

ANTONIO CARDOSO
.....

DETERMINAÇÃO DE MANGANÊS EM MINÉRIOS, POR ANÁLISE POR ATIVAÇÃO, USANDO CALIFÓRNIO-252 COMO FONTE DE NÊUTRONS

Dissertação apresentada ao Instituto de Química da USP como parte dos requisitos para a obtenção do título de "MESTRE EM QUÍMICA ANALÍTICA".

Orientador:

Prof. Dr. Fausto Walter de Lima



São Paulo - 1976

À
Dulcinéa
Ana Júlia e
aos meus pais

AGRADECIMENTOS

Ao Prof. Dr. RÔMULO RIBEIRO PIERONI, Superintendente do Instituto de Energia Atômica, pela oportunidade de estagiar no IEA e assim poder realizar a presente Dissertação.

Ao Prof. Dr. FAUSTO WALTER DE LIMA, Coordenador Geral da Coordenadoria de Radioquímica do Instituto de Energia Atômica, pelos conhecimentos transmitidos, bem como pela dedicação e interesse demonstrados por ocasião da execução do presente trabalho.

Ao Prof. Dr. ELIAS SEFER, Diretor da Faculdade de Ciências Agrárias do Pará, pela oportunidade concedida ao corpo docente dessa Faculdade e ao qual pertença, no sentido de cada vez mais aperfeiçoar os seus conhecimentos científicos.

Ao Prof. Dr. HÍLKIAS BERNARDO DE SOUZA, Chefe do Departamento de Química da Faculdade de Ciências Agrárias do Pará pelo apoio, dedicação e incentivo demonstrados em meus estudos de Pós-Graduação.

Ao PEAS, pelo apoio financeiro concedido.

Aos Profs. Dr. UMBERTO CORDANI e Dr. J.V. VALARELLI do Instituto de Geociências da Universidade de São Paulo, pelo fornecimento das amostras usadas neste trabalho.

A CLEIDE RENNER, M.Scí. do Laboratório de Medidas Nucleares do Instituto de Energia Atômica, pela determinação absoluta do fluxo de nêutrons da fonte de Califórnio-252.

A todos os colegas da Coordenadoria de Radioquímica do Instituto de Energia Atômica, que direta ou indiretamente colaboraram na execução deste trabalho.

RESUMO

Estudou-se, neste trabalho, um método analítico, por ativação com nêutrons térmicos de uma fonte de Califórnio-252 para a determinação de manganês em minérios e "blending" usado em pilha seca.

Devido às condições favoráveis, como alta seção de choque para a reação $^{55}\text{Mn}(n,\text{gama})^{56}\text{Mn}$, elevada concentração de manganês na amostra e meia-vida relativamente curta do manganês-56, pôde-se analisar vários minérios de manganês, de diferentes localidades, através de análise puramente instrumental, sem processamento químico.

Após 20 minutos de irradiação simultânea de amostra e padrão, e de 4 a 15 minutos de decaimento foi determinada a atividade do Mn-56 utilizando-se analisador de raios gama mono-canal e cristal de cintilação de NaI(Tl).

As interferências devidas às reações nucleares, $^{56}\text{Fe}(n,p)^{56}\text{Mn}$ e $^{59}\text{Co}(n,\text{alfa})^{56}\text{Mn}$ foram estudadas, bem como os problemas de depressão do fluxo de nêutrons durante a irradiação, atenuação dos raios gama durante as contagens e influência da granulometria das amostras.

O método do presente trabalho foi examinado comparativamente com o método químico do bismutato de sódio.

Em conjunto foi demonstrado ser o método estudado muito vantajoso para análises de minérios de manganês devido sua simplicidade, rapidez e boa precisão e exatidão.

S U M M A R Y

Neutron Activation Analysis, using a Californium-252 neutron source, has been applied for the determination of manganese in ores such as pyrolusite, rodonite (manganese silicate) and blending used in dry-batteries.

The favorable nuclear properties of manganese, such as high thermal neutron cross-section for the reaction $^{55}\text{Mn}(n,\gamma)^{56}\text{Mn}$, high concentration of manganese in the matrix and short half-life of ^{56}Mn , are an ideal combination for non-destructive analysis of manganese in ores.

Samples and standards of manganese dioxide were irradiated for about 20 minutes, followed by a 4 to 15 minutes decay and counted in a single channel pulse-height discrimination using a NaI(Tl) scintillation detector. Counting time was equal to 10 minutes.

The interference of nuclear reactions $^{56}\text{Fe}(n,p)^{56}\text{Mn}$ and $^{59}\text{Co}(n,\alpha)^{56}\text{Mn}$ were studied, as well as problems in connection with neutron shadowing during irradiation, gamma-rays attenuation during counting and influence of granulometry of samples.

One sample was also analysed by wet-chemical method (sodium bismuthate) in order to compare results.

As a whole, it was shown that the analytical method of neutron activation for manganese in ores and blending, is a method simple, rapid and with good precision and accuracy.

ÍNDICE

Página

CAPÍTULO I

Introdução 1

CAPÍTULO II

A fonte de nêutrons 6

CAPÍTULO III

PARTE EXPERIMENTAL

III.1 Equipamentos 13

III.2 Padrões de Manganês 14

III.3 Preparação das Amostras para Irradiação 17

III.4 Contagens 17

III.5 Posicionamento da Fonte 21

III.6 Curva de Auto-Absorção 21

III.7 Estudo das Interferências 29

III.8 Fluxo de Nêutrons 35

III.9 Sensibilidade do Método 36

III.10 Cálculos 37

III.11 Resultados 38

III.12 Análise Química Via Úmida 46

CAPÍTULO IV

Discussão e Conclusões 52

APÊNDICE I

Dados Nucleares de Alguns Isótopos de Manganês 59

APÊNDICE II

Propriedades Nucleares do Califórnic-252 60

REFERÊNCIAS 61

CAPÍTULO I

INTRODUÇÃO

O manganês é um metal da família do ferro e participa com 0,09% em peso na crosta terrestre, onde ocorre em formas combinadas (óxidos, silicatos, carbonatos, sulfetos, etc.). A importância econômica deste elemento se deve principalmente ao seu emprego na indústria siderúrgica (95%) onde se consomem aproximadamente 30 kg de minério para produzir uma tonelada de aço. O restante é utilizado nas indústrias químicas, cerâmicas, elétricas e de fertilizantes¹.

Na siderurgia o manganês é empregado na forma de minério ou ferro liga, para a produção de gusa, aço e aços especiais. Barbosa et al. (segundo Abreu¹) apresentam um estudo minucioso sobre o emprego do manganês na siderurgia.

Abreu¹ destaca como outras aplicações do manganês o seu uso na forma de minérios ou produtos artificiais para a fabricação de pilhas secas do tipo Leclanché, como agente despolarizante, sendo que essa indústria consome aproximadamente 2% da produção de manganês. Na fabricação de vidros o manganês corrige a cor esverdeada provocada pela presença de ferro. Na forma de sulfato de manganês é utilizado, principalmente nos Estados Unidos da América, na citricultura como micronutriente. Camp (segundo Abreu¹) destaca que "sem adições de manganês ou na presença de quantidades de manganês disponíveis no solo, o que é muito limitado, não é possível manter na Flórida uma adequada cultura de citrus". Essa deficiência de manganês é específica e nenhum outro elemento químico pode substituir sua ação na nutrição adequada de laranjeiras, "grapes" e tangerinas. No Brasil a utilização do manganês na agricultura vem sendo introduzida na forma de pulverizações dos pomares com sulfato de manganês. O carbonato de manganês talvez possa vir a ser empregado diretamente no solo pois serviria também como correti

vo de acidez.

Muitos dos métodos analíticos de determinação de manganês são volumétricos e se baseiam na oxidação do manganês divalente a ácido permangânico seguida de subsequente redução, Hillebrand². Exceções são feitas ao método de Volhard, no qual o manganês bivalente é oxidado por solução de permanganato ao estado tetravalente, bem como métodos em que o manganês é primeiramente separado de outros elementos por precipitação na forma de bióxido e posterior redução quantitativa pelo sulfato ferroso, peróxido de hidrogênio, ácido oxálico, etc..

Dentre os métodos volumétricos citados por Hillebrand², destaca-se o método do bismutato que será examinado em capítulos posteriores, e o método da persulfato que se baseia na oxidação do manganês a ácido permangânico por ação do persulfato de amônio, em ácido nítrico diluído, nitrato de prata e ácido fosfórico, e posterior titulação com solução padrão de arsenito de sódio.

O método do pirofosfato é, provavelmente, segundo Hillebrand², o melhor método gravimétrico para a determinação de manganês. Este se baseia na precipitação do fosfato de amônio e manganês em solução ligeiramente amoniacal, contendo excesso de sais de amônio. O método requer uma separação preliminar do manganês de outros elementos que possam ser precipitados nas condições estabelecidas pelo método.

Pequenas quantidades de manganês podem ser determinadas por comparações colorimétricas após oxidação a ácido permangânico por oxidantes como periodatos, persulfatos, bismutatos ou óxido de chumbo.

Segundo Leddicotte³, métodos gravimétricos são mais adequados para preparar radionuclídeos para contagens, desde que alguns dos seus compostos possam ser produzidos por precipitação. Os métodos mais convenientes para a determinação de compostos de radiomanganês são todos fundamentados na precipitação do manganês em forma de sulfato, bióxido hidratado, fosfato de amônio e manganês ou como sulfato. O mesmo autor refere-se ao pirofosfato de manganês, $Mn_2P_2O_7$, como a melhor forma ponderável dos compostos de

manganês, obtida por calcinação do fosfato de amônio e manganês, $MnNH_4PO_4 \cdot H_2O$.

Smith⁴ desenvolveu um método de análise por ativação associado a medições colorimétricas, usando reator nuclear como fonte de nêutrons, para a determinação de traços de manganês em material biológico.

Conrad & Kenna⁵ analisaram manganês em adesivos polisulfuretos, por análise por ativação, usando reator nuclear com fluxo de nêutrons térmicos de 2×10^{10} n/cm².s. Amostras com 2 e 3% em manganês foram analisadas com uma precisão de 2,9%.

Strain & Lydon⁶ usaram fontes isotópicas do tipo "alfa-n", isto é, ^{210}Po -Be e ^{241}Am -Be, para análises de manganês em amostras de solos, contendo menos de 6 mg deste elemento, com uma exatidão de 20%.

Alaerts et al.⁷ usaram uma fonte de rádio-berílio, com atividade de 1 Ci, para análises de minérios de manganês e ligas de ferromanganês. Minérios tipo pirolusita com conteúdo em manganês de 30 a 50% e ligas de ferromanganês com conteúdo em manganês de 80% foram analisadas com uma precisão de 0,1%. O tempo de irradiação foi de 20 minutos, seguido de 20 minutos de decaimento e contagem por 20 minutos em espectrômetro de raios gama monocanal. As amostras de pirolusita e ferromanganês continham 4 e 3 g de material, respectivamente.

Um método para a determinação simultânea de manganês e cobre em material biológico foi desenvolvido por Worwood & Taylor⁸, usando um fluxo térmico de aproximadamente 1×10^{12} n/cm².s. Os limites de detecção para o manganês e cobre foram, respectivamente, de 2×10^{-9} g e 2×10^{-8} g.

Nadkarni & Halder⁹ usaram a N-Benzoil-N-Fenil-hidróxilamina (BPFA) para a extração de quantidades sub-estequiométricas de Mn(II), após ativação com nêutrons térmicos, em amostras de aços. O complexo 1:2, Mn(II)-BPFA é extraído em clorofórmio em um intervalo de pH de 10 a 11. A seletividade do método pode ser melhorada por meio de uma separação preliminar do Mn(II), na forma de MnO_2 , por precipitação com $KBrO_3$.

Análises por ativação com espectrometria gama, de manganês em polpa, foram efetivadas em um intervalo de concentração de 0,25 a 100 ppm¹⁰. As análises mostraram a ocorrência de erro máximo de \pm 5% para todos os intervalos de concentrações. Os valores de manganês em polpas, obtidos por métodos químicos, mostraram boa concordância com os obtidos através da análise por ativação para concentrações superiores a 5 ppm.

Taqueda¹¹ efetuou análise química de manganês e ferro, empregando um aparelho portátil de fluorescência de raios-X por excitação radioisotópica e determinou a precisão e a exatidão que podem ser obtidas em amostras de minérios cujas concentrações variam entre 30 e 60% para manganês e entre 2 e 20% para o ferro.

Vários autores^{12,13} mostraram que pequenas quantidades de manganês em alumínio, ligas de alumínio e ligas de outros metais podem ser determinadas pelo método de análise por ativação, após irradiação com nêutrons de reator nuclear, por técnica não destrutiva.

Análises de amostras contendo radioisótopos de manganês podem ser efetuadas por técnicas destrutivas e não destrutivas. Para tais análises fatores como meia-vida do radioisótopo, tipo de radiação emitida e energia da radiação, são de muita importância. O radioisótopo de manganês que mais comumente é empregado para referidas análises é o manganês-56 produzido pela reação nuclear, $^{55}\text{Mn}(n, \text{gama})^{56}\text{Mn}$. No Apêndice I encontram-se alguns dados nucleares sobre o manganês.

Considerando-se a importância do manganês nos processos industriais, e tendo em vista as dificuldades inerentes a diversos métodos de análises, no presente trabalho procurou-se desenvolver um método simples, rápido e eficiente para a determinação de manganês em minérios usando uma fonte de califórnio-252, contendo 352 μg de Cf-252 (setembro, 1972). O método desenvolvido é puramente instrumental, não envolvendo separações químicas para a análise das amostras estudadas (minérios de manganês nas formas de silicato e óxido, bem como "blending" de vários minérios usado na manufatura de pilhas secas), sendo que amostras com massas de apenas 150 mg de mi

nério ou "blending", com teor de manganês da ordem de 10 a 50%, podem ser analisadas em cerca de 45 minutos. Parte dos resultados colhidos foram apresentados por Cardoso & Lima em congresso patrocinado pela "American Nuclear Society"¹⁴.

CAPÍTULO II

A FONTE DE NÊUTRONS

A análise por ativação com nêutrons é uma técnica nuclear de análise elementar na qual, como consequência de reações nucleares entre os nêutrons e os átomos dos elementos a analisar, formam-se isótopos, geralmente radioativos, daqueles elementos constituintes da matriz.

O espectro de raios gama dos radioisótopos formados é usado para identificar e também para determinar a concentração dos elementos presentes na amostra. Lima¹⁵ conceitua a análise por ativação e examina alguns dos aspectos mais importantes relativos a este método de análise.

Três tipos de fontes de nêutrons têm sido empregadas habitualmente na análise por ativação: reatores nucleares à base de urânio natural ou enriquecido, com fluxo térmico de 10^{11} a 10^{15} n/cm².s; geradores de nêutrons e aceleradores de partículas (acelerador Van der Graaff) com fluxo de 10^8 a 10^{13} n/cm².s; e as fontes isotópicas nas quais os nêutrons são produzidos por reações nucleares tipo (α,n) e (γ,n) com fluxo térmico de 10^4 a 10^9 n/cm².s.

Um quarto tipo de fonte, constituído por califórnio-252, pode ser incluído nessa classificação. Essas fontes emitem nêutrons por fissão espontânea, com um fluxo de aproximadamente 10^8 n/cm².s, para uma massa de califórnio-252 correspondente a cerca de 1 mg.

O primeiro isótopo do califórnio (número atômico 98) foi produzido pelo bombardeamento de um alvo de ²⁴²Cm com ions de hélio de 35 MeV, em

um ciclotron de 60 polegadas. Este isótopo foi identificado como tendo meia-vida de 45 minutos, número de massa 244 e decaimento por emissão de partículas alfa com energia de aproximadamente 7,1 MeV¹⁶.

O califórnio-252 foi identificado pela primeira vez nos restos de uma explosão termonuclear ocorrida em novembro de 1952. Durante a explosão o urânio foi submetido a uma curta porém intensa irradiação com nêutrons na qual o processo de absorção neutrônica foi completado antes que a emissão beta tivesse lugar. Na ocasião foram descobertos os elementos de número atômico 99 e 100, einstênio e fêrmio, bem como vários isótopos de cúrio, de berkélio e de califórnio¹⁷.

Grande quantidade de califórnio-252 pode ser fabricada por meio da irradiação do plutônio-239 ou seus produtos de transmutação (plutônio-242, amerício-243 e cúrio-244) com nêutrons térmicos de um reator nuclear. Elementos de alto número atômico são obtidos quando das sucessivas capturas de nêutrons e decaimento beta. Treze consecutivos nêutrons são adicionados a cada núcleo de plutônio-239 para convertê-lo em califórnio-252 (Fig. II.1)¹⁸.

O califórnio-252 decai tanto por emissão alfa como por fissão espontânea. Spiegel¹⁹ determinou a meia-vida efetiva do ²⁵²Cf como sendo igual a $2,638 \pm 0,007$ anos. Esta meia-vida é 0,3% menor que o valor obtido por Natta et al.²⁰, $2,646 \pm 0,004$ anos e 0,6% maior que o valor de De Volpi & Porges²¹, $2,621 \pm 0,006$ anos.

Sérias discrepâncias foram constatadas entre os valores obtidos, por diferentes métodos, para o número médio de nêutrons, $\bar{\nu}_p$, emitidos na fissão espontânea do califórnio-252. Esse fato tem importância porque o califórnio-252 é usado como padrão em medidas de $\bar{\nu}_p$, especialmente as referentes à fissão de nêutrons térmicos do U-233, U-235, Pu-239 e Pu-241. As primeiras divergências surgiram quando Calvin & Sowerby (citados por Boldeman²²), determinaram o valor de $\bar{\nu}_p$ para o califórnio-252 que era aproximadamente 2% menor que os dois valores existentes. O próprio Boldeman fez determinações absolutas do número médio de nêutrons emitidos pelo califór-

um ciclotron de 60 polegadas. Este isótopo foi identificado como tendo meia-vida de 45 minutos, número de massa 244 e decaimento por emissão de partículas alfa com energia de aproximadamente 7,1 MeV¹⁶.

O califórnio-252 foi identificado pela primeira vez nos restos de uma explosão termonuclear ocorrida em novembro de 1952. Durante a explosão o urânio foi submetido a uma curta porém intensa irradiação com nêutrons na qual o processo de absorção neutrônica foi completado antes que a emissão beta tivesse lugar. Na ocasião foram descobertos os elementos de número atômico 99 e 100, einstênio e fêrmio, bem como vários isótopos de cúrio, de berkélio e de califórnio¹⁷.

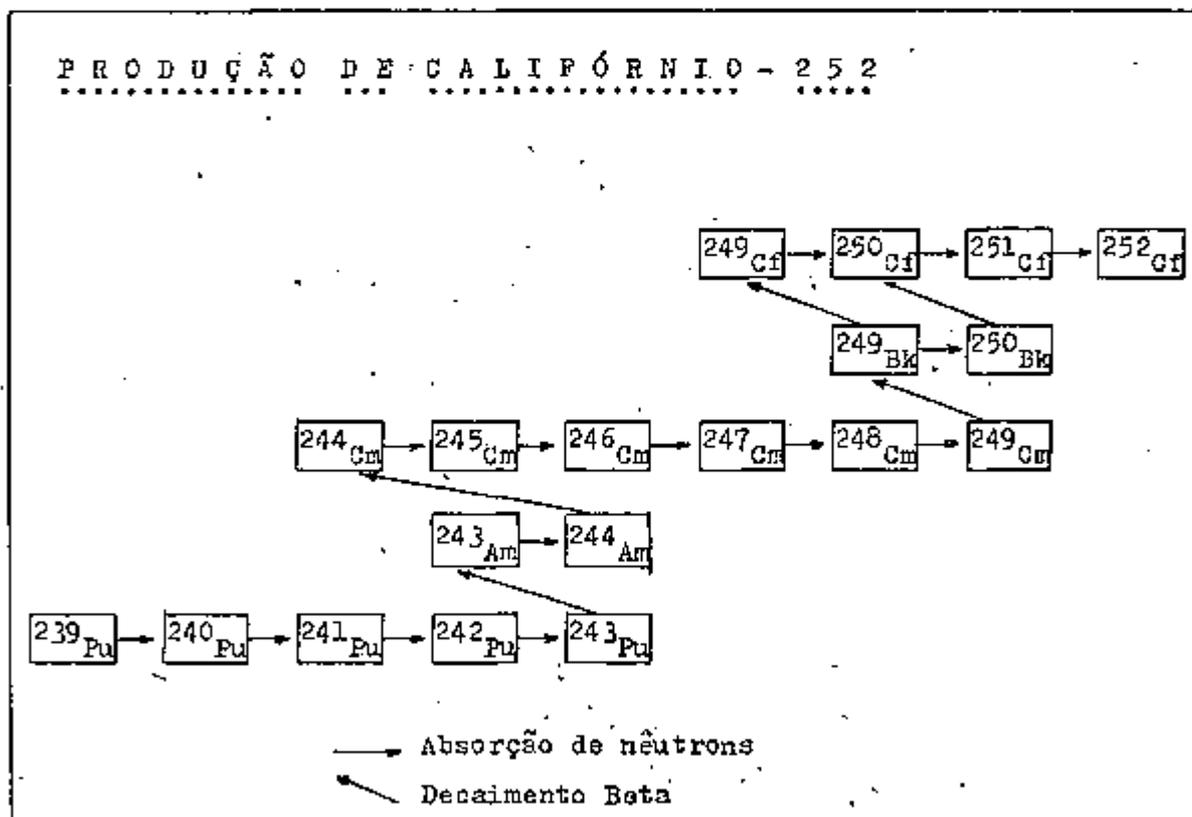
Grande quantidade de califórnio-252 pode ser fabricada por meio da irradiação do plutônio-239 ou seus produtos de transmutação (plutônio-242, amerício-243 e cúrio-244) com nêutrons térmicos de um reator nuclear. Elementos de alto número atômico são obtidos quando das sucessivas capturas de nêutrons e decaimento beta. Treze consecutivos nêutrons são adicionados a cada núcleo de plutônio-239 para convertê-lo em califórnio-252 (Fig. II.1)¹⁸.

O califórnio-252 decai tanto por emissão alfa como por fissão espontânea. Spiegel¹⁹ determinou a meia-vida efetiva do ²⁵²Cf como sendo igual a $2,638 \pm 0,007$ anos. Esta meia-vida é 0,3% menor que o valor obtido por Natta et al.²⁰, $2,646 \pm 0,004$ anos e 0,6% maior que o valor de De Volpi & Porges²¹, $2,621 \pm 0,006$ anos.

Sérias discrepâncias foram constatadas entre os valores obtidos, por diferentes métodos, para o número médio de nêutrons, $\bar{\nu}_p$, emitidos na fissão espontânea do califórnio-252. Esse fato tem importância porque o califórnio-252 é usado como padrão em medidas de $\bar{\nu}_p$, especialmente as referentes à fissão de nêutrons térmicos do U-233, U-235, Pu-239 e Pu-241. As primeiras divergências surgiram quando Calvin & Sowerby (citados por Boldeman²²), determinaram o valor de $\bar{\nu}_p$ para o califórnio-252 que era aproximadamente 2% menor que os dois valores existentes. O próprio Boldeman fez determinações absolutas do número médio de nêutrons emitidos pelo califór-

CAP II

FIGURA II.1



Ponte: Californium-252 Its Use and Market Potential.
Savannah River Operations Office, U.S. Atomic Energy
Commission. September, 1969.

nio-252, usando o método de cintilação líquida, obtendo o valor de $3,747 \pm 0,012$ n/fissão.

O espectro de energia dos nêutrons do califórnio-252 tem um máximo em 1,0 MeV, sendo que a energia média desses nêutrons é de 2,3 MeV. O califórnio-252 também emite $1,3 \times 10^{13}$ fotons por segundo e por grama devido à conversão interna de raios-X¹⁸. O Apêndice II contém as propriedades nucleares do ²⁵²Cf.

Diversas investigações radioquímicas têm sido feitas no sentido de serem determinados os produtos de fissão provenientes da fissão espontânea do califórnio-252. Glendenin & Steinberg²³ identificaram quinze produtos de fissão num intervalo de massa de 99 a 143. Nervik²⁴, efetuando investigações radioquímicas, obteve a curva de rendimento de fissão do califórnio-252 usando uma fonte de 1×10^6 , outra de 2×10^7 e uma terceira de 7×10^7 fissões por minuto. Trinta e seis nuclídeos radioativos entre número de massa 77 e 166 foram separados, identificados e seus rendimentos de fissão calculados. A curva do rendimento de fissão tem um máximo de 6,05% para as massas 107 e 141 e uma largura, a 1/10 do máximo de cada pico, de aproximadamente vinte e sete unidades de massa (Fig. II.2).

