Measurements*, **26** : 169–171.

Hoekstra, H. R. e Siegel, S. (1961), The Uranium–Oxygen System: $\text{U}_3\text{O}_8 - \text{UO}_3$, *Inorg. Nucl. Chem.*, **18**: 154–165

Hoff Lu e Hsuan–Ling Tsao (1952), Spontaneous Fission of Uranium, *Acta Sci Sinica*, **1**:77–84.

- Holden, N.E.(1989) , Total and Spontaneous Fission Half–Lives for Uranium, Plutonium, Americium and Curium Nuclides, *Pure Appl. Chem.*, **61**:1483–1504.
- Hurford, A.J. e Gleadow, A.J.W. (1977), Calibration of Fission Track Dating Parameters, *Nucl. Track Detection*, **1** : 41–48.
- Hurford, A.J. e Green, P.F. (1981), A reappraisal of neutron dosimetry and uranium–238 λ_f values in fission–track dating, *Nucl. Tracks*, **5**: 53–61.
- Hurford, A.J. e Green, P.F. (1982), A users’ guide to fission track dating calibration, *Earth Planet. Sci. Lett.*, **59**, 343–354.
- Hurford, A.J. e Green, P.F. (1983), The zeta age calibration of fission track dating, *Isot. Geosci.*, **1**: 285–317.
- Hurford, A.J. (1990), Standardization of fission track dating calibration: recomedation by the Fission Track Work Group of the I.U.G.S. Subcommittee on Geochronology, *Chem. Geol. (isot. Geosci. Sect.)*, **80**:171–178.
- Hurford, A. J. (1998), Zeta: The ultimate solution to fission–track analysis calibration or just an interim measure. In: *Advances in Fission–Track Geochronology*. Editores: Peter Van den haute e Franz de Corte, Kluwer Academic Publishers: 19–32.
- I.A.E.A. (International Atomic Energy Agency) (1970), Neutron Fluence Measurement, *Technical Reports Series*, **107**.
- Ishimori,T., Ueno K., Kimura, K., Akatsu,E., Kobayashi,Y., Akatsu,J., Ono,R. e Hoshi, M. (1967), The Spontaneous Fission of Uranium–238, *Radiochim. Acta*, **7**: 95–103.
- Iunes , P.J. (1990) , Datação com o Método dos Traços de Fissão : Estudo da Dosimetria de Neutrons com Filmes Finos de Urânio Natural , Tese de Mestrado, UNICAMP, Campinas–SP.
- Iunes, P.J. (1999), Aplicação da dosimetria de nêutrons através de filmes finos de urânio e tório na datação pelo Método dos Traços de Fissão, Tese de Doutorado, UNICAMP, Campinas–SP.
- Ivanov, K.N. e Petrzhak,K.A. (1975), Probability of Fission by 1,33 Mev g–rays and Spontaneous Fission Half–Life for ^{238}U , *Sov. Atom. Energy*, **36** : 514 (tradução para o Inglês de *Atomnaya Energiya*,**36** (1974) 403).
- Ivanov, K.N., Ter–Acopian, G.M., Fefilov, B.V. e Voronin, A.S. (1985), Study of ^{238}U Spontaneous Fission Using a Double Ionization Chamber, *Nucl. Instrum. Meth.*, **A234** :152–157.
- Jantzen, C.M.(1986), Systems Approach to Nuclear Waste Glass Development, *J. Non–Crystalline Solids*, **84**, 215–225.
- Jonckheere, R., Van den haute P., De Corte, F. e Wagner, G. (2000), Fission Track Age Calibration –

The Next Generation, In: 9th International Conference on Fission Track Dating and Thermochronology, *Geological Society of Australia Abstracts Series*, **58**: 187–188.

Kase, M., Kikuchi, J. e Doke, T. (1978), Half-Life of ²³⁸U Spontaneous Fission and its Fragment Kinetics, *Nucl. Instrum. Meth.*, **154**, 335–342.

Khan, H.A. e Durrani, S.A. (1973), Measurements of Spontaneous-Fission Decay Constant of ²³⁸U with a Mica Solid State Track Detector, *Radiation Effects*, **17**: 133–135.

Khilla, M.A. e Rofail, N. H. (1986), Optical Absorption Edge of Uranium Trioxide Phases: Part I, *Radiochimica Acta*, **40**: 155–158.

Kleeman, J.D. e Lovering, J.F. (1971), A Determination of the Decay Constant for Spontaneous Fission of Natural Uranium Using Fission Track Accumulation, *Geochim. Cosmochim. Acta*, **35**: 637–640.

Kuroda, P.K. e Edwards, R.R. (1954), Radiochemical Measurements of the Natural Fission Rate of Uranium, *J. Chem. Phys.*, **22** : 1940.