As propriedades químicas do califórnio assemelham-se às do disprósio, seu homólogo da série lantanídica. Em solução aquosa somente o estado trivalente positivo do califórnio tem sido confirmado. O nitrato, sulfato, cloreto e outros haletos, e perclorato de califórnio são solúveis em água, embora o fluoreto, oxalato e hidróxido sejam insolúveis. Cf³⁺ é co-precipitado por compostos insolúveis de lantanídeos pertencentes ao último grupo de anions. Califórnio metálico não foi até o presente momento preparado. Pesquisas feitas indicam que o califórnio sublima abaixo de 800°C no vácuo. Actinídeos e lantanídeos trivalentes são separados com dificuldades entre si devido às suas propriedades químicas similares e tamanho dos ions. Troca iônica e extração com solvente em contra corrente e sob condições controladas são técnicas utilizadas para separar ions actinídeos trivalentes de ions lantanídeos trivalentes e também para separar Cf³⁺ de ou

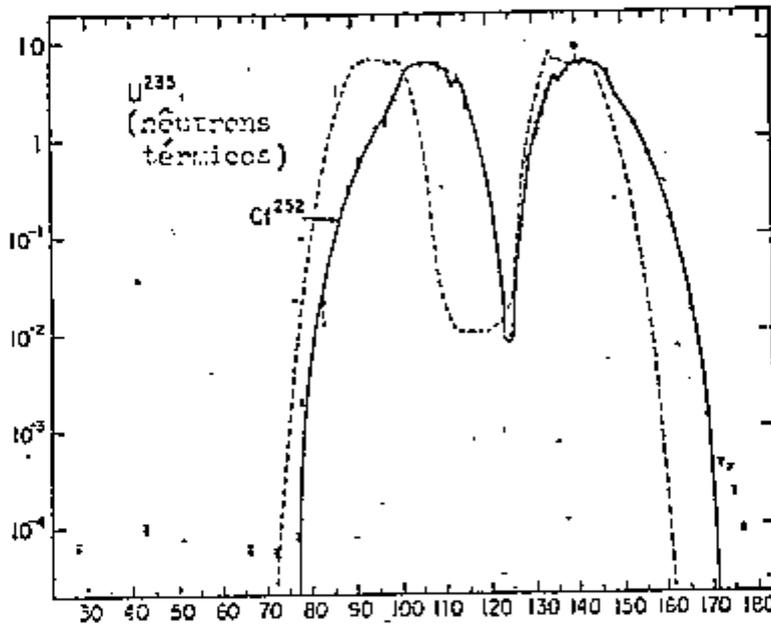
FIGURA II.2CURVA DO RENDIMENTO DE FISSÃO DO CALIFÓRNIO - 252.

Figura II.2 - Rendimento de fissão espontânea do califórnio - 252 em função do número de massa. Todos os pontos plotados foram determinados. A curva do Cf-252 é aproximadamente simétrica na massa 124,1. A curva do rendimento de fissão do ²³⁵U foi incluída para comparação.

Fonte: W.E.Nervik - Spontaneous Fission of ²⁵²Cf. Physical Review, 119, 1685-1690(1960).

tros ions actinídeos¹⁸.

O califórnio-252 possui muitas aplicações. Dentre os empregos mais comuns destacam-se¹⁸ : Medicina : Radioterapia de tecidos cancerosos (os nêutrons rápidos do califórnio-252 são mais efetivos no tratamento de certos tipos de cancer que os raios gama provenientes de uma fonte de rádio). Quando a tecnologia da radiografia com nêutrons rápidos estiver bem desenvolvida, os nêutrons do califórnio-252 poderão ser usados em radiografia corporal. Testes de diagnósticos podem ser feitos com o uso da análise por ativação, como no caso de suspeita de fibrose cística diagnosticada pela determinação do conteúdo de sódio. Na produção de radiofármacos de meia-vida curta, como no caso da obtenção de 100 microcuries de iodo-128 a partir da exposição de 1 g de iodo estável em um fluxo de nêutrons oriundos de uma fonte de califórnio-252 de 3 mg.

Exploração mineral : A fonte de califórnio-252 pode ser usada para a prospecção de ouro, prata, urânio e mais de trinta elementos de interesse industrial, tais como vanádio, cobre, alumínio, manganês, fluor, estanho, silício, sódio e ferro.

Exploração espacial : Um sistema automático de análise por ativação pode ser montado em veículos espaciais para coleta de amostras e análise da superfície da lua e de outros planetas. O califórnio-252 é muito conveniente para citados sistemas graças a sua alta produção de nêutrons e pequeno tamanho.

Engenharia Civil : A Engenharia Civil faz uso do califórnio-252 para medições rápidas do conteúdo de água nos solos e também para análise de concretos "on-site".

Agricultura : Estudos de indução de mutações em plantas e determinação do teor de proteína em grãos, por análise por ativação.

O califórnio-252 é vendido como mistura de óxidos, que são prontamente solúveis em ácido nítrico. Mais de 99% do califórnio está presente como Cf_2O_3 . A composição isotópica de uma fonte de califórnio muda com o passar do tempo, isto porque o ^{252}Cf decai mais rapidamente que o ^{249}Cf e ^{250}Cf e ^{251}Cf . O conteúdo isotópico típico de um produto manufaturado é mostrado a seguir :

<u>Isótopo</u>	<u>Massa (Z)</u>
^{249}Cf	2
^{250}Cf	15
^{251}Cf	4
^{252}Cf	79

Somente traços de ^{253}Cf e ^{254}Cf estão presentes isto devido às suas baixas concentrações iniciais e elevada taxa de decaimento.

Uma fonte utilizada em radioterapia é fabricada por eletrodeposição uniforme de hidróxido de califórnio sobre um cátodo de 90% de platina e 10% de irídio. Em seguida o cátodo é aquecido e o hidróxido transformado em trióxido de califórnio.

Com a produção de miligramas de califórnio-252 tem sido possível construir fontes com altas intensidades, úteis em vários setores. Um miligrama de ^{252}Cf emite $2,3 \times 10^9$ n/s. Quando referidas fontes são colocadas em moderadores, como água, os nêutrons rápidos são moderados por colisões inelásticas com átomos de hidrogênio dando origem a um fluxo de nêutrons térmicos. Na imediata vizinhança da fonte a magnitude do fluxo é de aproximadamente 10^7 n/cm².s.mg. Fluxos térmicos de 10^9 n/cm².s ou maiores são particularmente úteis na análise por ativação e na radiografia. No entanto o custo inicial de uma fonte com esse fluxo, presentemente, é maior que 1 milhão de dólares e haveria necessidade de uma reposição anual de aproximadamente duzentos e cinquenta mil dólares. Por esse motivo vários estudos têm sido feitos no sentido de multiplicação dos nêutrons de uma fonte de califórnio-252. Esta multiplicação é feita rodeando a fonte com material físsil, como ^{235}U e ^{239}Pu . A "Intelcom Rad Tech", San Diego, Califórnia, usa do urânio com grau de enriquecimento de 93,4%, em urânio-235, conseguiu um fator de multiplicação igual a 33 para o fluxo térmico. Assim, 1 mg de ^{252}Cf produzirá um fluxo térmico ao redor de 3×10^8 a 4×10^8 n/cm².s se for usado um "cobertor" de urânio com aquele enriquecimento em ^{235}U .

CAPÍTULO III

PARTE EXPERIMENTAL

PARTE GERAL

III.1 - EQUIPAMENTOS

Para as contagens foi usado um espectrômetro de raios gama no canal, Nuclear Chicago, acoplado a um cristal de cintilação de NaI(Tl) tipo poço de 5,0x4,5 cm. O aparelho foi calibrado de modo a obter contagem total (forma integral) a partir de 700 keV de energia gama. A calibração, bem como o controle periódico do equipamento de contagem, foi feita com uma fonte de Cs-137 com 30, 23 anos de meia-vida³² e fotopico de 661 keV de energia.

*a fonte de n's mencionada
era*

Como fonte de nêutrons utilizou-se o califórnio-252, na forma de trióxido de califórnio, alojado no interior de uma cápsula constituída de 90% de platina e 10% de irídio, recoberta com aço inoxidável. O conteúdo efetivo de califórnio-252, calculado pelos fabricantes, em setembro de 1972 era de 352 µg, com um erro padrão de ± 3%. O fluxo térmico calculado na oportunidade foi de $2,53 \times 10^6$ n/cm².s. Os principais isótopos existentes eram :

²⁴⁹ Cf	4%
²⁵⁰ Cf	11%
²⁵¹ Cf	2%
²⁵² Cf	82,5%
²⁵³ Cf	0,5%
²⁵⁴ Cf	0,025%

fonte, mas a irradiar de lucite

Na Fig. III.1 é apresentado o sistema de irradiação utilizado neste trabalho. O sistema é constituído pelo tubo onde é colocada a fonte e as amostras foram irradiadas em 1 hora. O tubo é rodeado por vários tubos de polietileno que foram usados para irradiar as amostras juntamente com o padrão. Todo esse conjunto se encontra em um tanque de lucite de 1 m³ de volume contendo água deionizada que serve como moderador de nêutrons e também como protetor biológico. O citado tanque está envolvido por paredes de chumbo, com 10 cm de espessura, com a finalidade de blindar as radiações provenientes da fonte. Esse sistema se encontra montado sobre a blindagem original usada para o transporte da fonte.

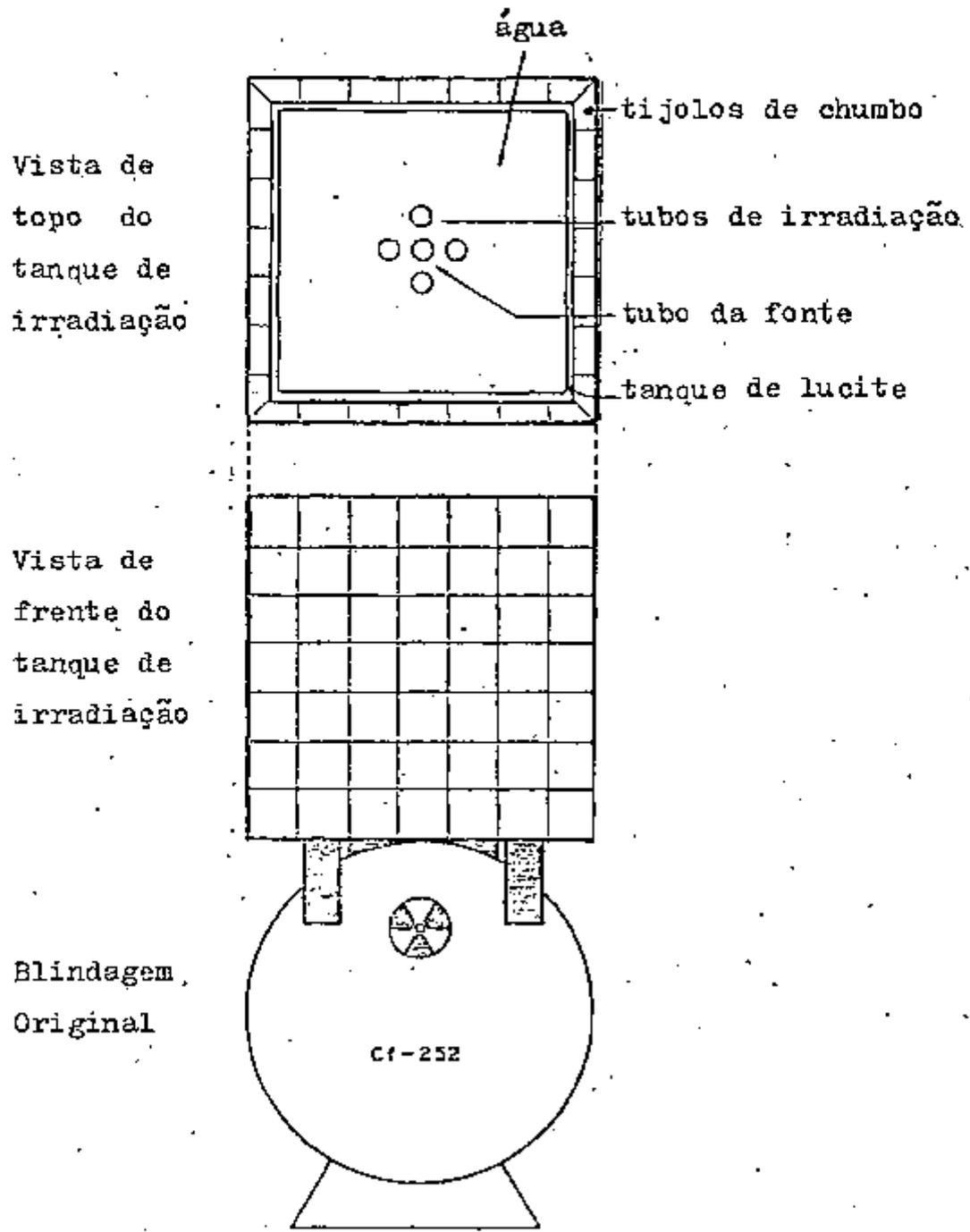
Nas irradiações foi usada uma peça cilíndrica de grafite de 9,3 cm de altura, 3,3 cm de diâmetro externo e 1,5 cm de diâmetro interno (Fig. III.2). No seu interior colocava-se um tubo de poliestireno de 12 cm de altura e 1,4 cm de diâmetro interno. Com esse dispositivo conseguiu-se melhorar a reprodutibilidade da posição de irradiação e também aumento de atividade comparativamente a obtida quando do uso de tubos de irradiação ("coelhos") de polietileno. O aumento de atividade provavelmente está relacionado com a excelente capacidade moderadora de nêutrons que possui o grafite. Outra vantagem decorrente do uso do dispositivo de grafite foi o aproveitamento do próprio tubo de poliestireno, usado nas irradiações, para a determinação da atividade da amostra irradiada, sem a necessidade de transferi-la para tubos de contagens, visto que, nas condições de irradiação adotadas neste trabalho, os elementos inorgânicos constituintes do tubo de poliestireno, praticamente não são ativados.

III.2 - PADRÕES DE MANGANÊS

Como substância padrão utilizou-se o bióxido de manganês da "J.T.Baker Chemical Co.", contendo 100,0% de MnO₂. Todos os padrões antes da irradiação foram colocados em envelopes de polietileno de 1 cm de largura por cerca de 1 cm de comprimento. Depois da irradiação, foi determinada a atividade do padrão, sem remover o invólucro de polietileno. A quantidade média de padrão usada foi de 60 mg de MnO₂. Ao todo foram preparados 10 padrões sendo que em virtude da meia-vida curta do manganês-56 aproveitou-se esses padrões várias vezes, após completo decaimento desse radioisótopo.

FIGURA III.1

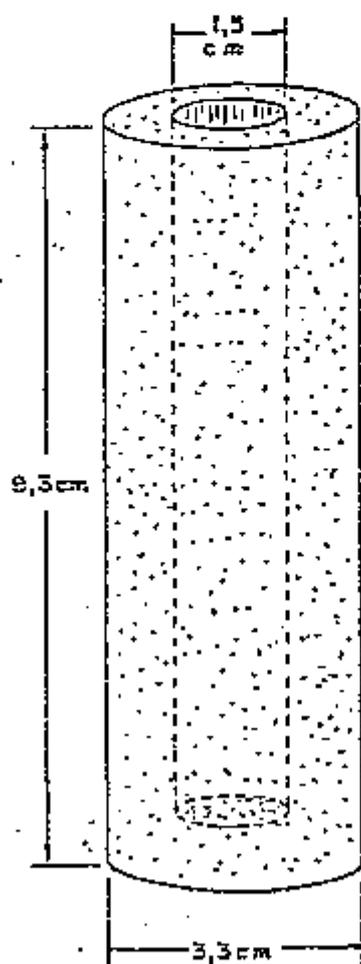
SISTEMA DE IRRADIAÇÃO



Escala: 1:20

FIGURA III.2

PEÇA DE GRAFITE USADA EM IRRADIAÇÕES
NA FONTE DE CALIFÓRNIO - 252.



III.3 - PREPARAÇÃO DAS AMOSTRAS PARA IRRADIAÇÃO

As amostras utilizadas neste trabalho foram fornecidas pelo Departamento de Mineralogia e Petrologia do Instituto de Geociências da Universidade de São Paulo. Elas estavam identificadas da seguinte maneira :

- Amostra - I : Silicato de manganês, tipo rodonita, coletada em Lafayette, Minas Gerais.
- Amostra - II : "Blending" de vários minérios de manganês, para utilização em pilhas, efetuado pela Microlite.
- Amostra - III : Silicatos de manganês, com várias impurezas, coletado em Uruaçu, Goiás.
- Amostra - IV : Essencialmente óxido de manganês, coletada em Igarapé Azul, Pará.
- Amostra - V : Óxido de manganês, tipo pirolusita, coleta na Serra do Navio, Território Federal do Amapá.

Todas as amostras foram trituradas em almofariz mecânico de ágata e classificadas em granulometrias de 60 a 80 meshes a maior que 80 meshes, com exceção da Amostra - II que foi recebida já triturada e com granulometria maior que 200 meshes. Em seguida as amostras foram colocadas em envelopes de polietileno de 1 cm x 1 cm, e irradiadas nos tubos de poliestireno de 12 cm de altura por 1,4 cm de diâmetro interno. Depois da irradiação foi feita a contagem da amostra, sem separar o invólucro de polietileno e usando os mesmos tubos de poliestireno colocados diretamente no cintilômetro de NaI(Tl).

III.4 - C O N T A G E N S

Para a determinação da atividade foi adotado o método da conta

gem total. Normalmente na análise por ativação adota-se o método da área integrada proposto por Covell²⁶, que consiste em considerar a soma das atividades correspondentes aos canais que definem o pico e deduzir desta soma a contribuição do efeito Compton nesse intervalo de energias.

O método da contagem total consiste em fixar-se um nível de base conveniente, de modo a registrar apenas os impulsos correspondentes às energias dos raios gama acima de certo valor, escolhido previamente em função do radioisótopo estudado. Em seguida acumula-se, na forma integral, um número relativamente grande de contagem de modo a minimizar o erro estatístico decorrente da desintegração radioativa. Esse método só é aplicável nos casos em que as condições de irradiação sejam tais que não possam ser ativadas outros elementos, que não o de interesse, existentes na amostra.

Para comprovar a inexistência de outras atividades que não seja a do radioisótopo desejado, determina-se a meia-vida da amostra nas condições de irradiação estabelecidas e também para as condições de contagem. A meia-vida assim determinada não deverá diferir significativamente da meia-vida tabelada na literatura, do radioisótopo em questão. Além disso, é sempre prudente efetuar-se um exame do espectro da amostra em analisadores multicanais acoplados a detetores de Ge-Li e comparar esse espectro com o espectro do padrão, ambos obtidos nas mesmas condições de irradiação e contagem.

Para o caso específico do manganês-56 optou-se por um nível de base de 700 keV, a partir do qual se encontram todos os fotopicos desse isótopo. A meia-vida das amostras utilizadas neste trabalho foi determinada para 20 minutos de irradiação em um fluxo de aproximadamente 10^6 n/cm².s, 15 minutos de decaimento e 10 minutos de contagem. Ao conjunto de valores correspondentes ao tempo de decaimento e respectivo logaritmo neperiano da atividade foi aplicado o método dos mínimos quadrados para uma regressão linear usando um minicomputador Hewlett-Packard 98708 Model 20, sendo que o coeficiente angular obtido permitiu calcular a meia-vida correspondente. Nas Tabelas III.1 e III.2 encontram-se os dados utilizados para a determinação das meias-vidas, bem como os respectivos valores achados. Efetuou-se também

TABELA III.1

DADOS UTILIZADOS PARA A DETERMINAÇÃO
DAS MEIAS-VIDAS.

PADRÃO		AMOSTRA-I		AMOSTRA-II	
Tempo de Decaimento (minuto)	Contagem em 10 minutos	Tempo Decaimento (minuto)	Contagem em 10 minutos	Tempo de Decaimento (minuto)	Contagem em 10 minutos
0	65.310	0	61.491	0	71.262
22	59.474	20	55.307	22	63.847
44	53.777	40	50.566	44	58.288
66	48.723	60	47.415	66	53.130
88	44.471	80	43.647	88	48.245
110	39.895	100	39.654	110	43.435
136	35.560	120	35.987	132	39.143
158	32.309	140	33.059	154	35.650
180	29.559	160	30.282	176	32.162
270	19.918	180	27.768	198	29.090
292	17.931	200	25.334	220	26.752
314	16.430	220	23.509	242	23.838
337	14.482	240	21.193	264	21.996
360	13.272	260	19.455	286	19.697
382	12.182	280	17.894	308	17.807
404	10.835	300	16.406	330	16.426
426	9.735	320	14.909	352	14.848
448	8.837	340	13.830	374	13.487
470	8.148	360	12.388	397	11.707

TABELA III.1

DADOS UTILIZADOS PARA A DETERMINAÇÃO

DAS MEIAS-VIDAS.

(continuação)

AMOSTRA-III		AMOSTRA-IV		AMOSTRA-V	
Tempo de Decaimento (minuto)	Contagem em 10 minutos	Tempo de Decaimento (minuto)	Contagem em 10 minutos	Tempo de Decaimento (minuto)	Contagem em 10 minutos
0	45.100	0	68.057	0	83.671
64	34.166	22	62.318	20	76.128
90	29.790	44	56.089	40	69.807
120	26.457	66	50.347	64	63.100
145	23.316	88	45.602	92	55.606
170	21.116	110	41.681	114	49.647
192	19.066	136	36.743	136	45.512
214	17.282	158	33.668	160	40.987
236	15.787	248	22.999	180	37.403
258	14.087	270	21.053	200	34.443
280	12.376	292	18.745	220	31.339
302	11.592	314	16.950	240	28.802
324	10.636	337	15.495	260	26.424
346	9.534	360	13.784	280	24.338
368	8.657	382	12.708	300	22.025
384	7.779	404	11.405	320	20.216
406	7.103	426	10.144	340	18.613
428	6.297	448	9.398	360	16.746
-	-	470	8.590	-	-

TABELA III.2RESULTADOS DA DETERMINAÇÃO DA MEIA-VIDA
DAS AMOSTRAS E PADRÃO.

Amostra	Meia-Vida (horas)
I	2,62
II	2,58
III	2,58
IV	2,56
V	2,60
- Padrão	2,60

Meia-vida tabelada : 2,576 horas (ver Apêndice I)

Tempo de irradiação : 20 minutos

Tempo de decaimento : 15 minutos

Tempo de contagem : 10 minutos

Amostra-I : Silicato de manganês tipo rodonita

Amostra-II: "Blending" de minérios

Amostra-III: Silicato de manganês

Amostra-IV : Óxido de manganês

Amostra-V : Óxido de manganês (pirolusita)

Padrão : Bióxido de manganês

comparações entre os espectros das amostras e do padrão (Figuras III.3, III.4, III.5, III.6 e III.7).

III.5 - POSICIONAMENTO DA FONTE

O sistema de irradiação mostrado na Fig. III.1 permite variar verticalmente a posição da fonte em relação à posição fixa da amostra. Este fato possibilita a escolha de uma posição na qual o fluxo de nêutrons térmicos seja mais intenso e homogêneo dando como consequência uma maior atividade do material irradiado.

Para essa verificação foram feitas irradiações de padrões de dióxido de manganês (60 mg) durante 20 minutos variando-se a posição da fonte em intervalos de aproximadamente 1 cm. Pelos resultados obtidos (Tabela III.3) fixou-se como posição ideal para as posteriores irradiações, a indicada com o nº 5 na Tabela III.3.

III.6 - CURVA DE AUTO-ABSORÇÃO

Em virtude da utilização de massas relativamente grandes de amostras, tornou-se necessário a verificação da existência de auto-absorção de raios gama. Foram irradiados padrões de 15 a 128 mg e amostras de 30 a 272 mg para verificar se, nesses intervalos de massas, não há efeitos de auto-absorção dos raios gama emitidos pelo manganês-56. Adotou-se um tempo de irradiação de 20 minutos e 10 minutos de contagem, tanto para o padrão como para as amostras. Os resultados acompanhados do respectivo erro na taxa das contagens estão na Tabela III.4.

Para a determinação da curva que melhor se ajusta ao conjunto de valores encontrados na Tabela III.4, aplicou-se o método dos mínimos quadrados usando, em linguagem "BASIC", um minicomputador Hewlett-Packard da Coordenadoria de Radioquímica do Instituto de Energia Atômica. Os valores das ordenadas na origem, A , e dos coeficientes angulares, B , das retas que dão a variação da atividade a em função da variação de massa m , encon

F I G U R A III.3

COMPARAÇÃO ENTRE OS ESPECTROS DE RAIOS GAMA
DA AMOSERA - I E PADRÃO DE MANGANÊS.

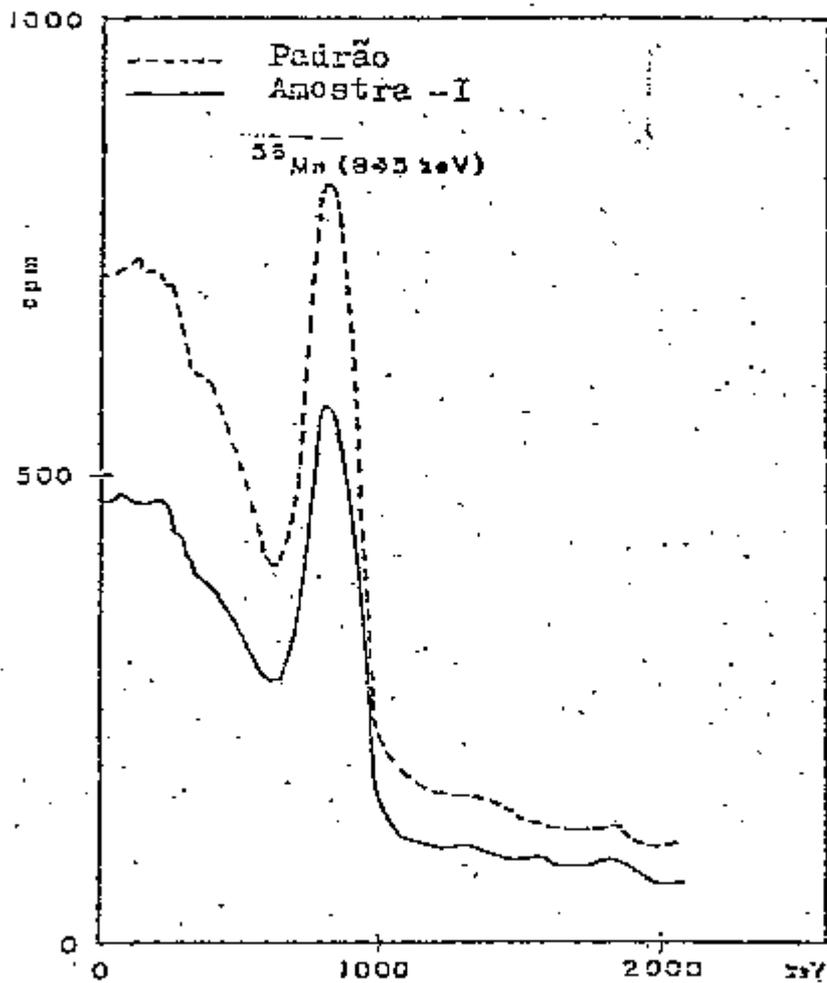


FIGURA III.4

COMPARAÇÃO ENTRE OS ESPECTROS DA AMOSTRA - II
E PADRÃO DE MANDANÉS.

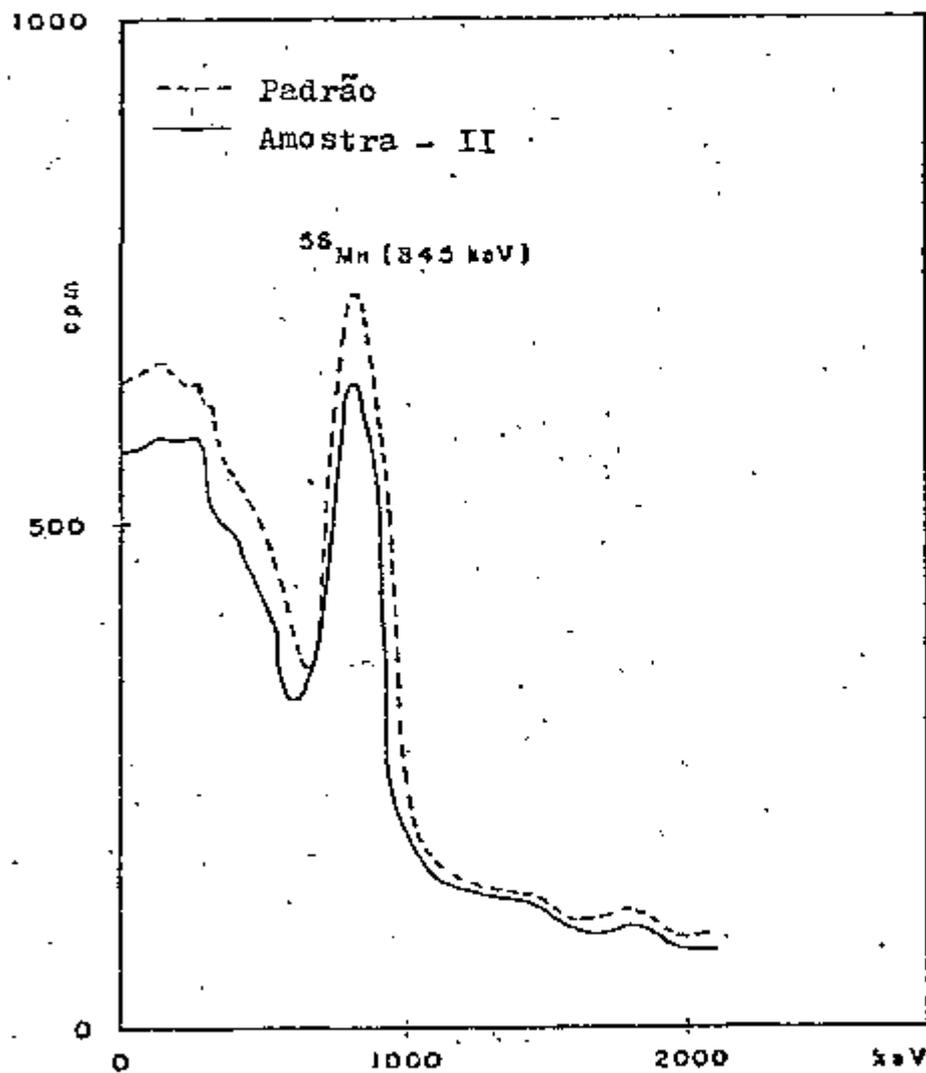


FIGURA III.5

COMPARAÇÃO ENTRE OS ESPECTROS DE RAIOS GAMA
DA AMOSTRA - III E PADRÃO DE MANGANÊS.

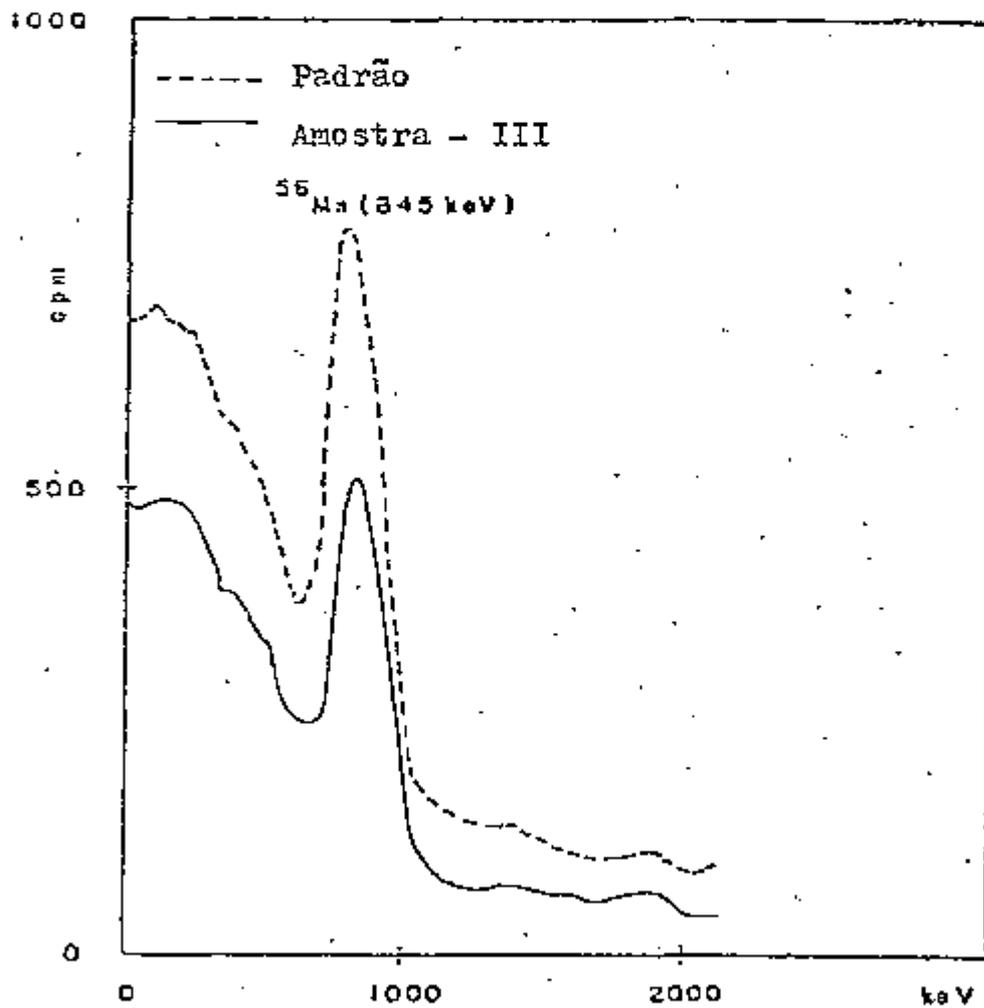
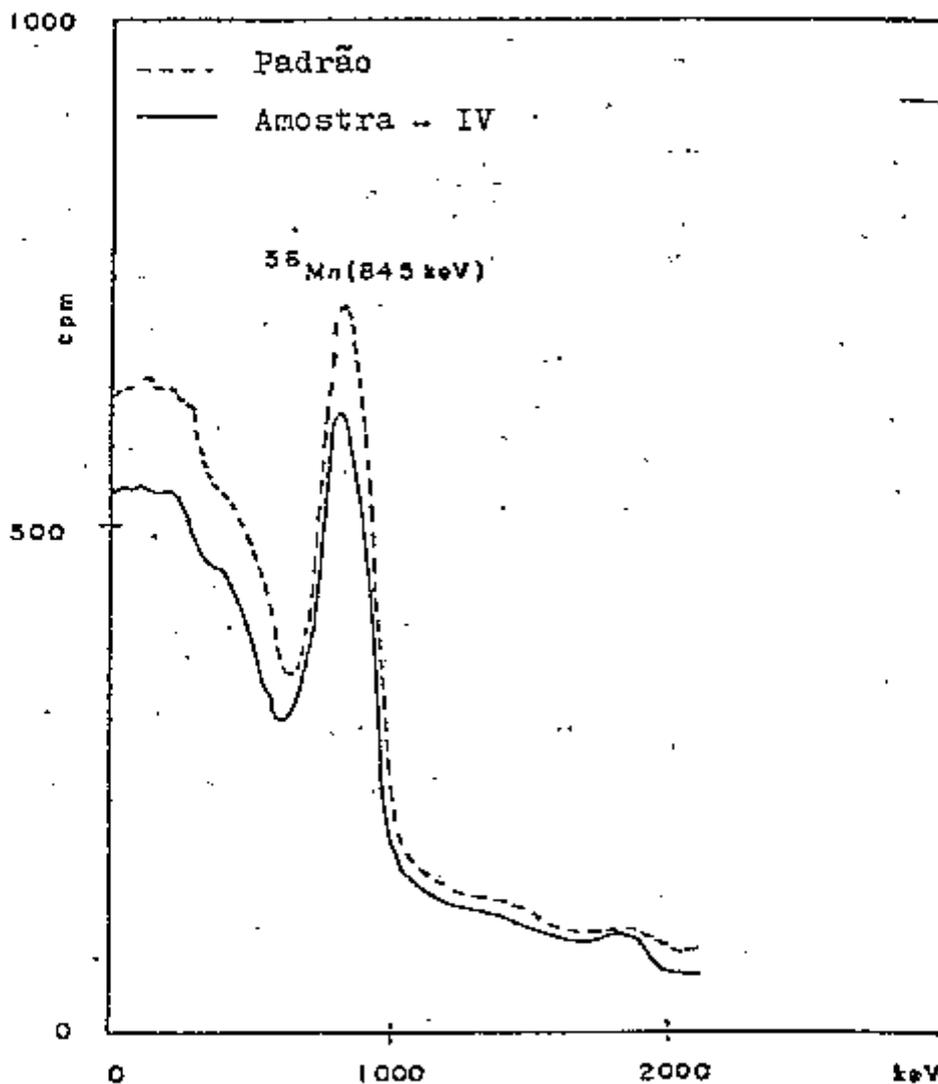


FIGURA III.6

COMPARAÇÃO ENTRE OS ESPECTROS DE RAIOS GAMA
DA AMOSTRA - IV E PADRÃO DE MANGANÊS.



F I G U R A III.7

COMPARAÇÃO ENTRE OS ESPECTROS DE RAIOS GAMA
DA AMOSTRA - V E PADRÃO DE MANGANÊS.

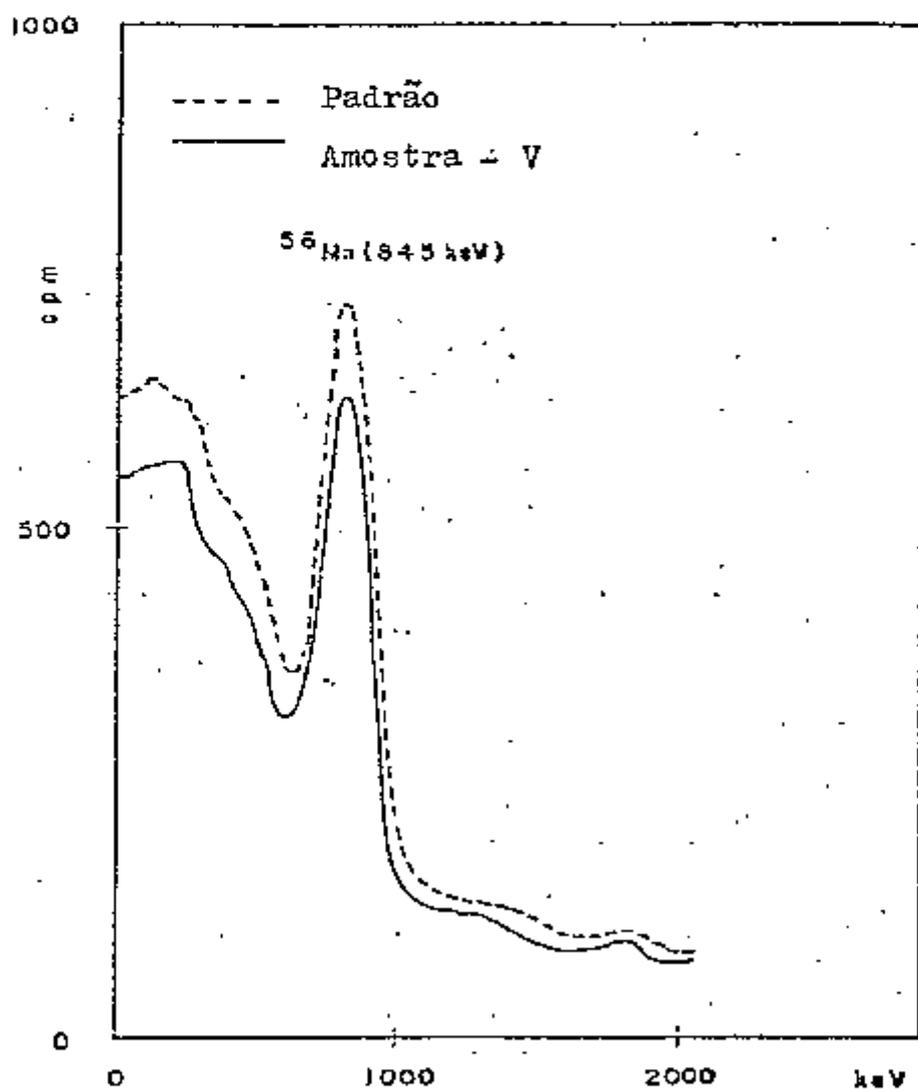


TABELA III.3

RESULTADOS OBTIDOS DA IRRADIAÇÃO DE PADRÕES
DE MANGANÊS, VARIANDO-SE A POSIÇÃO DA FONTE.

Posição	(Contagem total $\pm \sigma_n$)
1	60.212 \pm 246
2	64.015 \pm 253
3	66.129 \pm 257
4	68.878 \pm 262
5	73.305 \pm 271
6	69.423 \pm 264
7	70.165 \pm 265
8	70.610 \pm 266
9	70.160 \pm 265

Contagem total = n

σ_n = desvio padrão = \sqrt{n}

TABELA III.4

DADOS PARA O ESTUDO DA EXATIDÃO DO MÉTODO
E PARA EXAME DE AUTO-ABSORÇÃO DE RAIOS GA-
MA.

PADRÃO		AMOSTRA-I		AMOSTRA-II	
Massa (mg)	$\text{cpm} \pm \sigma_n^*$	Massa (mg)	$\text{cpm} \pm \sigma_n^*$	Massa (mg)	$\text{cpm} \pm \sigma_n^*$
15,35	1852 \pm 14	30,95	1670 \pm 13	30,05	3603 \pm 19
25,95	3170 \pm 18	43,40	2473 \pm 16	42,25	4935 \pm 22
46,30	5757 \pm 24	50,50	2841 \pm 17	46,55	5506 \pm 24
57,50	7178 \pm 27	58,55	3358 \pm 18	61,45	7152 \pm 27
76,00	9517 \pm 31	72,20	3993 \pm 20	102,90	12404 \pm 35
128,50	15869 \pm 40	81,45	4501 \pm 21	122,90	13913 \pm 36
-	-	87,90	5008 \pm 22	149,45	17623 \pm 42
-	-	107,30	6027 \pm 25	-	-
-	-	115,00	6208 \pm 25	-	-
-	-	126,25	6745 \pm 26	-	-

$$(*) \sigma_n = \frac{\sqrt{n}}{t}$$

n = contagem total

t = tempo de contagem

cpm = contagem por minuto

TABELA III.4

DADOS PARA O ESTUDO DA EXATIDÃO DO MÉTODO
E PARA EXAME DE AUTO-ABSORÇÃO DE RAIOS GA-
MA. (continuação)

AMOSTRA-III		AMOSTRA-IV		AMOSTRA-V	
Massa (mg)	cpm $\pm\sigma_n$ (*)	Massa (mg)	cpm $\pm\sigma_n$ (*)	Massa (mg)	cpm $\pm\sigma_n$ (*)
51,70	1882 \pm 14	18,95	1593 \pm 12	33,40	3990 \pm 20
88,80	3098 \pm 18	34,55	3014 \pm 17	38,35	4615 \pm 22
107,55	3879 \pm 20	62,75	5035 \pm 22	57,30	6860 \pm 26
115,05	4106 \pm 20	100,90	8043 \pm 28	68,75	8240 \pm 29
141,15	4843 \pm 22	142,45	11130 \pm 33	76,00	9154 \pm 30
186,15	6546 \pm 26	152,35	12301 \pm 35	88,35	10680 \pm 33
220,20	7761 \pm 28	175,00	13935 \pm 37	100,80	12168 \pm 35
263,80	9186 \pm 30	-	-	103,65	12560 \pm 35
272,20	9601 \pm 31	-	-	-	-

$$(*) \sigma_n = \frac{\sqrt{n}}{t}$$

n = contagem total

t = tempo de contagem

cpm = contagem por minuto

tram-se na Tabela III.5, na qual estão também os respectivos desvios padrões bem como os coeficientes de correlação que, sendo muito próximos da unidade, indicam uma boa linearidade entre a e m no intervalo de massa considerado. Nas Figuras III.8, III.9 e III.10 encontram-se as representações gráficas da variação da atividade em função da variação da massa, usando os dados encontrados na Tabela III.4.

O teste t de Student^{27,p.175}, aplicado aos valores para a ordenada na origem indicou que esses valores podem ser considerados iguais a zero, num nível de confiança de 90% com excessão feita aos dados da Amostra-V cujo valor da ordenada na origem só é considerado igual a zero num nível de confiança de 96% (Tabela III.6).

III.7 - ESTUDO DAS INTERFERÊNCIAS

As presenças de ferro e cobalto em amostras que são analisadas por ativação com nêutrons, podem causar sérios erros na determinação de manganês em virtude da formação do manganês-56 pelas reações $^{56}\text{Fe}(n,p)^{56}\text{Mn}$ e $^{59}\text{Co}(n,\alpha)^{56}\text{Mn}$, as quais apresentam uma secção de choque da ordem de 0,87 mb e 0,25 mb, respectivamente.

Para o estudo dessas interferências, usou-se padrões de ferro (Fe_2O_3) e cobalto (CoO), de aproximadamente 100 mg que foram irradiados durante 20 minutos.

Para verificar-se a eventual formação do Mn-56 pelas reações (n,p) e (n,α) , esses padrões foram acondicionados em cápsulas cilíndricas de cádmio com 0,8 cm de diâmetro interno, 2 cm de altura e aproximadamente 1,0 mm de espessura, sendo as duas extremidades das cápsulas fechadas, antes da irradiação, com tampas também de cádmio de mesma espessura. A finalidade destas cápsulas é de cortar o fluxo de nêutrons térmicos, deixando passar somente os nêutrons epitérmicos e rápidos, responsáveis pelas reações acima.

TABELA III.5

PARÂMETROS DAS RETAS : $a = Bm + A$, RE-
LATIVAS ÀS AMOSTRAS E PADRÃO.

	PADRÃO	AMOSTRA-I	AMOSTRA-II	AMOSTRA-III	AMOSTRA-IV	AMOSTRA-V
A	-5,520	147,686	66,027	54,764	159,395	-82,838
σ_A	54,175	97,394	219,805	57,450	110,483	30,916
B	124,074	53,455	116,414	34,847	78,514	121,655
σ_B	0,784	1,172	2,443	0,324	0,976	0,412
C	0,999	0,998	0,999	0,999	0,999	0,999

A = Ordenada na origem

σ_A = Desvio padrão da ordenada na origem

B = Coeficiente angular

σ_B = Desvio padrão do coeficiente angular

C = Coeficiente de correlação

FIGURA III.8

GRÁFICO DA ATIVIDADE (cpm) EM FUNÇÃO DA VARIÇÃO DE MASSA, USANDO OS DADOS OBTIDOS PARA O PADRÃO E AMOSTRA-I, RELACIONADOS NA TABELA III.4.

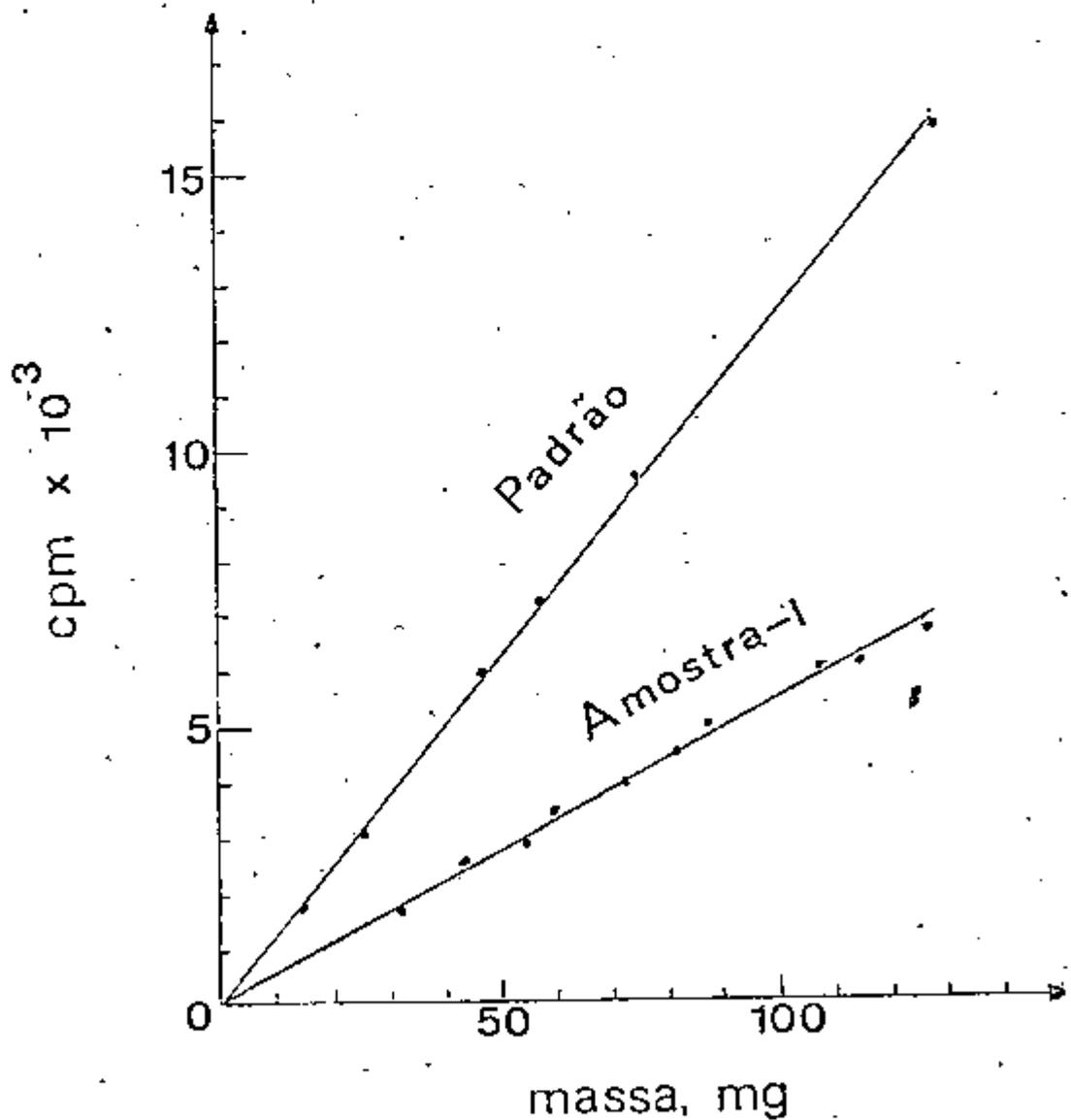


GRÁFICO DA ATIVIDADE (cpm). EM FUNÇÃO DA VARIAÇÃO
DE MASSA, USANDO OS DADOS OBTIDOS PARA A AMOSTRA
II E AMOSTRA-III, RELACIONADOS NA TABELA III.4 .