Kuroda, P.K. e Edwards, R.R. (1957), Radiochemical Measurement of the Natural Fission Rate of Uranium and the Natural Occurrence of ¹⁴⁰Ba, *J. Inorg. Nucl. Chem.*, **3** : 345–348.

Kuroda, P.K., Edwards, R.R. e Ashizawa (1956), F.T., Radiochemical Measurements of the Natural Fission Rate of Uranium and the Natural Occurrence of the Short-Lived Iodine Isotopes, *J. Chem. Phys.*, **25** : 603.

Kuz'minov, B.D., Kutsaeva, L.S., Nesterov, V.G., ProKhorova L.I. e Smirenkin, G.P. (1959), *Zh. Eksp. Teor. Fiz.* (Russia), **37**:406 (em russo).

Lainetti, P. e Gracher Riella, H. (1991), Preparation of ceramic grade UO₂ powder by atomization from uranyl nitrate solutions, *J. Nucl. Mat.*, **178**: 135–142.

Laslett, G.M., Green, P.F., Duddy, I.R. and Gleadow A.J.W., 1987. Thermal annealing of fission tracks in apatite 2. The quantitative analysis, *Chemical Geology (Isot. Geosci. Sect.)*, **65**: 1–13.

Leme, M.P.T., Renner, C. e Cattani, M. (1971), Determination of the Decay Constant for Spontaneous Fission of ²³⁸U, *Nucl. Instrum. Methods*, **91**: 577–579.

Libby, W. F. (1939), *Phys. Rev.*, **55**: 1269.

Littmark, U. e Ziegler, J.F. (1980), Handbook of range distributions of energetic ions in all elements (volume 6 de Stopping and ranges of ions in matter), Pergamon Press.

Liu, S.S. and Zhang, F. (1991), Measurement of Spontaneous Fission Decay Constant (λ_f) of ²³⁸U, *Science in China, series B*, **34**, 1120–1130.

McEachern, R.J., e Taylor, P. (1998), A review of the oxidation of uranium dioxide at temperatures below 400°C, *J. Nucl. Mat.*, **254**: 87–121.

- McGillivray, G.W., Geeson, D.A. e Greenwood, R.C. (1994), Studies of the kinetics and mechanism of the oxidation of uranium by dry and moist air. A model for determining the oxidation rate over a wide range of temperatures and water vapour pressures, *J. Nucl. Mat.*, **208**: 81–97.
- Mark, T.D., Mark, E., Bertel, E. e Pahl, M. (1977), Fission Track Measurements of the Decay Constant for Spontaneous Fission of ^{238}U , *Ber. Nat.–Med. Ver. Innsbruck*, **64**, 7–11.
- Maurer, W. e Pose, H. (1943), Neutronenemission des Urankerns als Folge seiner spontanen Spaltung, *Z. Phys.*, **121**:285–292.
- Naeser, C.W., Hurford, A.J. e Gleadow, A.J.W. (1977), *Nature*, **267** : 649.
- Nishimura, S. (1972), On the Value of the Decay Constant for Spontaneous Fission of ^{238}U , *J. Japan. Assoc. Min. Petrol. Econ. Geol.*, **67** : 139–142.
- Nishimura, S. (1978), On the Value of the Decay Constant for Spontaneous Fission of Uranium–238, *Geol. Surv. Open–file Report* , **78–101** : 306–307.
- Nishimura, S. (1981), On the Fission Track dating of Tuffs and Volcanic Ashes, *Nucl. Tracks*, **5** :157–167.
- Nitsche, H., Gatti, R.C. e Lee, Sh. C. (1992), Low–level determination of plutonium by gamma and L x–ray spectroscopy, *J. Radioanal. Nucl. Chem.*, **161**: 401–411.
- Parker, P.L. e Kuroda, P.K. (1956), Molybdenum–99 in Uranium Salts and the Spontaneous Fission Half–Life of Uranium–238, *J. Chem. Phys.*, **25** : 1084–1085.
- Parker, P.L. e Kuroda, P.K. (1958), The Occurrence of Molybdenum–99 in Natural and in Depleted Uranium Salts and the Spontaneous Fission Half–Life of Uranium–238, *J. Inorg. Nucl. Chem.*, **5**:153–158.
- Perfilov, N.A. (1947), *Zh. Eksp. Teor. Fiz.* (Russia), **17**: 476–484.
- Plodinec, M.J. (1986), Vittrification Chemistry and Nuclear Waste, *J. Non–Crystalline Solids*, **84**, 206–214.
- Podgurskaia, A.V., Kalashnikova, V.I., Stoliarov, G.A., Vorob'ev, E.D. e Flerov, G.N. (1955), *Zh. Eksp. Teor. Fiz.* (Russia), **28**: 503.
- Popeko, A.G. e Ter–Akopian, G.M. (1980), *Nucl. Inst. Meth.*, **178**: 163.
- Pose, H. (1943), Spontane Neutronenemission von Uran und Thorium, *Z. Phys.*, **121**:293–297.
- Price, P.B. e Walker, R.M. (1962), Chemical etching of charged particles tracks in solids, *J. Appl. Phys.*, **33**: 3407–3412.