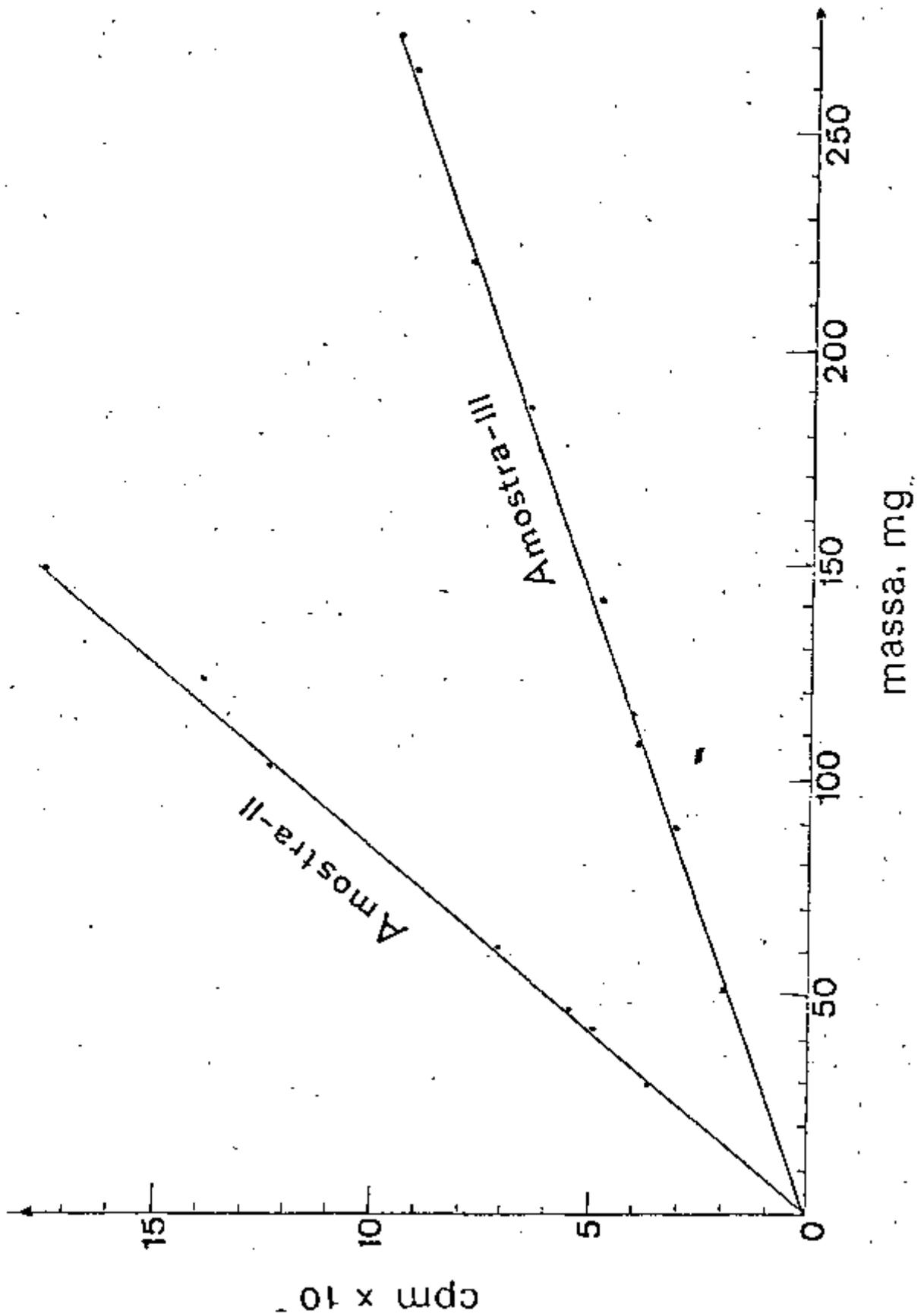


FIGURA III.10

GRÁFICO DA ATIVIDADE (cpm) EM FUNÇÃO DA VARIACÃO
DE MASSA, USANDO OS DADOS OBTIDOS PARA A AMOSTRA
IV E AMOSTRA-V, RELACIONADOS NA TABELA III.4 .

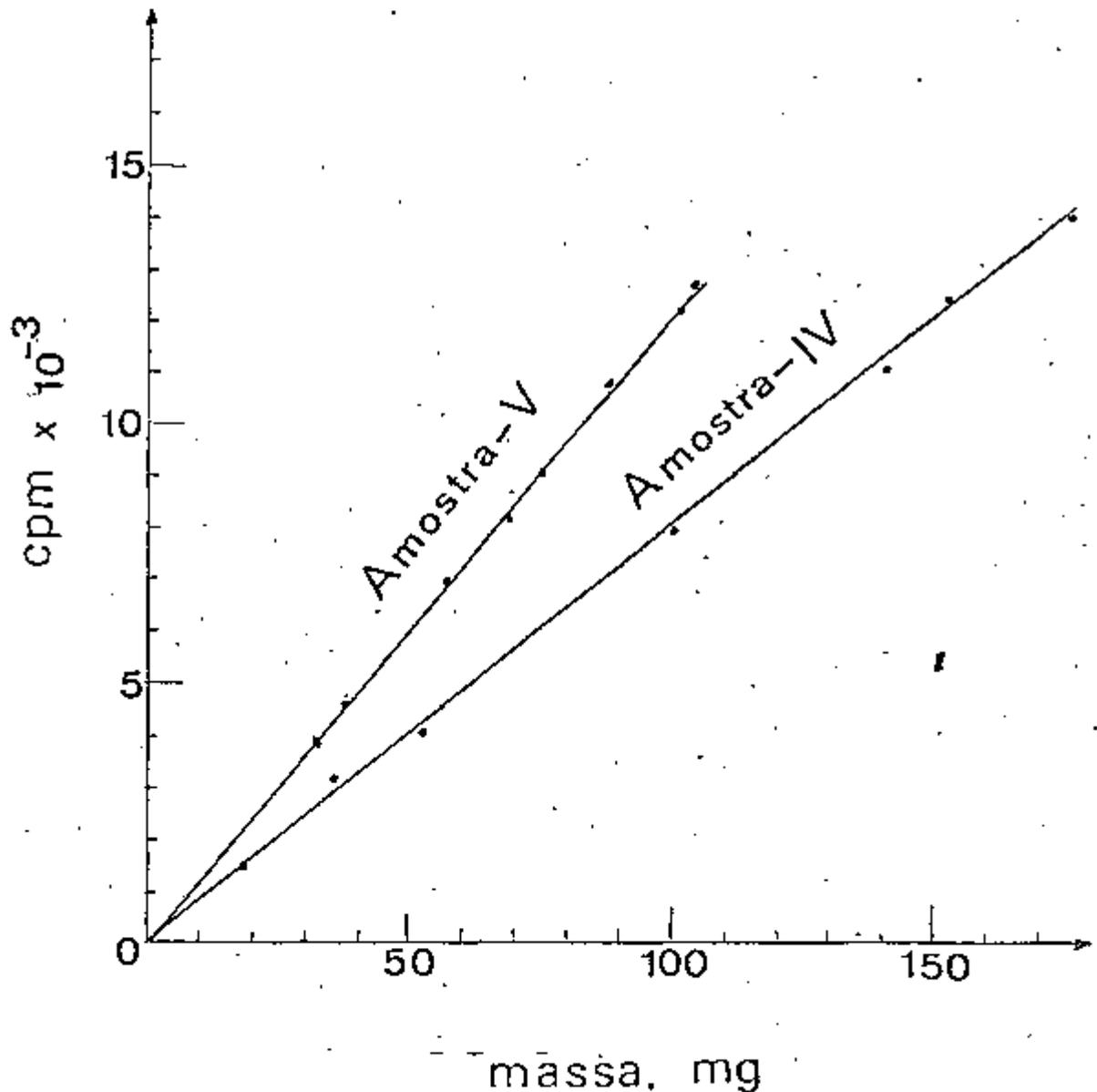


TABELA III.6

RESULTADOS DO TESTE DE STUDENT APLICADO AOS VALORES DA TABELA III.4, PARA A ORDENADA NA ORIGEM.

	PADRÃO	AMOSTRA-I	AMOSTRA-II	AMOSTRA-III	AMOSTRA-IV	AMOSTRA-V
Grau de Liberdade	4	8	5	7	5	6
$t_{\text{calculado}}$	0,10	1,52	0,30	0,95	1,44	2,68
t_{tabelado} (nível de conf. 90%)	2,13	1,86	2,02	1,90	2,02	1,94

Graus de liberdade = $n - 2$

n = número de determinações

$t_{\text{calculado}} = \frac{\text{ordenada na origem}}{\text{desvio padrão na ordenada na origem}}$

Após irradiação durante 20 minutos e 15 minutos de decaimento, os padrões irradiados foram contados, por 10 minutos, em espectrômetro de raios gama de 400 canais, TMC, modelo 406-2, acoplado a um cristal de cintilação de NaI(Tl) tipo poço de 7,5 cm x 7,5 cm. Não se constatou o aparecimento do pico de 845 keV referente ao Mn-56, tanto para padrões de ferro como de cobalto. Mesmo assim integrou-se os dados da região correspondente à energia onde deveria ocorrer esse pico, caso houvesse formação do manganes-56, região esta que correspondeu a 22 canais. Para o cálculo da atividade existente nessa região somou-se as contagens dos 22 canais e subtraiu-se da atividade obtida o "background" correspondente. Pelos resultados das atividades obtidas, 9 e 8 cpm, respectivamente para padrões de ferro e cobalto, conclui-se que a quantidade de Mn-56 produzida pelas referidas reações é muito pequena e desprezível, isto porque as atividades obtidas podem ser englobadas no erro devido à taxa de contagens das amostras analisadas, que em média foi de ± 30 cpm.

III.8 - FLUXO DE NÊUTRONS

A determinação do fluxo de nêutrons rápidos e intermediários, bem como a razão de cádmio para o ouro, da fonte de califórnio-252 usada neste trabalho foi feita pelo Laboratório de Medidas Nucleares da Coordenação de Física Nuclear do Instituto de Energia Atômica.

O fluxo térmico foi calculado pelo método de ativação do ouro-197, através da reação $^{197}\text{Au}(n,\gamma)^{198}\text{Au}$, assumindo-se um espectro Maxwelliano de nêutrons. O valor obtido foi de $2,10 \times 10^6$ n/cm².s, com um erro sistemático igual a 0,5%.

O fluxo intermediário, que inclui o fluxo de nêutrons de energias compreendidas entre 1 e 100 keV, foi calculado pelo método de ativação do ouro-197, assumindo-se um espectro de nêutrons 1/E acima de 0,5 eV. O valor obtido para este fluxo foi de $1,80 \times 10^5$ n/cm².s, com um erro sistemático igual a 0,5%.

A razão de cádmio para o ouro foi de 10,8.

Essas determinações foram feitas em agosto de 1974 e são relativas à posição nº 5 da fonte.

III.9 - SENSIBILIDADE DO MÉTODO

Para a determinação da sensibilidade do método, foi adotado o critério estabelecido por Currie²⁸. O citado autor obteve a seguinte fórmula para o cálculo do limite de sensibilidade (L_Q) para determinações quantitativas :

$$L_Q = 50 \left\{ 1 + \left[1 + \frac{u_B}{12,5} \right]^{1/2} \right\} \quad \text{III.1}$$

onde u_B é o valor da atividade de fundo do aparelho.

O valor médio achado para u_B , em vinte determinações, foi de 1723 contagens, contadas durante 10 minutos e mantendo-se o nível de base do aparelho em 700 keV e na forma integral. Substituindo este valor, na fórmula proposta por Currie, obtêm-se :

$$L_Q = 640 \text{ contagens}$$

Nas condições de irradiação, estabelecidas para este trabalho, ou seja, fluxo térmico de 10^6 n/cm².s, a atividade obtida para padrões contendo 37,92 mg de manganês, em irradiações de 20 minutos, contagens de 10 minutos, iniciadas 15 minutos após a irradiação, foi de 60.824 contagens. Esse valor corresponde à atividade obtida na forma integral a partir de 700 keV, depois de descontado o "background".

Comparando-se esse valor com a atividade para L_Q , acha-se que a massa limite de manganês para determinações quantitativas, por esse método, nas condições mencionadas é de 399 µg.

III.10 - CÁLCULOS

A atividade do manganês-56 nas amostras e padrões foi determinada acumulando as contagens durante 10 minutos a partir do nível de base de 700 keV e subtraindo a contagem de fundo correspondente ("background"), obtida também em contagem de 10 minutos.

A atividade produzida em uma irradiação é dada por :

$$A_i = N_i \sigma_i \phi \left[1 - e^{-0,693 t/T_{1/2}} \right] \quad \text{III.2}$$

onde :

A_i = atividade induzida no isótopo i ao final da irradiação.

N_i = número de átomos do isótopo i na amostra.

σ_i = seção de choque para a captura de nêutrons pelo isótopo i, em cm^2 .

ϕ = fluxo de nêutrons, em $\text{cm}^{-2} \cdot \text{s}^{-1}$.

t = tempo de irradiação.

$T_{1/2}$ = meia-vida do radioisótopo produzido.

A massa de um elemento presente na amostra é determinada normalmente utilizando o método comparativo, que consiste em irradiar a amostra e o padrão do elemento em análise, nas mesmas condições. Assim, o fluxo de nêutrons, o tempo de irradiação e a seção de choque são os mesmos tanto para a amostra como para o padrão, e equação III.2 se transforma em :

$$A_a/A_p = m_a/m_p \quad \text{III.3}$$

onde :

A_a = atividade da amostra
 A_p = atividade do padrão
 m_a = massa da amostra
 m_p = massa do padrão

A comparação das atividades é feita com os valores das contagens para o mesmo tempo de decaimento da amostra e padrão. Assim sendo, todas as atividades achadas foram calculadas para o tempo zero de decaimento, ou seja, atividade do manganês-56 imediatamente após a irradiação. Para esses cálculos aplicou-se a fórmula :

$$A = A_0 e^{-\lambda t} \quad \therefore \quad A_0 = A/e^{-\lambda t} \quad \text{III.4}$$

onde :

A_0 = atividade no tempo zero de decaimento
 A = atividade no tempo t
 λ = constante de desintegração do manganês-56
 t = tempo decorrido entre o fim da irradiação e o início da contagem

III.11 - RESULTADOS

Os resultados obtidos das análises de quatro diferentes minérios de manganês, com diferentes granulometrias e uma amostra de "Blending" estão sumariados nas Tabelas III.7, III.8, III.9, III.10 e III.11.

Para constatar a hipótese de que existe homogeneidade entre o conjunto de resultados obtidos para cada granulometria de cada uma das amostras, aplicou-se a distribuição do erro relativo (distribuição-r)²⁷, cuja expressão é a seguinte :

$$r_i = \frac{(x_i - \bar{x})}{s_x \sqrt{(n-1)/n}} \quad \text{III.5}$$

TABELA III.7

RESULTADOS DA DETERMINAÇÃO DE MANGANÊS NA AMOSTRA-I.

Determinação nº	Percentagem de Manganês	
	Granulometria	
	60 a 80 mesh	> 80 mesh
1	31,92	30,13
2	31,08	31,23
3	31,09	32,26
4	34,02	31,15
5	30,76	29,80
6	29,28	30,23
7	31,37	30,60
8	32,46	32,34
9	32,94	33,59
10	31,26	31,02
Média	31,62	31,24
Desvio Pa- drão	1,30	1,18

Quantidade média de massa analisada: 122,82 mg

TABELA III.8

RESULTADOS DA DETERMINAÇÃO DE MANGANÉS NA AMOSTRA-II.

Determinação nº	% de Mn
1	38,87
2	37,34
3	38,02
4	38,35
5	38,29
6	36,88
7	39,62
8	38,85
9	38,97
Média	38,35
Desvio Padrão	0,85

Quantidade média de massa analisada : 101,33 mg

TABELA III.9

RESULTADOS DA DETERMINAÇÃO DE MANGANÊS NA AMOSTRA-III.

Determinação nº	Porcentagem de Manganês	
	Granulometria	
	60 a 80 mesh	> 80 mesh
1	10,88	10,08
2	9,70	10,26
3	9,92	9,79
4	9,65	10,00
5	10,95	9,68
6	9,40	9,42
7	10,66	9,45
8	10,56	10,12
9	10,51	10,15
10	9,53	9,04
Média	10,18	9,80
Desvio Pa- drão	0,59	0,40

Quantidade média de massa analisada : 254,10 mg

T A B E L A III.10

RESULTADOS DA DETERMINAÇÃO DE MANGANÊS NA AMOSTRA-IV.

Determinação nº	Porcentagem de Manganês	
	Granulometria	
	60 a 80 mesh	> 80 mesh
1	47,63	44,84
2	47,08	47,14
3	47,17	48,30
4	47,84	46,80
5	46,77	47,69
6	48,67	46,62
7	46,48	47,49
8	-	46,51
9	-	44,58
10	-	45,45
Média	47,38	46,54
Desvio Pa- drão	0,68	1,23

Quantidade média da massa analisada : 92,35 mg

TABELA III.11

RESULTADOS DA DETERMINAÇÃO DE MANGANÊS NA AMOSTRA-V.

Determinação nº	Porcentagem de Manganês	
	Granulometria	
	60 a 80 mesh	> 80 mesh
1	54,57	55,69
2	53,56	52,09
3	55,41	54,41
4	54,69	55,85
5	55,55	55,26
6	54,31	52,00
7	54,90	54,04
8	54,06	53,02
9	54,56	53,90
10	54,28	53,91
Média	54,59	54,02
Desvio Pa- drão	0,60	1,36

Quantidade média de massa analisada : 102,34 mg

onde :

- r_i = erro relativo correspondente à i ésima determinação
 x_i = valor da i ésima determinação
 \bar{x} = média dos resultados
 s_x = desvio padrão
 n = número de determinações

Como os resultados obtidos para $r_{\max.}$ e $r_{\min.}$ calculado, (erros relativos correspondentes respectivamente ao maior e menor valor de cada conjunto de determinação), são menores que os valores de $r_{\max.}$ e $r_{\min.}$ tabelados, conclui-se que, para um nível de confiança de 95%, há homogeneidade entre os resultados (Tabela III.12).

Para constatar se houve ou não diferença significativa entre as médias dos resultados para as duas granulometrias de cada amostra, aplicou-se o teste t de Student^{27, p.100} para o caso em que as variâncias não diferem significativamente uma da outra. Quando essa condição é satisfeita, a média das variâncias é dada pela expressão :

$$s^2 = \frac{(n_1 - 1)s_x^2 + (n_2 - 1)s_y^2}{n_1 + n_2 - 2} \quad \text{III.6}$$

e o valor de t calculado será :

$$t = \frac{\bar{x} - \bar{y}}{s^2} \sqrt{\frac{n_1 \cdot n_2}{n_1 + n_2}} \quad \text{III.7}$$

O valor de t tabelado é verificado para $f = n_1 + n_2 - 2$ graus de liberdade - a um nível de confiança de 95%. Sendo o valor t calculado menor que o valor de t tabelado concluiu-se que, nesse nível de confiança, os resultados inde

TABELA III.12

RESULTADOS DA DISTRIBUIÇÃO DE r APLICADOS AOS VALORES
 DAS TABELAS III.7, III.8, III.9, III.10 e III.11.

	AMOSTRA-I		AMOSTRA-II	AMOSTRA-III		AMOSTRA-IV		AMOSTRA-V	
	Granulometria		Granulometria	Granulometria		Granulometria		Granulometria	
	60-80 mesh	>80 mesh	>200 mesh	60-80mesh	>80mesh	60-80mesh	>80mesh	60-80mesh	>80mesh
$r_{\text{máximo}}$	1,943	2,096	1,586	1,364	1,223	2,043	1,499	1,689	1,416
$r_{\text{mínimo}}$	1,895	1,285	1,835	1,382	2,020	1,425	1,673	1,813	1,564
r_{tabelado} n.c. = 95%	2,294	2,294	2,237	2,294	2,294	2,093	2,294	2,294	2,294
graus de liberdade	8	8	7	8	8	5	8	8	8

CAP. III

pendem da granulometria.

Somente a Amostra-V não satisfaz a condição imposta para aplicação do teste, ou seja, não significativa diferença entre as variâncias. Para a referida amostra foi usado o teste aplicado por Nalimov^{27, p.101} para os casos em que as variâncias são estatisticamente diferentes. O valor de t calculado é dado pela expressão :

$$t = \frac{(\bar{x} - \bar{y}) \sqrt{n}}{s_x^2 + s_y^2} \quad \text{III.8}$$

$$\text{para } n_1 = n_2 = n \text{ e } f = \frac{(n-1)}{c^2(1-c)^2} \quad \text{III.9}$$

onde :

$$c = \frac{s_x^2}{s_x^2 + s_y^2} \quad \text{III.10}$$

O valor de t calculado para este caso específico foi também menor que o t tabelado, concluindo-se portanto que, no nível de confiança de 95%, não existe diferença significativa entre as duas médias obtidas.

Nos casos em que a hipótese da nulidade (média dos resultados do conjunto x igual a média dos resultados do conjunto y) não seja rejeitada para estimar os parâmetros de uma população, ambos sistemas de observações podem ser usados, considerando $n_1(x) + n_2(y)$ como uma amostra de uma mesma população. Neste caso a média e a variância são definidos pelas expressões :

$$\bar{x} = \frac{n_1 \cdot \bar{x} + n_2 \cdot \bar{y}}{n_1 + n_2} \quad \text{III.11}$$

$$s_D^2 = \frac{(n_1 - 1)s_x^2 + (n_2 - 1)s_y^2}{n_1 + n_2 - 1} \quad \text{III.12}$$

Como a hipótese da nulidade não foi rejeitada nos casos das amostras analisadas com diferentes granulometrias, calculou-se uma nova média e um novo desvio padrão pelas equações III.11 e III.12, cujos resultados se encontram na Tabela III.13.

III.12 - ANÁLISE QUÍMICA VIA ÚMIDA

Com a finalidade de confrontar resultados, a Amostra-V foi também analisada pelo método químico, via úmida, do bismutato de sódio, Hillebrand². Este método se baseia na oxidação do Mn(II) a ácido permangânico por ação do bismutato de sódio e posterior redução desse ácido com sulfato ferroso amoniacal, em excesso. A titulação do excesso do agente redutor é feita com solução padronizada de permanganato de potássio.

REAGENTES

- solução de KMnO_4 0,1N
- solução de HNO_3 $d = 1,135$
- solução de HNO_3 a 3%
- bismutato de sódio
- ácido sulfuroso, solução saturada
- água oxigenada a 30 volumes
- solução de sulfato ferroso amoniacal 0,1N.

Todas as drogas usadas foram de grau analítico.

MÉTODO

Após moagem e enquadramento pesou-se 0,5 g da amostra colocando-a em contato com 50 ml de ácido nítrico ($d=1,135$) e 5 ml de água oxigenada a 30 volumes. A mistura foi aquecida à ebulição até completa dissolução

TABELA III.13

RESULTADOS DA DETERMINAÇÃO DE MANGANÊS OBTIDOS
 ATRAVÉS DO EMPREGO DAS EQUAÇÕES III.11 e III.12.

	Amostra-I	Amostra-II	Amostra-III	Amostra-IV	Amostra-V
\bar{x}	31,43%	38,35% ^(*)	9,99%	46,89%	54,30%
\bar{s}_o	1,21	0,85 ^(*)	0,49	1,01	1,02
s	3,85%	2,22%	4,90%	2,15%	1,88%

$$\bar{x} = \frac{n_1 \bar{x} + n_2 \bar{y}}{n_1 + n_2}$$

$$\bar{s}_o = \sqrt{\frac{(n_1 - 1) s_x^2 + (n_2 - 1) s_y^2}{n_1 + n_2 - 1}}$$

$$s = \frac{\bar{s}_o \times 100}{\bar{x}} = \text{desvio padrão relativo}$$

(*) Resultados extraídos da Tabela III.8

da amostra. Diluiu-se a solução assim obtida com 50 ml de ácido nítrico ($d=1,135$) adicionando-se também 1 g de bismutato de sódio e gotas de ácido sulfuroso com lento aquecimento até clarificação da solução. Esta operação tem por finalidade destruir qualquer matéria orgânica que porventura exista na amostra. Após atingida a temperatura ambiente, transferiu-se a solução clarificada para balão volumétrico de 250 ml, aferindo-o com ácido nítrico $d=1,135$ e mantido em temperatura de 10 a 15°C. Retirou-se alíquotas de 50 ml acrescentando a estas, 50 ml de água fria (15°C). Quantidade em excesso de bismutato de sódio foi adicionada a cada alíquota (27 g de bismutato para cada grama de manganês), com agitação, por 2 minutos, para favorecer a reação de oxidação. O excesso do agente oxidante foi removido da solução por filtração. A redução do ácido permangânico formado, foi feita com excesso de sulfato ferroso amoniacal, sendo em seguida este excesso titulado com permanganato de potássio padronizado, sendo que 1 ml de $KMnO_4$ 0,1N corresponde a 0,001099 g de manganês.

Ao todo foram feitas sete determinações cujos resultados se encontram na Tabela III.14.

Para comparar os resultados obtidos pelos dois métodos diferentes, foi aplicado o teste t de Student^{29,p.111}. O valor de t é expresso pela relação :

$$t = \frac{\bar{x}_a - \bar{x}_b}{\sqrt{\frac{(n_a + n_b) (n_a s_a^2 + n_b s_b^2)}{n_a \cdot n_b (n_a + n_b - 2)}}} \quad \text{III.13}$$

onde \bar{x}_a e \bar{x}_b são as médias aritméticas dos resultados obtidos pelos dois métodos, s_a e s_b são estimativas dos desvios padrões e n_a e n_b são os números de determinações paralelas efetuadas pelos métodos A e B, respectivamente. O valor assim calculado é então comparado com o t tabelado para $f = n_a + n_b - 2$ graus de liberdade. Na Tabela III.15 encontram-se os dados da comparação dos dois métodos, empregando-se a equação III.13. Como o va

TABELA III.14

ANÁLISE DA AMOSTRA-V PELO MÉTODO DO BISMUTATO.

Determinação nº	% de Mn
1	54,82
2	53,44
3	54,22
4	51,78
5	53,01
6	52,16
7	55,42
Média	53,55
Desvio Pa- drão	1,35

TABELA III.15

COMPARAÇÃO DOS RESULTADOS DA DETERMINAÇÃO DE Mn NA AMOSTRA-V OBTIDOS PELOS MÉTODOS DO BISMUTATO E ANÁLISE POR ATIVAÇÃO, USANDO A EQUAÇÃO III.13.

Bismutato (A)	$\bar{x}_a = 53,55\%$
A. Ativação (B)	$\bar{x}_b = 54,02\%$
Desvio Padrão de A	$s_a = 1,35$
Desvio Padrão de B	$s_b = 1,36$
Nº de Det. de <u>A</u>	$n_a = 7(\text{sete})$
Nº de Det. de <u>B</u>	$n_b = 10(\text{dez})$
	$t_{\text{cal}} = 0,660$
	$t_{\text{tab}} = 0,691$ (50%)

lor de t calculado é menor que o valor de t tabelado conclui-se que, no nível de confiança de 50%, não existe diferença significativa entre os resultados obtidos pelos dois métodos, sendo ambos igualmente exatos e precisos.

CAPÍTULO IV

DISCUSSÃO e CONCLUSÕES

O método proposto neste trabalho para a determinação de manganês em minérios e "blending" pode ser considerado como de boa sensibilidade tendo em vista o valor obtido para o limite de determinação quantitativa, 399 µg, calculado de acordo com o critério de Currie apresentado no Capítulo III.

Conforme Currie, a sensibilidade de um método analítico está na dependência direta do tipo de amostra à qual o método é aplicado. De um modo geral, a presença de interferências ocasiona uma considerável diminuição da sensibilidade. Este fato exige, portanto, que seja determinada, para cada amostra em particular, uma sensibilidade, considerando que diferentes amostras apresentam diferentes interferências.

Passaglia³⁰, examina as seguintes relações, propostas por Currie, que permitem considerar as interferências das amostras analisadas:

Limite de Decisão : limite no qual se pode decidir se um determinado sinal observado indica ou não a detecção do procurado. Esse limite é calculado para medidas radicativas pela expressão :

$$L_C = 2,33 \sqrt{u_B} \quad \text{IV.1}$$

onde u_B é a contagem de fundo ou amostra em branco.

O branco, u_B , é definido por Currie como sendo o sinal obtido no aparelho quando se analisa uma amostra idêntica à amostra problema com exceção de que o elemento a ser analisado não esteja presente na amostra.

considerada como branco.

Limite de Detecção : estabelece o nível segundo o qual se pode confiar que um determinado método analítico conduzirá à detecção. Este limite se aplica na elaboração de um método analítico, a "priori" e é dado pela expressão :

$$L_D = 2,71 + 4,65 \sqrt{u_B} \quad \text{IV.2}$$

Limite de Determinação ou Sensibilidade : indica o nível no qual a precisão da medida será satisfatória para determinações quantitativas. Este limite é dado pela expressão :

$$L_Q = 50 + \left\{ 1 + \left[1 + \frac{u_B}{12,5} \right]^{1/2} \right\} \quad \text{IV.3}$$

Sob o ponto de vista prático é impossível dispor de uma amostra em branco para a determinação de u_B exigido para o cálculo dos citados limites. Levando-se em conta os resultados obtidos neste trabalho relativos à presença ou não de interferências, como produção do manganês-56 pelas reações nucleares $^{56}\text{Fe}(n,p)^{56}\text{Mn}$ e $^{59}\text{Co}(n,\alpha)^{56}\text{Mn}$, exame dos espectros das amostras e acompanhamento da meia-vida, chegou-se à conclusão que o u_B pode ser considerado como sendo devido única e exclusivamente à radiação de fundo do equipamento de contagem.

Assim sendo obteve-se os seguintes resultados para L_C, L_D e L_Q .

$$\begin{aligned} L_C &= 98 \text{ contagens} \\ L_D &= 196 \text{ contagens} \\ L_Q &= 640 \text{ contagens} \end{aligned}$$

Sendo 122 μg a massa mínima detectável e 399 μg de manganês a massa mínima determinável quantitativamente.

Como não dispúnhamos de material com teor conhecido em manganês para avaliar a exatidão do método, lançou-se mão dos dados obtidos da

Tabela III.4 que nos fornece os parâmetros das retas $a = Bm + A$, relativamente às amostras e padrão. Foi verificado, no estudo das curvas de auto-absorção gama, que dentro do intervalo de massas de 15 a 128 mg de padrões de manganês e de 30 a 272 mg de amostras, os pontos correspondentes determinam uma reta, ou seja, há uma perfeita proporcionalidade entre a massa analisada e a respectiva atividade obtida, para as mesmas condições de irradiação e contagem. A boa exatidão do método é comprovada pelos resultados do teste t de Student aplicado com relação ao valor da intersecção das retas com a ordenada na origem. Este estudo mostrou que o método não está sujeito a erro sistemático e aditivo pois dentro de um nível de confiança de 90% para o padrão e amostras I, II, III e IV e a um nível de confiança de 96% para a amostra V, os valores obtidos para a ordenada na origem podem ser considerados iguais a zero. As imprecisões observadas na determinação das retas se deve a uma somatória de erros inerentes a cada determinação, como sejam:

- erro na pesagem das amostras, erro esse geralmente pequeno e desprezível, podendo ser considerado acidental.
- erro nas determinações das atividades, porque o fenômeno radioativo obedece à distribuição de Poisson. Este erro pode ser minimizado aumentando-se o tempo de irradiação e contagem.
- erro na reprodutibilidade da posição de irradiação.
- erro no tempo de irradiação, porque o controle desse tempo não foi feito automaticamente.

A linearidade dos pontos obtidos foi comprovada matematicamente através dos valores dos coeficientes de correlação que, sendo muito próximos da unidade, indicam uma boa linearidade entre a atividade e a massa irradiada. Isso nos permite inferir que não ocorre atenuação de raios gama e sombreamento de nêutrons por ocasião das irradiações.

A não interferência de outras atividades por ocasião da contagem das amostras foi comprovada pelo decaimento radioativo do material irra-

diado. O gráfico do logaritmo da atividade em função do tempo de decaimento nos fornece uma linha reta cujo coeficiente angular permite calcular a meia-vida correspondente. Os valores encontrados na Tabela III.2. demonstram que a atividade medida, nas condições de contagem estabelecida neste trabalho, correspondem à radiação emitida pelo manganês-56, conforme confronto desses valores com o valor da meia-vida tabelada na literatura.

Os testes efetuados para a verificação da influência da granulometria das amostras, nos resultados das análises, demonstram que o tamanho das partículas não influe na absorção de raios gama emitidos pelo manganês-56.

O estudo experimental das reações interferentes permite afirmar que a quantidade de Mn-56 produzida pelas reações $^{56}\text{Fe}(n,p)^{56}\text{Mn}$ e $^{59}\text{Co}(n,\alpha)^{56}\text{Mn}$ é muito pequena e desprezível, isto porque as atividades obtidas, 9 e 8 cpm, podem ser englobadas no erro devido à taxa de contagens das amostras analisadas, que em média foi de ± 30 cpm. Tal fato era de esperar em virtude do baixo fluxo de nêutrons rápidos responsável por tais reações, bem como deve-se notar que as seções de choque, para as reações acima, são baixas.

Interferências relativas a isótopos de meia-vida longa, como ^{59}Fe foram eliminadas pela escolha de um tempo de irradiação relativamente curto, 20 minutos.

Na composição química típica de uma amostra de pitolusita⁷ podem ser encontrados os elementos ferro, carbono, silício, alumínio, fósforo, enxofre, cálcio e magnésio. Um espectro gama de uma amostra de pitolusita, analisado por Alaerts et al.⁷, mostrou somente um pequeno pico de 1,779 MeV do ^{28}Al . Nas monitorações dos espectros das amostras analisadas na presente dissertação, feitas 15 minutos após a irradiação, não se constatou o aparecimento do referido pico, isto porque em virtude da meia-vida curta do ^{28}Al , 2,3 minutos, a atividade referente ao pico correspondente já não se faz notar após o citado tempo de decaimento. O mesmo raciocínio deve ser feito relativamente ao ^{52}V produzido pela reação $^{55}\text{Mn}(n,\alpha)^{52}\text{V}$, que tem uma meia-vida de 3,75 minutos.

Perkins et al.³¹ irradiaram 405 g de pirolusita numa fonte de califórnio-252 com fluxo térmico de 2×10^6 n/cm².s, durante 300 segundos - e analisaram o espectro gama em detetor de Ge-Li, após 10 segundos de decaimento e por 200 segundos de contagem tendo sido constatada somente a presença de picos de raios gama relativos ao Mn-56.

Pelos valores dos desvios padrões relativos apresentados na Tabela III.13, podemos avaliar a precisão das análises que caracteriza a reprodutibilidade do método. Observa-se que o maior desvio foi de 4,90% e o menor de 1,88% , sendo portanto boa a precisão da medida.

O confronto entre o método desenvolvido por Alaerts et al.⁷ e o método proposto neste trabalho, para a determinação de manganês, permite estabelecer as seguintes ilações :

- Ambos os métodos são não destrutivos e de boa exatidão sendo, porém, o método de Alaerts mais preciso (0,12), muito provavelmente devido à grande quantidade de amostra irradiada (3000 a 4000 mg) comparativamente com as amostras de 100 a 250 mg usadas neste trabalho, dando como consequência uma maior atividade ($3,5 \times 10^5$ cont./1000 s) comparativamente à atividade obtida no presente trabalho (6×10^4 cont./600 s). Por outro lado, com o uso de grandes massas, como é o caso do método de Alaerts et al., ocorrem problemas de auto-absorção de raios gama e sombreamento de nêutrons havendo necessidade de uma ulterior correção da atividade obtida. Tal fato não acontece no método desenvolvido neste trabalho, sendo que, no intervalo de massas utilizadas , não se observaram os referidos problemas para o material estudado.

- O tempo gasto para efetuar uma análise pelo método de Alaerts é de aproximadamente 60 minutos, e pelo presente método gasta-se 45 minutos. Em ambos os casos não está incluso o tempo necessário para preparação das amostras para a irradiação. Alaerts faz uma diluição prévia das amostras com grafite e essa mistura é então peletizada para posterior irradiação. Em nosso trabalho, após terem sido trituradas, as amostras foram acondicionadas - diretamente em invólucros de polietileno e submetidas à irradiação, sem diluição ou mistura com grafite.

- A irradiação não simultânea de amostra e padrão, como fez Alaerts, pode introduzir o erro de reprodutibilidade de posição de irradiação, caso essa posição não seja fixa e bem definida, fazendo com que o fluxo de nêutrons - incidente sobre a amostra seja diferente do incidente sobre o padrão.
- Sob o ponto de vista de proteção biológica, as fontes de $^{226}\text{Ra-Be}$, como a usada por Alaerts et al. (1 Ci), requerem blindagem adicional relativamente às necessárias a fontes de Cf-252, pois aquelas emitem uma grande intensidade de raios gama sendo imprescindível uma proteção complementar além da indispensável aos nêutrons. A taxa de emissão gama das fontes de califórnio-252 é relativamente pequena, sendo exigida somente proteção para os nêutrons.

Para comprovar o mérito do método estudado, em relação a outro método tradicional de determinação de manganês, a Amostra-V foi analisada - pelo método do bismutato de sódio. Pela análise dos resultados, comprova-se que ambos os métodos apresentam a mesma precisão, não existindo diferença significativa entre as médias obtidas. Por outro lado, a simplicidade do método de ativação com nêutrons de uma fonte de califórnio-252 é notória conforme pode ser evidenciada pelo tempo gasto para efetuar uma análise, 45 minutos, comparativamente ao tempo gasto pelo método do bismutato, aproximadamente 2 horas, onde se efetua dissolução da amostra, pré-oxidação, oxidação, redução e filtração. Além do mais, com esse tipo de fonte, cujo preço oscila em torno de 10 dólares por micrograma de califórnio-252, eliminam-se as dificuldades operacionais inerentes aos métodos químicos, bem como as relacionadas com o uso de reatores nucleares.

Em resumo pode ser dito que o método estudado neste trabalho é simples, rápido e de boa precisão e exatidão, para análises de manganês em minérios e "blending", podendo a sua aplicação ser extensível a outras matrizes, como ligas de ferro-manganês. Para tanto deverá ser sempre feito um estudo prévio das interferências para cada novo tipo de amostra.

O custo e complexidade do equipamento utilizado para a realização das análises por este método não são tão desencorajantes como normalmente se argumenta em relação a métodos nucleares. Procurou-se exatamente uti

lizar um equipamento simples e barato, como um analisador monocanal, um de tector de iodeto de sódio e uma fonte de nêutrons semi-portátil, e não um reator nuclear, de modo que fosse possível executar análises rotineiras em indústrias ou instalações minieras que manuseiam matéria prima com alta con centração de manganês.

A P Ê N D I C E I

DADOS NUCLEARES DE ALGUNS ISÓTOPOS DO MANGANÊS

Isótopo	% de abund. natural	Massa atômica	Meia-Vida	Modos de decaimento	Energia de decaimento (MeV)	Energia das partículas (MeV)	Intens. das partículas %	Energias Gamas (MeV)	Intens. gama	Secção de choque
$^{55}_{25}\text{Mn}$	100	54,9381	-	-	-	-	-	-	-	$13,3^{+0,1b}$
$^{56}_{25}\text{Mn}$	-	-	2,576 h	β^-	3,702	2,84 1,03 0,72 0,30	47 34 18 1	846,78 1810,02 2113,2 2322,6 2657,24 2959,8 3367	100 30 15,3 1,2 0,7 0,4 0,21	-

Fonte : Handbook of Chemistry and Physics. Ed. Robert C. Weast. 52ª edição (1971-1972). Publicado por "The Chemical Rubber Co. 18901 Cranwood Parkway, Cleveland, Ohio, 44128.

PROPRIEDADES NUCLEARES DO CALIFÓRNIO-252

Modo de decaimento	
Emissão alfa	96,9%
Fissão espontânea.....	3,1%
Meia-vida	
Decaimento alfa.....	2,731 [±] 0,007 anos
Fissão espontânea.....	85,5 [±] 0,5 anos
Efetiva.....	2,646 [±] 0,004 anos
Taxa de emissão de nêutrons.....	2,31x10 ¹² n/s.g.
Nêutrons emitidos por fissão.....	3,76
Energia média de nêutrons.....	2,348 MeV
Energia média das partículas alfa...	6,117 MeV
Taxa de emissão gama.....	1,3x10 ¹³ fotons/s.g.
Dose "rate" a um metro no ar	
Neutron.....	2,2x10 ³ rem/h.g
Gama.....	1,6x10 ² rads/h.g
Calor de decaimento	
Decaimento alfa.....	18,8 w/g
Fissão espontânea.....	19,7 w/g
Volume da fonte (excluído espaço vazio para o hélio)	
	1 cm ³ /g

Fonte : Californium 252 Its Use and Market Potential. Savannah River Operations Office. U.S.Atomic Energy Commission, September , 1969.

1. S.F. Abreu - Recursos Minerais do Brasil, 2ª ed. Ed. Edgard Blucher Ltda. Vol. 2, pp. 494-550, São Paulo, 1973.
2. W.F. Hillebrand & G.E.F. Ludell - Applied Inorganic Analysis. 2ª ed. John Wiley & Sons. New York, 1953.
3. G.W. Leddicotte - The Radiochemistry of Manganese. Oak Ridge Laboratory. Tennessee. October, 1960.
4. H. Smith - Estimation of Manganese in Biological Material by Neutron Activation Analysis - Anal. Chem. 34, 190-191 (1962).
5. F.J. Conrad & B.T. Kenna - Neutron Activation Analysis of Manganese in Polysulphide Material - Talanta, 14, 1339-1340 (1967).
6. J.E. Strain & W.S. Lyon - Proceedings of Symposium on Radiochemical Methods of Analysis. I, 245 (1964), Salzburg. Printed by IAEA, Vienna.
7. L. Alaerts, J.P. Beeck & J. Hosta - High Precision Neutron Activation Analysis of Manganese in Ores and Alloys with Aid of Isotopic Neutron Source - J. Radioanal. Chem. 15, 601-613 (1973).
8. M. Worwood & D.M. Taylor - The Simultaneous Determination of Manganese and Copper in Biological Material by Neutron Activation Analysis - Int. J. appl. Isotopes, 19, 753-756 (1968).
9. R.A. Nadkarni & B.C. Halder - N-Benzoyl-N-Phenylhydroxylamine as Substoichiometric Extractant in Neutron Activation Analysis, VI. Determination of Manganese in Steel - Radiochem. Radioanal. Letters. 10, 2, 99-105 (1972).
10. I. Fineman & T. Westermark - Activation Analysis of Manganese in Pulp - Int. J. appl. Radiat. Isotopes 8, 186-191 (1960).
11. M.E.S. Taqueda - Aplicação de um Aparelho Portátil de Fluorescência de Raios X, por Excitação Radioisotópica, em Análise Química de Minérios de Manganês e Ferro - Dissertação de Mestrado. Escola Politécnica da USP, São Paulo, 1975.

12. W.A.Brooksbank, G.W.Leddicotte & J.A.Dean - Neutron Activation Analysis of Aluminum-Base Alloys - Anal.Chem. 30, 1785-1788(1958).
13. W.A.Brooksbank, G.W.Leddicotte & H.A.Nahlman - Analysis for Trace Impurities by Neutron Activation - J.Phys.Chem. 57, 815-819(1953).
14. A.Cardoso & F.W.Lima - Determination of Manganese in Ores by Activation Analysis Using a ^{252}Cf Neutron Source. Transaction of the American Nuclear Society. Conference on Nuclear Power and Applications in Latin American. Supplement Number 2, vol 21, 1975.
15. F.W.Lima - Análise por Ativação e suas Possibilidades nas Ciências Biológicas - Informações IEA nº 11, dezembro, 1968. Instituto de Energia Atômica, São Paulo.
16. S.G.Thompson, K.Street, A.Ghiorso & G.T.Seaborg - The New Element Californium (Atomic Number 98) - Physical Review, vol 80, nº 5 790-796(1950).
17. P.R.Fields - Transplutonium Elements in Thermonuclear Test Debris. Phys.Rev. 102, 180(1956).
18. Californium-252 Its Use and Market Potential. Savannah River Operations Office. U.S.Atomic Energy Commission. September, 1969.
19. V.Spiegel - The Effective Half-Life of Californium-252. Nucl.Sci.Eng., 53, nº 3, pp.326-327, mar, 1974.
20. D.Metta, H.Diamond, R.F.Barnes, J.Milsted, J.Cray, D.J.Henderson & C.M.Stevens - Nuclear Constants of Nine Transplutonium Nuclides. J.Inorg.Nucl.Chem. 27, 33-39(1965).
21. A.De Volpi, & K.G.Porges - ^{252}Cf Half-Life by Neutron Counting. Inorg.Nucl.Chem.Letters 5, 699(1969).

22. J.W.Boldeman - Prompt Neutron Yield from the Spontaneous Fission of Californium-252, Nucl.Sci.Eng. 55, 188-202 (1974).
23. L.E.Glendenin & E.P.Steinberg - Fission Yields in Spontaneous Fission of Cf-252 - J.Inorg.Nuclear Chem. 1, 45-48 (1955).
24. W.E.Nervik - Spontaneous Fission Yields of ^{252}Cf - Physical Review, Vol. 119, n95, 1685-1690 (1960).
25. Subcritical Multiplication of ^{252}Cf Neutrons. Californium-252 Progress, n9 16, December, 7-8 (1973).
26. D.F.Covell - Determination of Gamma-Ray Abundance Directly from the Total Absorption Peak - Analyt. Chem. 31, 1785 (1959).
27. V.V.Nalimov - The Applications of Mathematical Statistics to Chemical Analysis - Addison Wesley Publishing Company Inc. Pergamon Press. Reading, Mass., 1963.
28. L.A.Currie - Limits for Qualitative Detection and Quantitative Determination. Application to Radiochemistry - Analytical Chemistry 40, 586-593 (1968).
29. K.Eckschlager - Errors, Measurement and Results in Chemical Analysis. Van Nostrand Reinhold Co., London - Translation Editor : R.A.Chalmers. Printed in Czechoslovakia, 1969.
30. A.M.Passaglia - Estudo da Determinação de Vanádio em Petróleo e Produtos Relacionados, por Análise por Ativação. Dissertação de Mestrado. Instituto de Química. São Paulo, 1972.
31. R.W.Perkins, L.A.Rancitelli, J.A.Copper & R.E.Brown - Laboratory and Environmental Mineral Analysis Using a Californium-252 Neutron Source - Nuclear Applications and Technology Vol 9, 861-875 (1970).
32. I.M.H.Pagdeu, G.J.Pearson & J.M.Bewers - An Isotope Catalogue for Instrumental Activation Analysis, II - J.Radioanal.Chem., vol 8 373-479 (1971).

A. BAIRRIÓ NUEVO JR.

"CORRELAÇÕES ANGULARES GAMA-GAMA
NOS NÚCLEOS ^{71}Ga e ^{69}Ga "

Dissertação apresentada
ao Instituto de Física
da Universidade de São
Paulo, como parte dos
requisitos para a obtenção
do título de Mestre
em Ciências.



Orientador:
Prof. F. C. Zawislak

A. BAIRRIO NUEVO JR.

"CORRELAÇÕES ANGULARES GAMA-GAMA
NOS NÚCLEOS ^{71}Ga e ^{69}Ga "

Dissertação apresentada
ao Instituto de Física
da Universidade de São
Paulo, como parte dos
requisitos para a obten
ção do título de Mestre
em Ciências.



Orientador:
Prof. P. C. Zawislak

- 1 9 7 5 -

À

minha mãe,

IOLANDA,

e à memória de meu pai.

A G R A D E C I M E N T O S

Este trabalho foi realizado sob a orientação dos Profs. Fernando Claudio Zawislack e Rajendra Narain Saxena. Agradeço a eles os ensinamentos que me transmitiram durante o proveitoso convívio destes dois últimos anos.

Agradeço, ainda ao Prof. Iuda Dawid Goldman vel Lejbman, do Instituto de Física da Universidade de São Paulo, pelas valiosas discussões e sugestões apresentadas.

Um agradecimento especial à bolsista Lucia C. Jahnel, pela confecção de alguns gráficos e do auxílio prestado na preparação dos dados experimentais para o posterior cálculo computacional.

À Dra Lais Pimenta de Moura, que orientou os meus primeiros passos em pesquisa.

Ao grupo do Instituto de Física da Universidade Federal do Rio Grande do Sul, pelo auxílio dado a este grupo na aplicação da Técnica de Correlação Angular.

Aos colegas dos diversos setores do Instituto de Energia Atômica, que contribuíram direta ou indiretamente para o bom termo deste trabalho, em particular, aqueles - pertencentes às Coordenadorias de Física Nuclear, Operação e Manutenção do Reator, Instrumentação e Eletrônica Nuclear, à Oficina Mecânica e ao Centro de Processamento de Dados; em especial ao Dr. R. Fulfaro pelo apoio dado; ao Eng^o Hertz pelas irradiações das fontes utilizadas e aos técnicos Dawid e Walter, pelos reparos no instrumental eletrônico.

As senhoritas Margaret Miller Robertson e Oliver C. Basso, pelo paciente trabalho de datilografia.

Desejo, finalmente, manifestar meu reconheci

mento à Comissão Nacional de Energia Nuclear e ao Governo do Estado de São Paulo, que através do Instituto de Energia Atômica de São Paulo, financiaram a realização deste trabalho.

R E S U M O

Foi feita a medida da Correlação Direcional de transições γ no ^{71}Ga e ^{69}Ga a partir do decaimento do $^{71\text{m}}\text{Zn}$ e ^{69}Ge , respectivamente, usando um espectrômetro gama a Ge(Li)-NaI(Tl). A associação de spins para os níveis a 390(1/2⁻), 487(5/2⁻), 512(3/2⁻), 964(5/2⁻), 1107(7/2⁻), 1494(9/2⁺) e 2247 KeV(7/2⁺) no ^{71}Ga e 318(1/2⁻), 574(5/2⁻), 872(3/2⁻), 1106(5/2⁻, 3/2⁻), 1336(7/2⁻) e 1923 KeV(7/2) no ^{69}Ga confirmam os resultados de estudos anteriores nestes núcleos.

A Correlação Direcional permitiu obter-se também as razões das misturas multipolares $\delta(E2/M1)$, de várias transições γ em ambos os núcleos. Os resultados são: $\delta(121) = -0,2 \pm \frac{0,3}{2,4}$, $\delta(142) = 0,04 \pm 0,04$, $\delta(386) = -0,003 \pm 0,014$, $\delta(487) = 0,04 \pm 0,07$, $\delta(512) = -0,14 \pm 0,10$, $\delta(620) = 1,3 \pm \frac{0,8}{0,3}$, $\delta(753) = 0,00 \pm 0,01$ e $\delta(964) = 0,6 \pm \frac{0,9}{0,3}$ para as transições do ^{71}Ga e $\delta(234) = 0,28 \pm 0,04$ ou $0,08 \pm 0,02$, $\delta(587) = -1,1 \pm 0,08$, $\delta(1051) = 0,0 \pm 0,10$ e $\delta(1349) = 0,13 \pm 0,03$ para as transições do ^{69}Ga . Os resultados experimentais são discutidos em termos de vários modelos nucleares aplicáveis aos núcleos de A-ímpar desta região.