- Price, P.B. e Walker, R.M. (1963), Fossil tracks of charged particles in mica and the age of minerals, *J. Geophys. Res.*, **68**: 4847–4862.
- Rao, M.N. e Kuroda, P.K. (1966), Decay Constant and Mass–Yield Curve for the Spontaneous Fission of ^{238}U , *Phys. Rev.*, **147** : 884–886.
- Roberts, J. H. , Gold, R. e Armani,R.J. (1968), Spontaneous–Fission Decay Constant of ^{238}U , *Physical Review* , **174** , 4847–4862.
- Sabu, D.D. (1971), *J. Inorg. Nucl. Chem.*, **33** :1509.
- Segrè, E. e Wiegard, C. (1946), Stopping power of various substances for fission fragments, *Phys. Rev.*, **70**: 808–811.
- Segrè, E. (1952), Spontaneous Fission, *Phys. Rev*, **86** : 21–28.
- Scharff–Goldhaber, G. e Klaiber, G.S. (1946), Spontaneous Emission of Neutrons from Uranium, *Phys. Rev.*, **70**: 229.
- Shukoljukov, Y.A., Ashknadze, G.S., Levchenkov, O.A. e Ovchinnikova, G.V. (1968), *Geokhimiya*, **3**: 265–274.
- Silk, E.C.H. e Barnes, R.S. (1959), Examination of fission fragment tracks with an electron microscope, *Philos. Mag.*, **4**: 970–972.
- Spadavecchia, A. e Hahn (1967), Die RotationsKammer und einige Anwendungen, *Helv. Phys. Acta*, **40**:1063–1079.
- Spaggiarri, E.R.V. (1980), Determinação do Alcance Efetivo de Fragmentos de Fissão no UO_2 e da Constante de Desintegração para a Fissão Espontânea do Urânio–238, *Ann. Acad. Brasil Cienc.*, **52** : 213–233.
- Sombret, C.G.(1985), The vitrification of high level radioactive wastes in France, *Nucl. Energy*, **24**, 85–98.
- Storzer, D. (1970), Spaltspuren des 238–Urans und ihre Bedeutung für die geologische Geschichte natürlicher Glaser, Tese, Universidade de Heidelberg.
- Suzuki, H. (1973), *J. Fac. Sci. Univ. of Tokyo*, **Sec. v 3** : 241.
- Susuki, T. , Tomura, K. (1988), Dosimetry for Fission–Track Dating: An Inter–Reactor Comparison, *Nucl. Tracks Radiate Meas.*, **15**: 487–490.
- Tagami, T. , Nishimura S. (1992) , Neutron Dosimetry and Fission–Track Age Calibration: Insights from Intercalibration of Uranium and Thorium Glass Dosimeters, *Chemical Geology*, **102**: 277–296.
- Tello S., C.A. (1998), Estudo do annealing de traços de fissão em apatitas, tanto em seçõesbasais como em seções sem orientação preferencial, a partir do comprimento e da densidade de traços de fissão.

Tese de Doutorado, UNICAMP, Campinas–SP.

Thiel, K. e Herr, W. (1976), The ^{238}U Spontaneous Fission Decay Constant Re–Determined by Fission Tracks, *Earth. Planet. Sci. Lett.*, **30** : 50–56.

Thury, W.M.(1971), Die Bestimmung der Spontanspaltrate von U–238 mit Hilfe der Messung von Korrelationsfunktionen dritter Ordnung, *Acta Phys. Austriaca*, **33** : 375–378.

Van den haute, P., de Corte, F., Jonckheere, R. e Bellemans, F. (1998). In: Advances in Fission–Track Geochronology. Editores: Peter Van den haute e Franz de Corte, Kluwer Academic Publishers: 33–46.

Vartanian, R.(1984), Spontaneous Fission Decay Constant of ^{238}U : Measured by the Fission Track Technique, *Helv. Phys. Acta*, **57** : 416–420.

Wagner, G. e Van Den Haute, P. (1992), *Fission–Track Dating*, Kluwer Academic Publishers.

Wagner, G.A., Reimer, G.M., Carpenter, B.S., Faul, H., van der Linden, R. e Gijbels, R. (1975), The Spontaneous Fission Rate of U–238 and Fission Track Dating, *Geochim. Cosmochim. Acta*, **39** : 1279–1286.

Whitehouse, W.J. e Galbraith, W. (1950), Energy Spectrum of Fragments from The Spontaneous Fission of Natural Uranium, *Philos. Mag.*, **41** : 429–443

Young, D.A. (1958), etching of radiation damage in lithium fluoride, *Nature*, **182**: 375–377.