A B S T R A C T

The directional correlations of γ -transitions in ^{71}Ga and ^{69}Ga have been measured from the decay of $^{71\text{m}}\text{Zn}$ and ^{69}Ge respectively using a Ge(Li)-NaI(Tl) gamma spectrometer. Spin assignments to the levels in ^{71}Ga at 390(1/2⁻), 487(5/2⁻), 512(3/2⁻), 964(5/2⁻), 1107(7/2⁻), 1494(9/2⁺) and 2247 KeV(7/2⁺), and in ^{69}Ga at 318(1/2⁻), 574(5/2⁻), 872(3/2⁻), 1106(5/2⁻, 3/2⁻), 1336(7/2⁻), and 1923 KeV(7/2) confirm the results of previous studies on these nuclei. The multipole mixing ratios $\delta(E2/M1)$ for several γ -transitions in both nuclei have been determined from the present angular correlation data. The results are: $\delta(121) = -0.2 \pm \begin{matrix} 0.3 \\ -2.4 \end{matrix}$, $\delta(142) = 0.04 \pm 0.04$, $\delta(386) = -0.003 \pm 0.014$, $\delta(487) = 0.04 \pm 0.07$, $\delta(512) = -0.14 \pm 0.10$, $\delta(620) = 1.3 \pm \begin{matrix} 0.8 \\ -0.3 \end{matrix}$, $\delta(753) = 0.00 \pm 0.01$ and $\delta(964) = 0.6 \pm \begin{matrix} 0.9 \\ -0.3 \end{matrix}$ for transitions in ^{71}Ga and $\delta(234) = 0.28 \pm 0.04$ or 0.08 ± 0.02 , $\delta(587) = -1.1 \pm 0.08$, $\delta(1051) = 0.3 \pm 0.10$ and $\delta(1349) = 0.13 \pm 0.03$ for transitions in ^{69}Ga . The experimental results are discussed in terms of various nuclear models which are applicable for the odd-A nuclei in this mass region.

Í N D I C E

INTRODUÇÃO	1
Capítulo I - RESUMO TEÓRICO	4
I-1 Princípios Gerais da Correlação Angular	4
I-1.1 Introdução	4
I-1.2 Correlação angular direcional gama-gama	5
I-1.3 Função correlação angular	7
I-1.4 Correlação angular tripla	8
I-2 Sobre os Modelos Nucleares	10
I-2.1 Introdução	10
I-2.2 Modelo de camadas	10
I-2.3 Modelo de partícula simples	11
I-2.4 Modelos coletivos	13
I-2.5 Acoplamento de partícula e movimento coletivo.	16
I-2.6 Considerações finais	18
I-3 Interação dos Núcleos com o Campo Eletromagnético.	20
I-3.1 Introdução	20
I-3.2 Probabilidade de transição	20
Capítulo II - INSTRUMENTAÇÃO E ANÁLISE DOS DADOS	24
II-1 Instrumentação	24
II-1.1 Introdução	24
II-1.2 Detetores gama	25
II-1.3 Espectrometro para correlação angular gama-gama.	26
II-1.4 Sistema eletrônico integral	27
II-1.5 Sistema eletrônico diferencial	28
II-2 Análise dos dados	32
II-3 Testes Experimentais	35

Capítulo III - CORRELAÇÃO ANGULAR DO ^{71}Ga	37
III-1 Introdução	37
III-2 Técnica Experimental	38
III-3 Resultados experimentais da correlação angular	42
III-3.1 Dados anteriores do ^{71}Ga	42
III-3.2 Dados obtidos neste trabalho	43
III-4 Meia-vida do nível a 1494 KeV	50
Capítulo IV - CORRELAÇÃO ANGULAR DO ^{69}Ga	52
IV-1 Introdução	52
IV-2 Técnica Experimental	56
IV-3 Resultados experimentais da correlação angular	59
IV-3.1 Dados anteriores do ^{69}Ga	59
IV-3.2 Dados obtidos neste trabalho.	60
Capítulo V - ANÁLISE DOS DADOS EXPERIMENTAIS	68
V-1 Introdução	68
V-2 Parâmetros experimentais	68
V-3 Análise em termos de modelos nucleares	72
Capítulo VI - CONCLUSÕES	77
REFERÊNCIAS	80

INTRODUÇÃO

O entendimento e a interpretação das propriedades nucleares, como consequência direta das forças que atuam entre as partículas do núcleo atômico, tem sido possível devido à grande quantidade de dados experimentais obtidos nos últimos anos, embora, os resultados não sejam suficientes, ainda, para um conhecimento completo de tais forças. Simultaneamente, a Física Teórica tenta explicar os fatos observados experimentalmente, descrevendo as propriedades nucleares através de modelos.

O processo utilizado pelos físicos experimentais, na inspeção da estrutura nuclear, resume-se nas medidas de certos parâmetros característicos do núcleo atômico - (por exemplo, spin, paridade, energia, momento de quadrupolo, etc.). As medidas desses parâmetros exigem técnicas especiais e entre elas a de Correlação Angular, baseada na medida de coincidências ocupa, sem dúvida alguma, posição de destaque. Desde a sua introdução experimental, em 1947, o equipamento e os métodos de estudo tiveram grande desenvolvimento abrangendo, atualmente, aplicações não só na Física Nuclear, como também a outros campos da Física. Um exemplo típico da influência do desenvolvimento do instrumental, nesta técnica, é o advento dos detetores a Ge(Li), com resolução em energia muitas vezes superior aos de NaI(Tl), o que possibilitou medidas de raios gama antes não realizáveis.

São apresentadas aqui, as correlações angulares gama-gama das transições mais intensas de dois núcleos ^{71}Ga e ^{69}Ga , com proton ímpar, e classificados como esféricos; parte de um estudo sistemático na região $69 \leq A \leq 85$, onde já

medimos outros isótopos, tais como ^{77}As e ^{81}Br . Devido ao espectro de níveis a baixa energia, complexo, desses isótopos, foi necessário a utilização de detetores Ge(Li) (somente com esses detetores tais medidas são realizáveis com boa precisão). Além das medidas das multipolaridades das transições gama dos níveis de paridade ímpar, desses núcleos, foi possível obter-se informações sobre dois estados (no ^{71}Ga) com paridade par, sobre os quais se tinha poucas informações, dificultando a sua interpretação teórica. A exposição dos resultados acima é acompanhada de uma descrição sucinta da técnica empregada, orientando sua análise e interpretação no sentido de evidenciar o limite de aplicação das conclusões das atuais teorias. Pensamos, então, que ficam atendidos os objetivos das medidas experimentais relatados neste trabalho.

No primeiro capítulo são apresentados resumos teóricos sobre os tópicos: Correlação angular direcional gama-gama, modelos nucleares e interações dos núcleos com o campo eletromagnético. O capítulo II contém uma descrição dos arranjos experimentais usados para a realização das medidas, e o método empregado no tratamento dos dados experimentais. Os dois capítulos seguintes destinam-se ao relato das medidas efetuadas, e uma análise prévia dos resultados, sendo que o capítulo III trata do núcleo ^{71}Ga e o capítulo IV do ^{69}Ga . No capítulo V é feita a análise comparativa desses resultados com os dos modelos nucleares. Finalmente, são apresentadas as conclusões e discutidas as possibilidades da presente técnica.

As fórmulas matemáticas são numeradas para cada capítulo, antecedendo-se ao número de ordem o do capítulo, em algarismo romano. As tabelas e figuras são numeradas continuamente, e estão distribuídas no texto na sequência em que são citadas. As referências bibliográficas são numeradas independentemente do capítulo, e se encontram após as conclusões.

CAPÍTULO

I

RESUMO TEÓRICO

I - 1 Princípios Gerais da Correlação Angular

I-1.1 Introdução

Em 1940, Dunworth sugeriu ⁽¹⁾ pela primeira vez a possibilidade da existência de uma correlação angular, entre radiações nucleares sucessivas. Estudos teóricos detalhados sobre o assunto foram feitos no mesmo ano por Hamilton ⁽²⁾, e em 1946 Goertzel ⁽³⁾ ampliou esse trabalho considerando perturbações extranucleares. As primeiras evidências experimentais foram obtidas por Brady e Deutsch ⁽⁴⁾, em 1947.

Atualmente tanto a teoria quanto a técnica estão desenvolvidas de tal modo que permitem a sua utilização como padrão em espectroscopia nuclear. Há um número razoável de publicações completas sobre o assunto como as de Biedenharn e Rose ⁽⁵⁾, H. Frauenfelder e R.M. Steffen ⁽⁶⁾ e H.J. Rose e D.M. Brink ⁽⁷⁾.

A dependência angular dos fons emitidos (por um núcleo) com o eixo do spin nuclear não pode ser observada em condições normais, pois a distribuição ao acaso da orientação desses spins, na amostra radioativa, provoca isotropia angular. Entretanto, se os mesmos forem alinhados ou, se pudermos selecionar núcleos orientados em uma determinada direção, o padrão pode ser anisotrópico.

Há vários métodos de obter-se tal orientação (ou seleção), um deles consiste em se aplicar um campo magnético, ou

gradiente de campo elétrico, em amostras a baixa temperatura, o que tende a provocar alinhamento em relação ao eixo do campo.

Outra técnica consiste em fixar-se a direção da primeira transição gama (γ_1) e medir-se a distribuição da segunda (γ_2) em relação à primeira, o que seleciona núcleos com spins orientados em uma determinada direção, e não mais ao acaso, provocando um padrão quase sempre anisotrópico.

Há outros fatores que influenciam a correlação, como por exemplo, perturbações do estado intermediário por campos extranucleares. Essas perturbações podem ser negligenciadas, quando a vida-média (τ) do estado intermediário é muito pequena ($\approx 10^{-10}$ seg) ou, a forma física da amostra permite (fontes líquidas, em geral diluídas).

O termo "Correlação Angular Direcional" utilizado neste trabalho, implicará apenas na observação das direções das radiações nucleares a qual permite obter informações sobre os spins dos níveis nucleares e multipolaridades das transições. Informações sobre as paridades desses níveis podem ser obtidas, através da observação da polarização (linear ou circular) das radiações.

I-1.2 Correlação Angular Direcional Gama-Gama

A Figura 1a mostra um esquema típico de níveis nucleares onde L_n ($n=1,2$), é a multipolaridade de mais baixa ordem da transição γ_n ($n=1,2$), e π_n a sua paridade. A Figura 1b mostra um esquema simplificado da geometria utilizada para medidas de correlação angular.

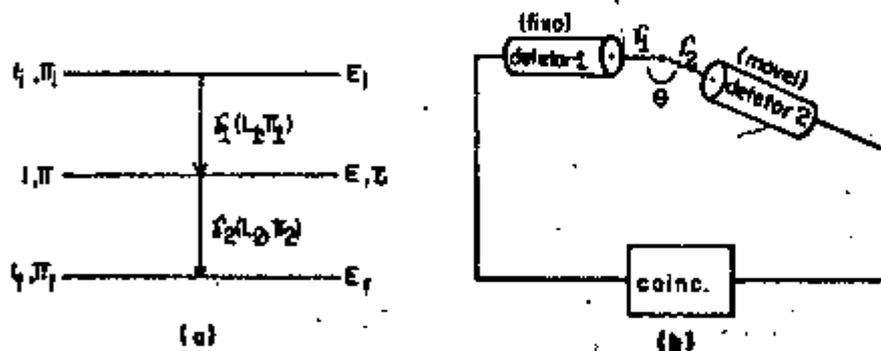


Fig. 1 \

- a) Esquema típico de níveis nucleares com os parâmetros mais importantes.
- b) Esquema simplificado do arranjo experimental para medidas de correlação angular.

O experimento consiste em determinar o número de coincidências $\gamma_1 \gamma_2(\theta)$, onde θ é o ângulo entre os eixos dos dois detetores; isto é, o número de fótons γ_2 , emitidos na direção K_2 (dentro de um ângulo sólido $d\Omega_2$), formando um ângulo θ com a direção K_1 (dentro de um ângulo sólido $d\Omega_1$) da primeira radiação. Essas coincidências corrigidas e representadas por $W^{\text{exp}}(\theta)$ são comparadas com os valores teóricos de $W(\theta)$ para a sequência de spins $I_i - I - I_f$, providenciando as informações desejadas sobre certos parâmetros nucleares.

O resultado teórico de $W(\theta)$ pode ser obtido através da teoria dos grupos, álgebra de Racah, ou o formalismo de matriz densidade. Uma discussão completa encontra-se no trabalho de Rose e Brink⁽⁷⁾.

I-1.3 Função Correlação Angular

Supondo-se uma sequência de transições gama como a da figura 1a e o arranjo experimental esquematizado na figura 1b (o detetor 1, permanece fixo enquanto o detetor 2 pode ser deslocado para várias posições angulares), demonstra-se (ref. 7), que a expressão da função correlação angular ($W(\theta)$) é dada por:

$$W(\theta) = \sum_{K \text{ par}} A_{KK} P_K^2(\cos \theta) \quad (I.1)$$

$$\text{com } 0 \leq K \leq \min(2I, 2L_1, 2L_2).$$

$$A_{KK} = A_K(\gamma_1) A_K(\gamma_2) \quad (I.2) \quad \text{e,}$$

$$A_K(\gamma_1) = \frac{F_K(I I_i L_1 L_1) + (-)^{L_1 - L_1'} \delta_1 F_K(I I_i L_1 L_1') + \delta_1^2 F_K(I I_i L_1' L_1)}{1 + \delta_1^2} \quad (I.3)$$

$$A_K(\gamma_2) = \frac{F_K(I I_f L_2 L_2) + 2\delta_2 F_K(I I_f L_2 L_2') + \delta_2^2 F_K(I I_f L_2' L_2)}{1 + \delta_2^2} \quad (I.4)$$

Nessas expressões as quantidades são definidas como:

$P_{\kappa}(\cos \theta)$ = polinômio de Legendre de ordem κ ,

F_{κ} = coeficientes de Ferentz e Rosenzweig tabelados na ref.8,

$L'_n = L_n + 1$, onde L_n ($n = 1, 2$) é a multipolaridade de mais baixa ordem da transição γ_n ,

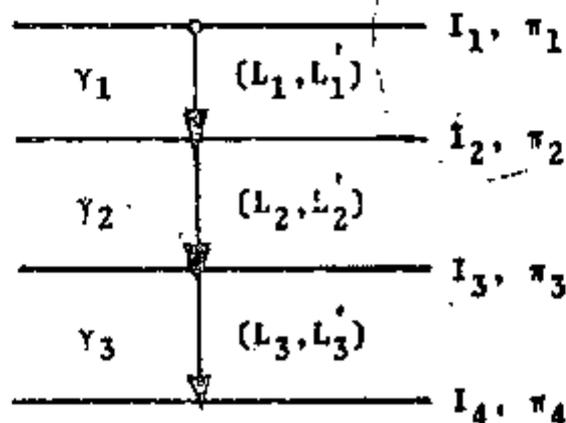
δ_n ($n=1, 2$) é a razão da mistura multipolar (melhor definida em 1.3), isto é:

$$\delta_n^2 = \frac{\text{Intensidade } L'_n}{\text{Intensidade } L_n} \quad (1.5)$$

Retornando à expressão (1.1) verifica-se que ela é válida se:

- O estado intermediário (I) foi alinhado, o que é obtido pela observação da direção de uma das transições em relação à outra.
- As contribuições multipolares acima das duas de -- mais baixa ordem forem negligenciáveis, em relação a estas.

1-1.4 Correlação Angular Tripla (1,3)



É possível obter-se uma expressão, para a função correção angular da transição $I_3 \rightarrow I_4$, sem a observação de γ_2 do esquema acima. Para isso basta a introdução de um fator de correção em (1.1), tal que:

$$W(\theta) = \sum_{\kappa \text{ par}} A_{\kappa}(\gamma_1) U_{\kappa}(I_2 I_3) A_{\kappa}(\gamma_3) P_{\kappa}(\cos \theta) \quad (1.6)$$

onde,

$$U_{\kappa}(I_2 I_3) = \{U_{\kappa}(L_2, I_2, I_3) + \delta_2^2 U_{\kappa}(L_2', I_2, I_3)\} / (1 + \delta_2^2) \quad (1.7)$$

As expressões para $A_{\kappa}(\gamma_n)$ e δ_n são definidas da mesma maneira que (1.3) e (1.5), respectivamente, e os coeficientes U_{κ} estão tabelados na ref.7.

I - 2 Sobre os Modelos Nucleares

I-2.1 Introdução

A interpretação dos resultados experimentais apresentados neste trabalho envolve a comparação com cálculos teóricos baseados em várias aproximações e modelos nucleares aplicáveis na região a que pertencem os núcleos ^{69}Ga e ^{71}Ga . A seguir fazemos um resumo das idéias mais importantes de alguns modelos nucleares de aplicação mais geral. O detalhamento das aproximações diretamente usadas no presente trabalho será feito ao discutirmos os casos específicos nos capítulos seguintes.

I-2.2 Modelo de Camadas

Há certas propriedades nucleares que demonstram alguma periodicidade, semelhante às encontradas na Física Atômica na posição dos gases nobres. Exemplo típico dessa periodicidade é a energia de separação do último próton (ou nêutron) que apresenta descontinuidades (altos valores) em $Z = 2, 8, 20, 28, 50$ e 82 (ou $N = 2, 8, 20, 28, 50, 82$ e 126). Efeito similar ocorre com o número de isótopos e isótonos estáveis quando Z ou N tem os valores acima (chamados números mágicos). O momento de quadrupolo elétrico dos núcleos ímpares é pequeno quando o número de núcleons ímpares é próximo dos números mágicos, indicando que os núcleos com Z e/ou N mágicos são esféricos, ou aproximadamente esféricos.

Tais propriedades encorajam a construção de um modelo nuclear de camadas ⁽⁹⁾ em que:

- Os nucleons movimentam-se independentemente, sujeitos a um potencial central médio, produzido por todos os nucleons, o

que é obedecido, desde que o caminho livre médio relativo a colisões seja grande comparado às dimensões do sistema (isto é, os nucleons devem percorrer uma órbita completa).

O potencial que melhor se ajusta é o de Woods-Saxon, intermediário do poço quadrado e do oscilador harmônico, embora não reproduza bem os números mágicos e seja degenerado em J (momento angular total). Essa dificuldade é removida introduzindo-se na Hamiltoniana da partícula um termo proporcional a $\vec{l} \cdot \vec{s}$ (l = momento angular orbital e de spin), representando uma interação spin-órbita.

A ref. (10) dá uma boa introdução geral sobre o modelo de camadas.

I-2.3 Modelo de Partícula Simples

A versão mais primitiva do modelo de camadas é o "Modelo Extremo de Partícula Simples (MEPS) (11)(12), onde neutrons e protons devem preencher suas camadas independentemente e aos pares. Nesse modelo todas as propriedades nucleares são reproduzidas por uma única partícula não emparelhada, e supõem-se, que as restantes formem um caroço completamente inerte com $I^\pi = 0^+$ (I^π = spin e paridade nucleares) e momento de dipolo magnético e quadrupolo elétrico nulos.

Verifica-se que o modelo é bastante pobre, principalmente quando o núcleo se distancia dos números mágicos (camadas completamente fechadas), devido ao aparecimento de camadas apenas parcialmente preenchidas, e caroço deformado (momento de quadrupolo elétrico diferente de zero). Entretanto, a previsão $I^\pi = 0^+$ para o estado fundamental dos núcleos par-par, é um fato observado experimentalmente, independente da região considerada.

Em núcleos impar-par, próximos das camadas fechadas, o valor I^π previsto para o estado fundamental ($I^\pi = j^\pi$ da partícula impar), pode surgir como estado excitado. Isso é explicado supondo-se que uma das partículas mais internas emparelhada com a última, criando um buraco no caroço, levando o núcleo para um estado energético mais baixo. Nesse caso, o valor de I^π do estado fundamental é dado pelo buraco. A energia de emparelhamento (responsável pela maior estabilidade do núcleo) deixa de existir quando o nucleon volta para a sua órbita original, produzindo, então, um estado excitado.

É de se esperar que o modelo não se aplique a núcleos impar-impar, desde que para estes há duas partículas desemparelhadas, e o MEPS se propõe a explicar casos em que há apenas um nucleon impar, não fazendo, portanto, qualquer consideração sobre interações de partículas fora do caroço inerte.

Os estados nucleares acima do fundamental são explicados em termos de excitação de partículas para níveis mais energéticos. Nos núcleos ímpares, os primeiros estados nucleares têm sua origem na excitação da partícula desemparelhada (com spins e paridades iguais ao desse nucleon), pois, as do caroço estão fortemente ligadas entre si, devido ao emparelhamento. Nos núcleos par-par todas as partículas estão emparelhadas, e é necessário "quebrar" um desses pares para excitar um só nucleon, o que exige energia alta, se o mesmo estiver próximo das camadas fechadas. Quando isso ocorre, há a criação de um buraco-partícula e o acoplamento entre seus spins produz vários valores gerando ambiguidades, desde que não se pode prever qual deles tem energia mais baixa. Os momentos magnéticos (μ)^{*} estimados pelo MEPS não concordam bem com os experimentais.

* o gráfico de μ em função de j , para $j = 2^{\pm} 1/2$, produz duas linhas, chamadas "linhas de Schmidt".

tais, embora, praticamente todos os valores observados permaneçam dentro das duas linhas de Schmidt, e mais próximos, em geral, daquela que a teoria prediz. Há várias razões que podem explicar essas discrepâncias desta teoria simples. Talvez, as mais importantes sejam a ocorrência de interações coletivas e de partícula-carço, desconsideradas pelo modelo. Entretanto, pode-se verificar a importância da partícula desemparelhada em núcleos ímpares quando comparamos os valores de μ (momento magnético) em isótopos que diferem entre si por dois neutrons, tendo o mesmo spin (^{69}Ga e ^{71}Ga , ^{151}Eu e ^{153}Eu , etc..). Nestes casos, os momentos magnéticos diferem muito pouco entre si.

O modelo descrito acima pode ser melhorado introduzindo-se alguns refinamentos⁽¹⁰⁾; como por exemplo, considerar o caroço inerte constituído apenas das partículas das camadas completamente fechadas, e os nucleons restantes (da camada parcialmente cheia) interagindo entre si. Assume-se, que essas interações não perturbam apreciavelmente as órbitas de partícula simples.

Este último modelo é conhecido como "Modelo de Partícula Simples", e é importante em cálculos com 3 e até 5 nucleons fora do caroço.

1-2.4 Modelos Coletivos

Ficou claro no parágrafo anterior que o modelo de camadas descreve as forças nucleares por meio de um potencial esférico médio. Esse potencial pode ser generalizado por uma expansão em multipolos, onde o termo de monopolo tem contribuição dominante para o modelo acima. Nesse caso, as partículas que estão se movimentando aos pares, devido a força de

emparelhamento, o fazem incoerentemente. O termo de dipolo representa oscilações de dentro de massa, as quais, não serão consideradas aqui. O próximo termo da expansão representa as forças quadrupolares que atuam a longa distância, e são muito fracas na região de dupla camada fechada. Essas forças podem se tornar suficientemente intensas, tal que, as flutuações de um par perturbam o campo nuclear médio induzindo movimentos coerentes de todos os pares, o que tende a deformar o núcleo.

Na região aproximadamente esférica a resistência às deformações quadrupolares é debilitada pelas forças acima, provocando oscilações da superfície nuclear. Quando essas oscilações são consideradas harmônicas e de pequena amplitude pode-se escrever:

$$E = \sum_{\lambda} (n_{\lambda} + 1/2) \hbar \omega_{\lambda} \quad (1.8) \text{ onde,}$$

λ = ordem do modo de vibração,

n_{λ} = número de fonons (ou osciladores) de ordem λ , no estado de energia E ,

ω_{λ} = frequência associada ao modo de vibração λ .

O fonon do tipo λ tem momento angular λ e paridade $(-)^{\lambda}$. Vibrações com $\lambda = 0$ e $\lambda = 1$ descrevem oscilações de densidade e centro de massa, respectivamente. A energia $\hbar \omega_{\lambda}$ cresce rapidamente com λ ($w_3 \approx 2w_2$ e $w_4 \approx 3w_2$)⁽¹³⁾, espera-se, então, que o primeiro estado excitado dos núcleos vibracionais tenha $\lambda = 2$ (oscilações quadrupolares), $n_{\lambda} = 1$ (1 fonon) e $I^{\pi} = 2^{+}$. O estado com 2 fonons das oscilações quadrupolares (acoplamento de dois estados com momento angular, de duas unidades resultando um tripleto $0^{+}, 2^{+}, 4^{+}$) e o de 1 fonon das oscilações octupolares ($\lambda = 3$)³⁻ tem energia da mesma ordem, então,

o segundo nível excitado dos núcleos vibracionais pode ser qual quer um dos dois. No primeiro caso, em geral, o triplete 0^+ , 2^+ , 4^+ não é degenerado (e também não necessariamente na ordem 0^+ , 2^+ e 4^+) devido a perturbações que não foram consideradas aqui, mas, o centro da gravidade dos três níveis deve ter aproximada mente o dobro da energia do primeiro estado 2^+ (fato verifica do experimentalmente).

A energia $\hbar\omega_2$ é aproximadamente 2 MeV para $A=100$ e 1 MeV para $A=200$, o que é bem menor que a necessária para ex citar uma partícula nos núcleos par-par, próximos das camadas fechadas (números mágicos). Espera-se, então, que os mais bai xos níveis desses núcleos, sejam vibrações coletivas, o que se se verifica bem na região de $60 \leq A \leq 150$ e $190 \leq A \leq 220$. Uma boa introdução sobre o Modelo Vibracional (M.V.) descrito aci ma é dada na ref. 12.

O número de núcleos que não apresenta comporta mento vibracional simples, como o descrito acima, é grande, em especial nas regiões $150 \leq A \leq 190$ e $A \geq 220$, onde a forma es férica, não é mais favorecida energeticamente. Isso ocorre por que o movimento fortemente coordenado dos nucleons, adquire correlação direcional, produzindo deformações com rotação de sua orientação no espaço. As vibrações de tais núcleos, são ba sicamente de dois tipos: as que aumentam e diminuem a deforma ção, mantendo a simetria primitiva (vibrações- β), e as que de alguma forma tendem a destruir essa simetria (vibrações- γ).

Há evidências experimentais⁽¹³⁾, de que todos os núcleos fortemente deformados (longe das camadas fechadas) tem simetria axial (aproximadamente), e as vibrações podem ser des consideradas (pelo menos para os primeiros níveis) face às for tes rotações. Nesses casos, a projeção do spin nuclear sobre o

eixo de simetria (K) é um bom número quântico, e, para cada valor do mesmo há um grupo de estados com idêntica estrutura intrínseca, chamado "banda rotacional K ", com I assumindo os valores de $K, K+1, K+2, \dots$ com exceção da banda $K=0$ onde $I = 0^+, 2^+, 4^+, \dots$

As energias dos níveis da banda rotacional do estado fundamental dos núcleos par-par ($K=0$) pode ser calculada aproximadamente por:

$$E_I = \frac{\hbar^2}{2\mathcal{J}} I(I+1) \quad (1.9)$$

onde \mathcal{J} é momento de inércia do núcleo.

Os núcleos especificados acima, podem ter, também, estados devido à excitação de partícula, e, para se falar em estados puramente coletivos é necessário que os E_I sejam bem menores que as energias dos estados de partícula, tal que não haja apreciável mistura de configurações. Os valores de E_I são pequenos quando o momento de inércia \mathcal{J} é grande, isto é, o núcleo é fortemente deformado como foi explicado no início desta exposição. Uma descrição completa sobre o Modelo Rotacional (M.R.), aqui descrito em linhas gerais, encontra-se no trabalho de J.P.Elliott⁽¹³⁾.

I-2.5 - Acoplamento de partícula e movimento coletivo.

Os modelos nucleares até aqui estudados descrevem o núcleo através do movimento intrínseco de umas poucas partículas fora de um caroço par-par, ou do movimento coletivo envolvendo muitos nucleons, e, geralmente, desacoplados, isto é, as vibrações, rotações e estados intrínsecos são tratados sepa-

radamente. Entretanto, em muitos casos, tais movimentos não podem ser separados, devido à existência de interações dos graus de liberdade de partícula e coletivos.

Nos núcleos aproximadamente esféricos, há apenas um fraco acoplamento entre o movimento intrínseco e o vibracional, que pode ser tratado pela técnica das perturbações. Contudo, em núcleos de grandes formações, há um forte acoplamento entre o movimento intrínseco e vibracional ou rotacional.

A Hamiltoniana⁽¹¹⁾ desses sistemas é basicamente da forma:

$$H = H_c + H_p + H_{int} \quad (I.10) \quad \text{onde,}$$

H_c refere-se à parte coletiva e H_p refere-se às partículas, que pode ser apenas uma ou todas que estão fora da camada cheia; H_{int} representa as interações entre as partículas e o caroço coletivo. Se o acoplamento é fraco pode-se escrever:

$$H_{int} = - \sum_i K(r_i) \sum_{\lambda\mu} \alpha_{\lambda\mu} Y_{\lambda}^{\mu}(\theta_i, \phi_i) \quad (I.11) \quad \text{onde,}$$

θ_i, ϕ_i = ângulos polares com respeito a um sistema de eixos fixos no espaço,

$Y_{\lambda}^{\mu}(\theta_i, \phi_i)$ = harmônicos esféricos,

$\alpha_{\lambda\mu}$ = descreve a variação da forma com respeito a esses eixos e

$K(r_i)$ = contém a dependência radial e a intensidade da interação.

Nos núcleos ímpares, muitas vezes, pode-se considerar uma partícula na camada j e as outras pertencentes a

um caroço vibracional par-par. O spin e paridade J^π do estado fundamental são dados pelo j^π da partícula, desde que o caroço tem $J_C^\pi = 0^+$. Os primeiros estados excitados são formados pelo acoplamento do estado 2^+ de 1 fonon do caroço com j^π da partícula, resultando em um multiplete com $|2 - j| \leq J \leq 2 + j$, degenerado em um modelo simples. Embora não haja tantas evidências experimentais⁽¹²⁾ para esses níveis quanto para $J=2$ dos núcleos vibracionais, verifica-se que o multiplete não é degenerado devido à presença de outros estados de partícula ou de fonon.

No segundo caso, descrito no início deste parágrafo, o forte acoplamento dos graus de liberdade de partícula e coletivo impede o tratamento pelo método das perturbações. Nos núcleos ímpares a Hamiltoniana H_C em (1.10) é tratada como rotacional-vibracional (nos casos mais simples apenas rotacional), com a partícula ímpar (ou todas que estão fora da camada fechada) movimentando-se no potencial distorcido.

Nesta aproximação o termo de grande importância que surge é o de Coriolis,

$$H_{cor} = - \frac{\hbar^2}{J} (\mathbf{I} \cdot \mathbf{J}) \quad (1.12),$$

assim chamado em analogia à força clássica de Coriolis, desde que tem a mesma forma. Esse termo atua no sentido de misturar bandas rotacionais⁽¹¹⁾ com $\Delta K = \pm 1$, principalmente em $K=1/2$.

1-2.6 Considerações finais

O desenvolvimento de uma teoria geral para o núcleo permanece, ainda, como problema não resolvido. Em consequência, os físicos se utilizam de modelos para explicar as propriedades nucleares observadas.

Claramente, os modelos descritos aqui possuem limitações e usualmente são feitas combinações, como tentativa de explicar a estrutura nuclear. As aplicações aos núcleos ^{69}Ga e ^{71}Ga são feitas através de acoplamentos semelhantes aos descritos no parágrafo anterior, os quais serão melhor discutidos nos capítulos finais deste trabalho.

I - 3 Interação dos Núcleos com o Campo Eletromagnético

I-3.1 Introdução

A expressão (I.5) pode ser escrita explicitamente sob a forma:

$$\delta = A \times \frac{\langle I_f || T_L^{<\lambda>} || I_i \rangle}{\langle I_f || T_L^{<\lambda>} || I_i \rangle} \quad (I.13)$$

que contém elementos reduzidos de matriz dos operadores de interação multipolar $T_{LM}^{<\lambda>}$, onde $<\lambda>$ indica interação elétrica ($<\lambda> = e$) ou magnética ($<\lambda> = m$), os quais estão bem definidos no apêndice da ref.7. O fator A nessa expressão possui dependência em energia, e pode-se verificar por (I.14) que nos casos de misturas M1, E2 o seu valor é $0,835 E_\gamma$, onde E_γ é a energia do estado inicial.

As informações sobre esses elementos de matriz podem ser obtidas através do cálculo das interações dos núcleos com o campo eletromagnético. Um estudo completo sobre esse tipo de interação é feito por Moszkowski⁽¹⁴⁾. Sumariamos aqui, apenas os resultados mais importantes.

I-3.2 Probabilidade de Transição

A probabilidade de transição⁽¹²⁾ pode ser expressa sob a forma:

$$T (<\lambda>L; I_i \rightarrow I_f) = \frac{8\pi(L+1)}{L \left[(2L+1) \right]}^2 \frac{K^{2L+1}}{\hbar} B(<\lambda>L) \quad (I.14)$$

onde,

$$B(<\lambda>L; I_i \rightarrow I_f) = \sum_{M_i M_f} | \langle f | T_{LM}^{<\lambda>} | i \rangle |^2 \quad (I.15)$$

é chamado probabilidade de transição reduzida, e pode ser simplificado para,

$$B(\langle \lambda \rangle L; I_i \rightarrow I_f) = \frac{-1}{2I_i + 1} |\langle I_f || T_L^{\langle \lambda \rangle} || I_i \rangle|^2 \quad (I.16)$$

O operador de transição elétrica está associado à paridade $(-)^L$ enquanto que o magnético a $(-)^{L+1}$. Tanto a paridade quanto o momento angular devem ser conservados, o que dá origem às regras de seleção resumidas na tabela 1, onde:

$$|I_i - I_f| \leq L \leq I_i + I_f \quad \text{e} \quad \pi_i \pi_f = \pi_L$$

TABELA 1

$\langle \lambda \rangle L$	$\pi_i \pi_f$	$ \Delta I $ (I_i ou $I_f \neq 0$)
E1	-	0, 1
M1	+	0, 1
E2	+	0, 1, 2
M2	-	0, 1, 2
E3	-	0, 1, 2, 3
M3	+	0, 1, 2, 3

Regras de seleção para as transições elétricas e magnéticas.

A probabilidade reduzida de transição para a absorção $B(\langle\lambda\rangle L; I_f \rightarrow I_i)$ está relacionada à probabilidade reduzida de transição para a emissão $B(\langle\lambda\rangle L; I_i \rightarrow I_f)$ por:

$$B(\langle\lambda\rangle L; I_f \rightarrow I_i) = \frac{2I_i + 1}{2I_f + 1} B(\langle\lambda\rangle L; I_i \rightarrow I_f) \quad (1.17)$$

Para a dedução das expressões (1.14) a (1.17) não se faz nenhuma hipótese sobre o modelo, são equações gerais que tanto podem descrever transições em que participem todos os nucleons ou apenas parte deles.

Outra maneira, às vezes muito útil de expressar a intensidade de determinada transição é em termos da intensidade de uma transição de mesma energia e tipo, calculada através de modelo simples (MEPS) para um núcleo de mesma massa; observa-se, então, se a transição é mais lenta ou mais rápida que a calculada com o modelo. Supõe-se que a partícula fora da camada fechada move-se em uma órbita de momento angular L , com spin inicial total $I_i = L + 1/2$ e que faz a transição para o estado de momento orbital nulo, de modo que $I_f = 1/2$. Para o cálculo final devemos conhecer as funções de onda radiais dos estados inicial e final. Na estimativa mais simples, que é a de Weisskopf, estas são convencionadas como retângulos de largura R , sendo R o raio do núcleo. Isto significa que as funções de onda são consideradas constantes através do núcleo, evitando-se deste modo, a necessidade de especificar a forma do potencial, no qual a partícula se move, as energias de ligação, etc.: Obtém-se, desse modo, a estimativa de Weisskopf para as probabilidades reduzidas de transição:

$$B_w (EL) = \frac{e^2}{4\pi} \left(\frac{3}{3+L}\right)^2 R_0^{2L} \quad (I.18)$$

$$B_w (ML) = \frac{1}{4\pi} \left(\frac{3}{3+L}\right)^2 R_0^{(2L-2)} 40 \left(\frac{e\hbar}{2Mc}\right)^2 \quad (I.19)$$

com $R_0 = r_0 A^{1/3}$, e $r_0 = 1,2 \cdot 10^{-13}$ cm

Estas estimativas são usadas como unidades de intensidade para transições de uma partícula.

CAPÍTULO

II

INSTRUMENTAÇÃO E ANÁLISE DOS DADOSII-1 InstrumentaçãoII-1.1 Introdução

Os coeficientes F_{κ} em (I.3) e (I.4) são funções dos chamados coeficientes de Racah⁽⁷⁾, os quais impõem um limite superior aos valores de κ , simplificando a expressão (I.1). O limite superior imposto é:

$\kappa \leq \min(2I, 2L_1, 2L_2)$ cujas grandezas estão definidas na figura 1a.

Considerando que as transições de altas multipolaridades são pouco intensas, em relação às transições dipolares ($L = 1$) e quadrupolares ($L = 2$), pode-se escrever:

$$W(\theta) = A_{00} P_0(\cos \theta) + A_{22} P_2(\cos \theta) + A_{44} P_4(\cos \theta)$$

(II.1)

Nessa expressão é usual a normalização em relação a A_{00} :

$$W(\theta) = 1 + A_{22} P_2(\cos \theta) + A_{44} P_4(\cos \theta) \quad (II.2)$$

A quantidade mensurável experimentalmente em (II.2) é o número de coincidências representado por $W(\theta)$; a sua medida em vários ângulos dá origem a um sistema de equações, que permite o cálculo de A_{22} e A_{44} por ajuste de mínimos quadrados. Entretanto, os coeficientes obtidos não podem ser comparados

com a teoria, sem correções para o tamanho finito da fonte, e geometria do sistema. Essas correções, assim como a interpretação dos coeficientes $A_{\kappa\kappa}$, estão descritas na segunda parte deste capítulo.

As medidas apresentadas neste trabalho, foram feitas através de coincidências de pulsos eletrônicos produzidos nos detetores de radiação por ftons gama. Entre o detetor e a unidade de coincidências, o pulso sofre modificações e análise, em módulos eletrônicos conforme está descrito nos próximos parágrafos.

O arranjo experimental constitui-se basicamente de uma mesa de correlação automática, dois detetores (um fixo e outro móvel) e dois conjuntos eletrônicos, um chamado integral e outro diferencial.

II-1.2 Detetores Gama

O tipo de detetor escolhido, Ge(Li), NaI(Tl) ou plástico (dopado com chumbo), dependeu dos objetivos da experiência.

O detetor de Ge(Li) possui uma eficiência de 5% daquela do NaI(Tl) (3" x 3") na energia de 1330 KeV do ^{60}Co . Entretanto, a resolução do primeiro é de 2,5 KeV contra aproximadamente 100 KeV do NaI(Tl), na mesma energia anterior. A eficiência dos detetores de lucite, dopados com chumbo (5%) é bastante inferior aos dois anteriores, assim como a sua resolução em energia. A melhor resposta em tempo é obtida pelos detetores plásticos, vindo em segundo lugar os cristais de NaI(Tl) pequenos.

Na extremidade ativa desses detetores foi colocado um colimador cônico de chumbo, para evitar detecção de ftons espalhados, o que produziria coincidências indesejáveis.

Nas medidas de meias-vidas curtas, tanto o NaI(Tl), quanto o plástico (Pb), foram acoplados às fotomultiplicadoras rápidas RCA 8875 e 8850 com blindagem magnética. Neste caso, cintiladores menores são preferíveis (1 1/2" x 2" para NaI(Tl) e 1 1/2" x 1" para os plásticos).

O conjunto para medidas integrais é composto de um detector com cristal de NaI(Tl) 3" x 3" Harshaw (unidade integral - com fotomultiplicadora acoplada ao cristal), e um de Ge(Li) - coaxial com 36cm³ de volume. Outros pares são possíveis como Ge(Li) - Ge(Li) ou NaI(Tl) - NaI(Tl), mas com o último não se obtém bons resultados para espectros complexos, devido a sua baixa resolução em energia. O detector de Ge(Li) permaneceu fixo sobre a mesa de correlação (descrita no próximo parágrafo), enquanto que o outro movimentou-se com passos de 15°.

II-1.3 Espectrômetro para Correlação Angular Gama-Gama

O espectrômetro é constituído de um par de detectores ((2) e (4) na figura 2) e uma mesa circular de aço (1).

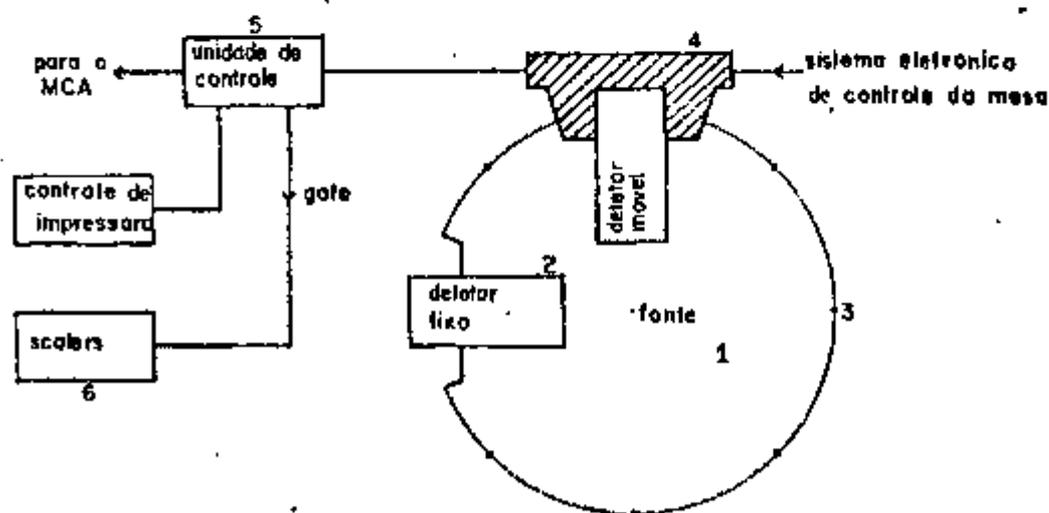


Fig.2 - Esquema indicativo da mesa automática de correlação angular gama-gama.

Um marcador eletrônico de tempo permite prefixar o intervalo que o detetor móvel (4) permanece em cada ângulo. Após esse intervalo de tempo, uma unidade de controle lógico-digital ((4) e (5)) provoca o movimento do detetor para outro ângulo. As posições angulares são pré-fixadas por pequenas chaves de parada (3), que acionam micro-chaves do sistema (4) freando o conjunto.

Os dados coletados são enviados a um analisador multicanal (AMC) de 4096 canais, cuja memória pode ser subdividida em partes, sendo cada uma delas destinada a uma posição angular, do detetor móvel. Para que o AMC "saiba" qual submemória deve operar, as chaves de parada em conjunto com as microchaves do sistema (4), enviam um sinal em código, para cada ângulo.

Antes do movimento do detetor, a unidade de controle envia um sinal ao "scaler-gate" com a finalidade de comandar a parada dos outros scalers(6), que acumularam as contagens dos dois detetores, e de coincidências. Imediatamente, o controle de impressora aciona uma teletipo para que esses registros sejam impressos e/ou perfurados em fita de papel.

A fonte radioativa (pó ou solução líquida) é colocada em pequenos tubos cilíndricos de lucite, e encaixada em um pino de metal, no centro geométrico do círculo descrito pelo detetor móvel. Esse pino de metal é o eixo de um pequeno motor (≈ 4 rpm), que minimiza qualquer anisotropia na forma da fonte. Sua altura é ajustável, para que a amostra radioativa fique no cruzamento dos eixos centrais dos dois detetores.

II-1.4 Sistema Eletrônico Integral

Nas medidas de correlação angular, foram utilizados um detetor de Ge(Li) e um de NaI(Tl) descritos anteriormente.

Os dois canais (Ge(Li) e NaI(Tl)) esquematizados na figura 3, possuem módulos eletrônicos idênticos, com exceção dos pré-amplificadores (Ortec-113 para o NaI(Tl) e Ortec-120-2B para o Ge(Li)). A análise em energia é feita por um analisador monocanal (Ortec-420) com ajuste contínuo de atraso 0-1,0 useg e base de tempo no cross-over do pulso bipolar fornecido pelo amplificador Ortec-440. Para as coincidências entre os dois canais utiliza-se o módulo rápido Ortec-414A, onde o tempo de resolução pode ser ajustado continuamente de 30 a 110 nseg, com 90% de eficiência.

Os dois sinais que produzirão registros no analisador multicanal, são retirados do amplificador do canal do Ge(Li) (espectro total com atraso), e do módulo de coincidências (sinal lógico). O "prompt" (espectro total com atraso) produzirá um registro no AMC se o "gate" do mesmo for aberto pelo sinal lógico da unidade de coincidências.

Além desse espectro (acumulado no AMC), três scalers armazenam o número total de coincidências, e as contagens simples dos dois detetores, após cada analisador monocanal.

O desempenho do conjunto é melhorado com a introdução de um estabilizador analógico Canberra, no canal do NaI(Tl), para compensar eventuais desvios do fator de amplificação.

II-1.5 - Sistema Eletrônico Diferencial

Este sistema (figura 4) foi utilizado para medidas de meias-vidas curtas de estados nucleares excitados, pelo método de coincidências atrasadas. O tratamento do pulso linear em energia é similar ao sistema Integral, com as mesmas unidades, exceção feita ao módulo de coincidências (substituído por uma unidade de coincidências lentas Ortec-409, com resolução de 1,0 useg).

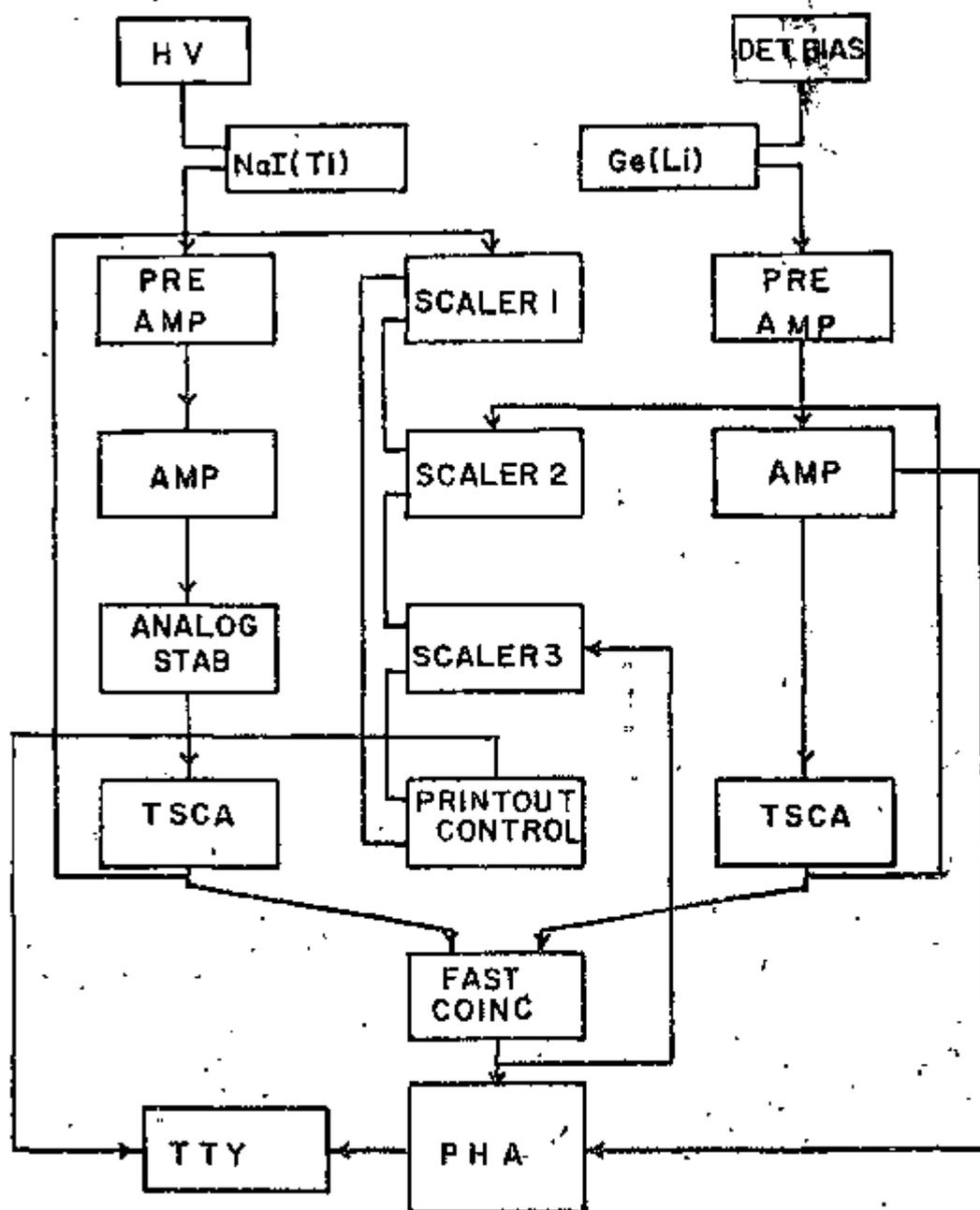


Fig.3 - Sistema eletrônico de correlação integral.

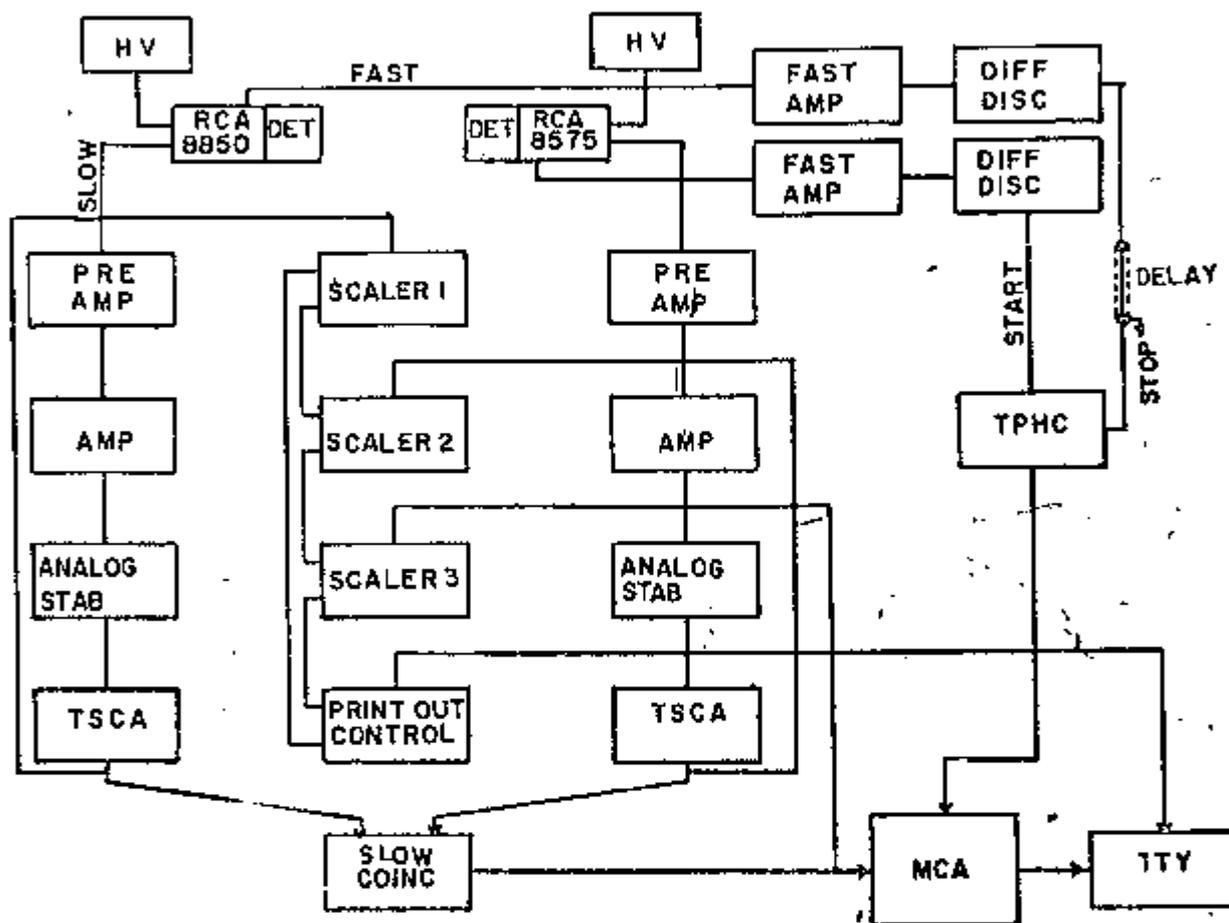


Fig.4 - Sistema eletrônico de correlação diferencial.

Amplificadores EGG-AN 201/N e discriminadores EGG-TD 101/N fazem a análise dos pulsos rápidos negativos ("start" e "stop"), retirados dos anodos das fotomultiplicadoras, e a diferença de tempo entre eles é transformada em altura de pulso por um conversor de tempo em amplitude (TAC), produzindo um registro no AMC, se o "gate" for aberto pelo pulso lógico da unidade de coincidências lentas dos canais de energia. O espectro assim obtido, representa a diferença de tempo entre a formação do estado intermediário (transição $I_1 - I$) da cascata, e a sua emissão (transição $I - I_f$), permitindo a determinação da meia-vida ($T_{1/2}$) do estado I.

A calibração do sistema é feita introduzindo-se, no canal de "stop", linhas com atrasos conhecidos.

II-2 - Análise dos Dados

Nas medidas de correlação angular o "gate" para as coincidências foi selecionado no canal do detetor de NaI(Tl), enquanto que o canal do detetor de Ge(Li) forneceu o espectro total, da região de interesse.

O número total de coincidências verdadeiras para cada energia foi determinado, calculando-se a área do fotopico correspondente e corrigindo-se para as coincidências acidentais, e contribuição de espalhamento Compton das transições de altas energias no "gate" do NaI(Tl). Um atraso de 110nseg em um dos canais forneceu o espectro de coincidências acidentais, e a contribuição Compton foi determinada a partir do espectro de coincidências de "gates" adjacentes.

As correções foram feitas para cada ângulo θ , conforme (II.3):

$$W^v(\theta) = W^m(\theta) - W^{ac}(\theta) - W^{co}(\theta) \quad \text{(II.3) onde,}$$

$W^{ac}(\theta)$ = área do fotopico, do espectro de coincidências acidentais para a energia E,

$W^{co}(\theta)$ = área do fotopico, do espectro de contribuição Compton, para a energia E,

$W^m(\theta)$ = área do fotopico, do espectro de coincidências diretas, para a energia E.

Na expressão (II.3) todas as coincidências (W^m , W^{co} e W^{ac}), estão corrigidas para a contagem de fundo.

Desde que são feitas n medidas em cada ângulo,

$$W_t^v(\theta) = \sum_{i=1}^n W_i^v(\theta) \quad \text{(II.4)}$$

O número total de contagens simples (determinadas conforme II-1.4) foi obtido por:

$$C_t^s(\theta) = \sum_{i=1}^n C_i^s(\theta) \quad \text{(II.5) onde,}$$

$C_i^s(\theta)$ = contagem simples da medida i , do canal do NaI(Tl) ("gate").

Finalmente, as coincidências verdadeiras foram normalizadas em relação às contagens simples de 90° , por:

$$W_{\text{hor.}}^v(\theta) = W_t^v(\theta) \times \frac{C_t^s(90)}{C_t^s(\theta)} \quad \text{(II.6), a qual}$$

será chamada simplesmente $W^{\text{exp}}(\theta)$. A relação $W^{\text{exp}}(\theta)/W^{\text{exp}}(90)$ permitiu o ajuste das curvas de correlação angular, por mínimos quadrados, do polinômio (II.2).

Os valores de A_{kk}^{exp} obtidos pelo ajuste foram corrigidos para a geometria do sistema, isto é,

$$A_{kk} = \frac{A_{kk}^{\text{exp}}}{Q_{kk}} \quad \text{(II.7) onde,}$$

$$Q_k = Q_k(1) \cdot Q_k(2) \quad \text{é o fator}$$

de correção final, e $Q_k(i)$ é a correção para o i -ésimo detector, tabelado nas refs. (15), (16) e (17). Outras correções, negligenciadas em relação ao erro estatístico, são exaustivamente discutidas na ref. (18).

Os coeficientes A_{kk} são os únicos dados experimentais e dependem, em geral, de 7 parâmetros (expressões (1.3) e (1.4)) os quais não podem ser determinados simultaneamente. Entretanto,

to, nas medidas efetuadas neste trabalho uma das duas misturas multipolares (δ) era conhecida, e dois spins bem determinados. Isto reduz o problema a sequências de transições do tipo $I_i(L_1, L_1')$ $I_f(L_2, L_2')$ I_f com δ_1 ou δ_2 conhecidos.

A mistura multipolar desconhecida é determinada através de testes de χ^2 , com vários valores do spin desconhecido. Esse teste foi feito por um programa de computador através da expressão:

$$\chi^2 = \sum_{j=1}^m \left[\frac{W(\theta_j)^{\text{teor}} - W(\theta_j)^{\text{exp}}}{\sigma(\theta_j)} \right]^2 \quad (\text{II.8}), \text{ com}$$

$W(\theta_j)^{\text{teor}}$ = valor teórico da função correlação angular, dada por (II.2), para uma determinada sequência de spins (I_i, I, I_f).

$W(\theta_j)^{\text{exp}}$ = valor experimental obtido para a função anterior, por (II.6),

$\sigma(\theta_j)$ = erro estatístico dado por:

$$\sigma(\theta_j) = \sqrt{W(\theta_j)^{\text{exp}}} \quad (\text{II.9})$$

II-3 - Testes Experimentais

O desempenho dos dois conjuntos foi testado com medidas de correlações angulares e meias-vidas ⁽¹⁹⁾ de nuclídeos cujos valores são bem determinados, como ⁶⁰Ni, ⁷⁵As e ¹⁸¹Ta.

Para a correlação integral do ⁶⁰Ni e ⁷⁵As, foram utilizados os detetores de Ge(Li) e NaI(Tl) descritos em (II-1.2), acoplados ao sistema eletrônico (II-1.4). A resolução ótima na unidade de coincidências foi de 70 nseg. A tabela 2 mostra que os resultados obtidos concordam com as referências indicadas; e a fig. 5 mostra a curva ajustada para o polinômio W(θ) da sequência 1173 - 1332 KeV do ⁶⁰Ni.

Tabela 2

a. ⁷⁵As.

cascata	A ₂₂	A ₄₄	referência
121-280 KeV	-0,407 [±] 0,05	-0,024 [±] 0,008	este trabalho
	-0,404 [±] 0,004	-0,009 [±] 0,008	(20)
136-264 KeV	-0,023 [±] 0,005	-0,009 [±] 0,007	este trabalho
	-0,030 [±] 0,003	-0,004 [±] 0,006	(20)

b. ⁶⁰Ni

cascata	A ₂₂	A ₄₄	referência
1173-1332 KeV	0,098 [±] 0,004	0,0142 [±] 0,005	este trabalho
	0,1020	0,009	teórico

O teste do sistema diferencial foi feito com o ^{181}Ta , cuja meia-vida do nível a 482 KeV é bem determinado. Utilizou-se dois cristais de NaI(Tl) acoplados a fotomultiplicadoras rápidas RCA, e o sistema (II-1.5). O valor obtido ($T_{1/2}=10,8 \pm 0,3$ nseg) concordou bem com a ref. (21) ($T_{1/2}=10,6$ nseg). O "prompt", neste caso, foi obtido com fontes de ^{22}Na radioativo, nas energias das transições do ^{181}Ta .

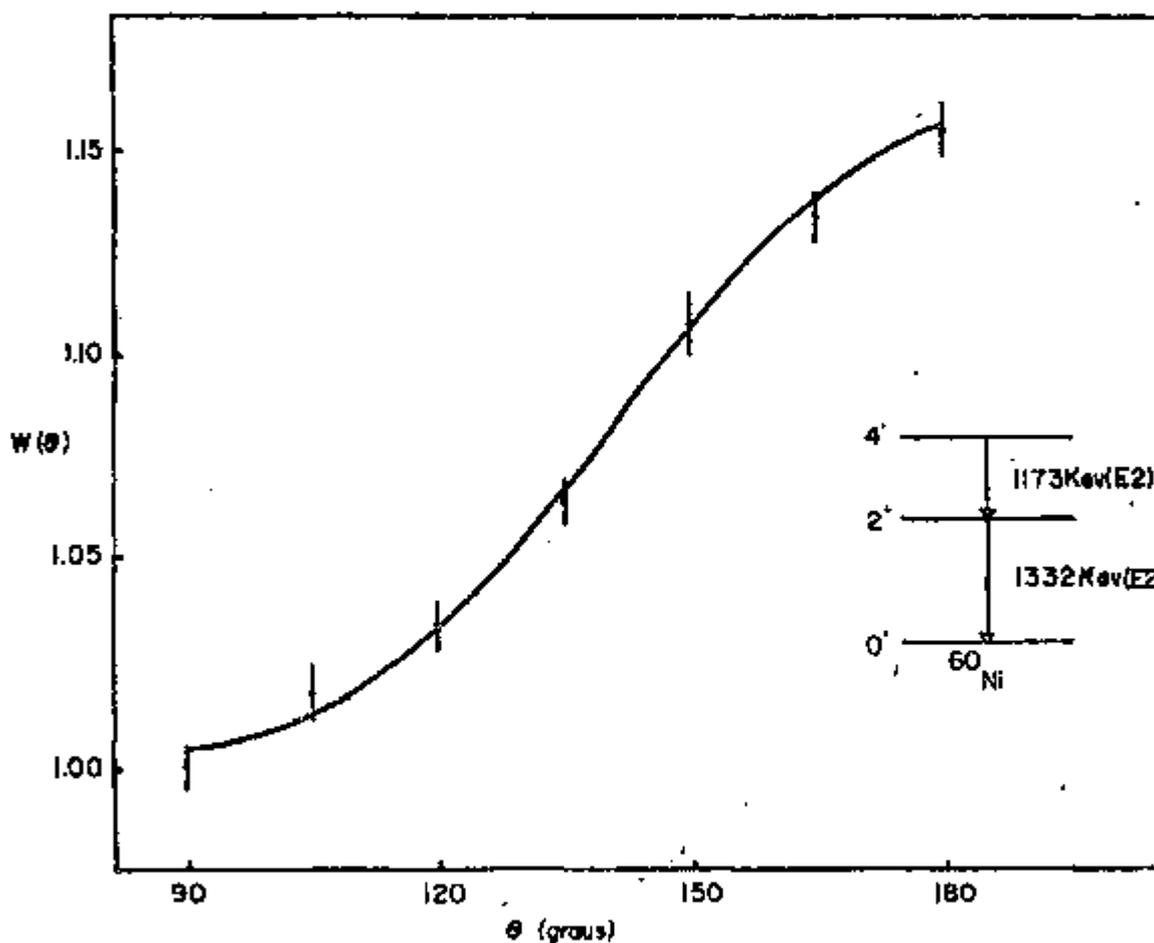


Fig.5 - Resultado da medida $W(\theta)$ para a cascata 1173-1332 KeV no ^{60}Ni .

C A P Í T U L O

III

"CORRELAÇÃO ANGULAR DO ^{71}Ga ".

III-1 Introdução

Nos últimos anos o núcleo ^{71}Ga tem sido objeto de vários estudos experimentais através de diversas técnicas: decaimento β (22) (23) (24) (25); ressonância nuclear fluorescente (26), reações nucleares $(n, n'\gamma)$ (27), $(^3\text{He}, d)$ (28), $(\alpha, \alpha'\gamma)$ (29); excitação Coulombiana (30); assim como a correlação angular gama-gama (31) (32). A concordância quanto ao esquema de energia é boa, entretanto, as medidas de correlações angulares foram efetuadas com detectores a NaI(Tl), os quais não conseguem resolver todas as transições gama do espectro complexo a baixa energia desse núcleo, e além disso tais medidas foram realizadas antes do estudo detalhado do esquema de níveis de Zoller e outros (24).

Na parte III - 2 deste capítulo são dados alguns detalhes importantes da técnica de medidas complementando aqueles do capítulo II. Na parte III - 3, inicialmente são apresentados os dados experimentais já conhecidos do ^{71}Ga e de interesse para a correlação angular, e a seguir as presentes medidas da função correlação angular para as sequências de radiações gama - 386-142, 386-596, 386-1107, 386-620, 753-386, 386-(596)-121 (596 KeV não observada), 386(620)-487, 386(142)964, 386(596)512, 596-512 e 620-487 KeV, as quais permitiram associar spins aos níveis envolvidos, e determinar as multipolaridades das transições entre esses níveis.

Na parte III - 4 é descrita a medida do limite superior

da meia-vida ($T_{1/2}$) do nível a 1494 KeV em comparação aos valores de outros autores.

III-2 - Técnica Experimental

As transições gama do ^{71}Ga foram estudadas através do decaimento $^{71\text{m}}\text{Zn} \xrightarrow[4,1 \text{ h}]{\beta^-} ^{71}\text{Ga}$, e a fonte radioativa de $^{71\text{m}}\text{Zn}$ foi obtida por reação (n, γ) de 5 mg de ZnO , enriquecido a 67,6% de ^{70}Zn , no reator do Instituto de Energia Atomica de São Paulo, com irradiações de duas horas em fluxo de 2×10^{13} n/seg.cm². As únicas impurezas detetáveis foram $^{69\text{m}}\text{Zn}$ e ^{65}Zn , as quais não perturbaram a medida.

As vidas-médias muito pequenas (<150 pseg)⁽²⁹⁾ dos níveis envolvidos permitiram utilizar amostras em forma de pó - sem que houvesse perturbações da correlação. Além disso, devido ao pequeno tamanho das mesmas, negligenciámos as correções para efeito de absorção e tamanho finito da fonte.

O arranjo experimental utilizado foi o descrito em II-1.3 e II-1.4 com detetores de Ge(Li) e NaI(Tl) discutidos em II-1.2.

As figuras 7, 6a e 6d mostram o esquema de decaimento parcial do ^{71}Ga e os espectros gama simples, obtidos, com detetores de Ge(Li) e NaI(Tl), respectivamente. Inicialmente selecionou-se a transição de 386 KeV ("gate") no canal do detetor a NaI(Tl) (fig. 6d) com o segundo canal Ge(Li) totalmente "aberto", obtendo-se simultaneamente coincidências com as transições de 121, 142, 487, 512, 596, 620, 753, 964 e 1107 KeV conforme se verifica na fig. 6b.

A seleção posterior de "gate" incluindo ambas as transições 596 e 620 KeV, permitiu coincidências com as energias de 512 e 487 KeV, respectivamente (fig. 6c). Apesar do detetor a

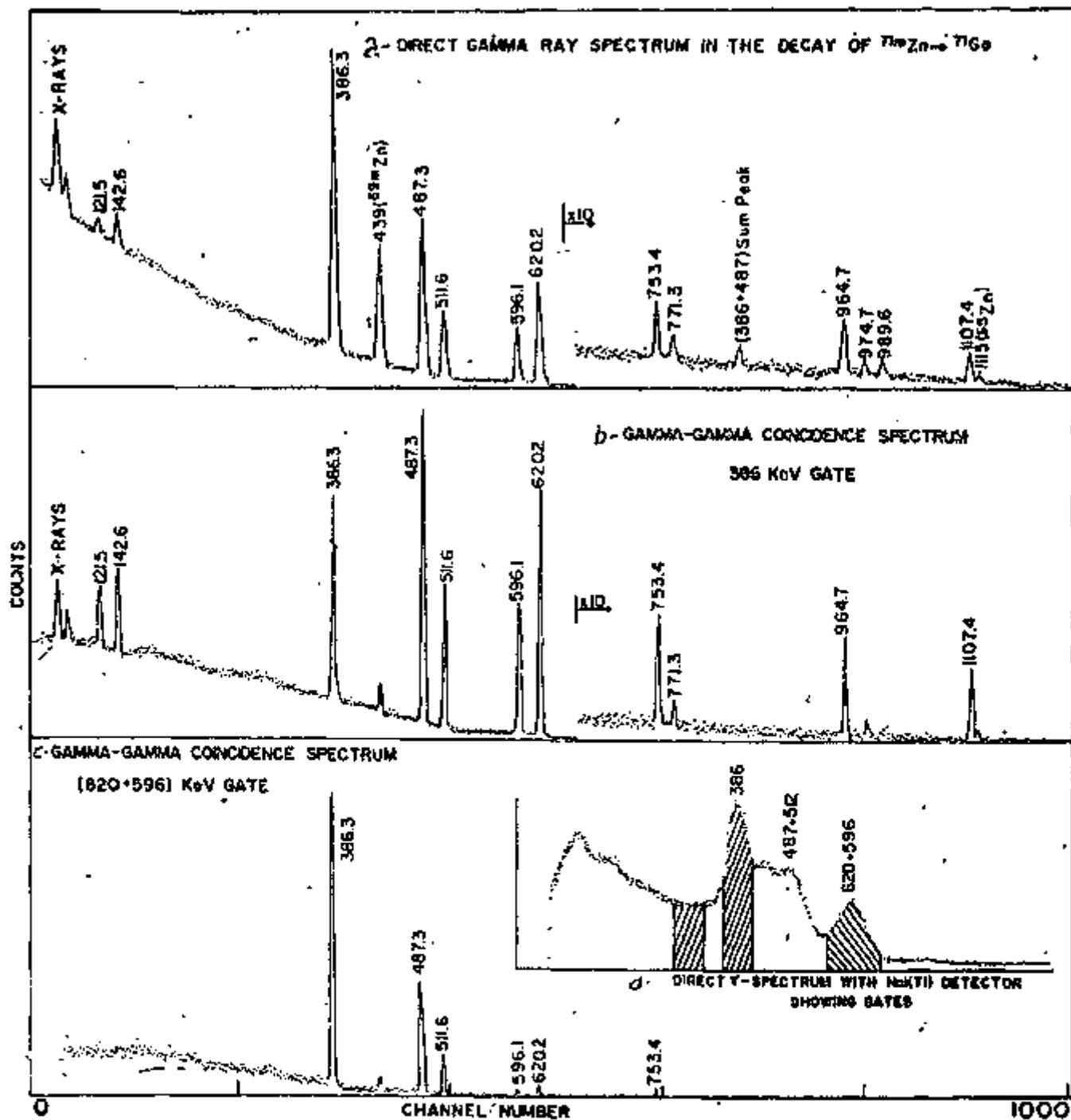


Fig. 6 - Espectro gama simples (Ge(Li) e NaI(Tl)) e de coincidências.

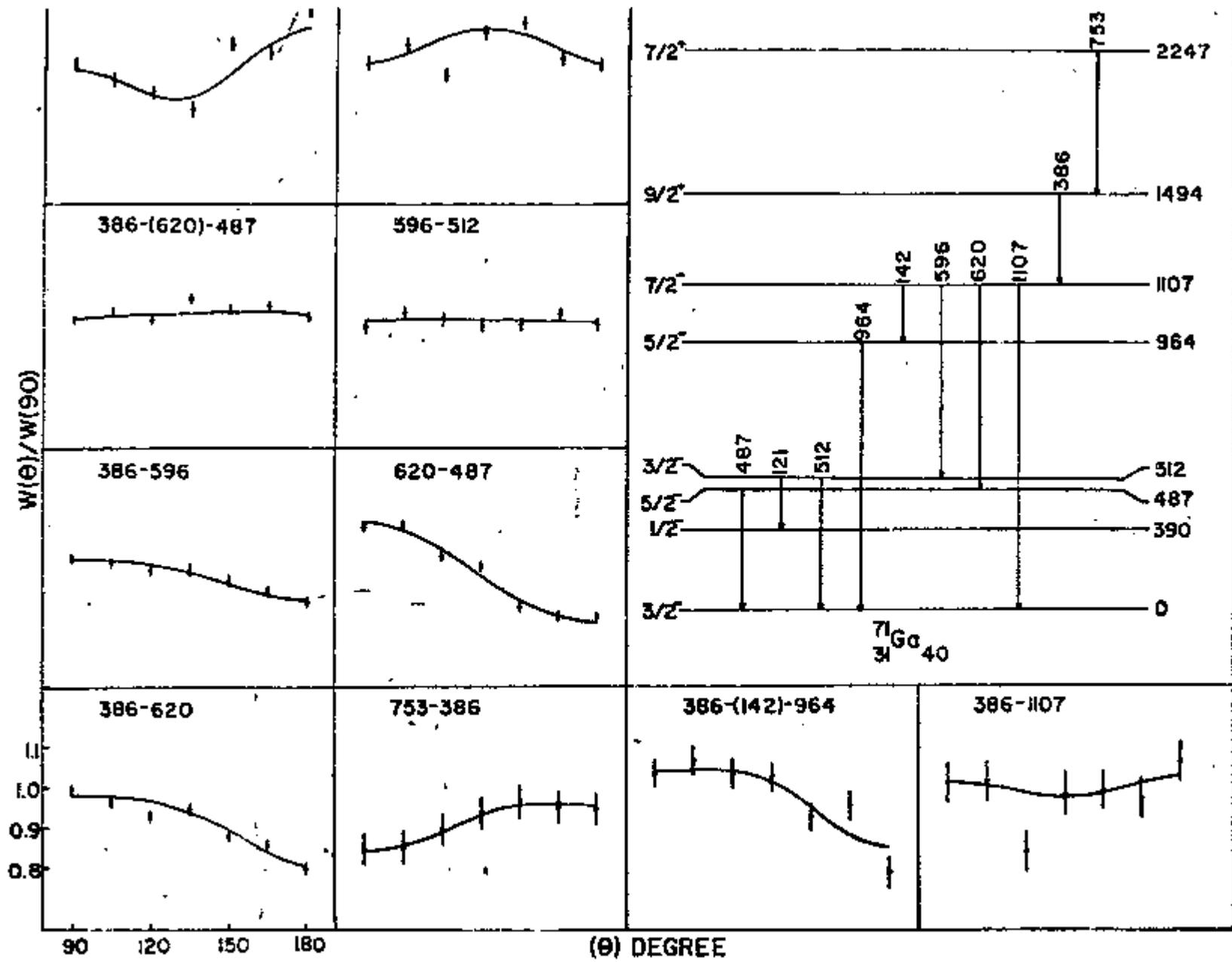


Fig. 7 - Esquema parcial do decaimento do ^{71}Ga e curvas da função correlação angular medidas neste trabalho.

NaI(Tl) não ter resolvido as transições do segundo "gate", não houve ambiguidade no espectro de coincidências desde que nenhuma delas está em coincidência simultânea com as transições a 512 e 487 KeV, como pode ser verificado no esquema da fig. 7.

O cálculo do número de coincidências verdadeiras foi feito conforme II - 2, sendo que as acidentais foram menores que 1,5% e a contribuição Compton (20%) só afetou o espectro de coincidências do "gate" de 386 KeV.

A função correlação angular foi medida em um total de 7 ângulos (90, 105, 120, 135, 150, 165 e 180) nos dois quadrantes do espectrometro, sendo que o número de fontes radioativas necessárias para um conjunto de medidas foi variavel (de 5 a 8), tendo sido possível contagens de 6 hs contínuas para cada uma delas.

III-3 - Resultados Experimentais da Correlação Angular

III-3.1 Dados Anteriores do ^{71}Ga

Nos trabalhos ⁽²²⁾-⁽³²⁾ referidos no parágrafo anterior o esquema de desintegração ⁽²⁴⁾ do ^{71}Ga é bem determinado, assim como os spins e paridades do seu estado fundamental ($3/2^-$) e do estado metaestável do ^{71}Zn ($9/2^-$) ⁽³³⁾. Outros dados referentes a esse núcleo e de interesse direto para a Correlação Angular encontram-se na tabela 3.

T A B E L A 3

Energia ^{a)} do nível (KeV)	(He^3, d) ^{b)} ℓ_p	J^π	
		$(n, n'\gamma)$ ^{c)}	Decaimento β ^{d)}
0	1	1/2	$3/2^-$
390	1	1/2	$1/2^-$
487	3	5/2	$5/2^-$
512	1	3/2	$3/2^-$
964		7/2	$5/2^-$
1107		7/2(9/2)	$7/2^-$
1494	4	7/2(9/2)	$9/2^+$
2247			$(7/2^+)$

a. energia do nível conforme ref. 22, 23, 24 e 25.

b. ℓ_p é o momento angular do proton transferido (ref.28)

c. J^π assinalado de acordo com a ref. 27.

d. J^π assinalado por Zoller e outros (ref. 24).

Na tabela anterior, pode-se verificar que a maioria dos níveis tem os valores de I^π confirmados pelas ref. 24, 27 e 28: 390(1/2⁻), 487(5/2⁻), 512(3/2⁻) e 1494KeV(9/2⁺), enquanto que, para o nível a 1107 KeV, Zoller e outros⁽²⁴⁾, sugerem 7/2⁻ e Velkley e outros⁽²⁷⁾ 7/2 com possibilidade de 9/2. Quanto ao nível a 964 KeV esses autores discordam completamente. Tais casos serão analisados com maiores detalhes no próximo parágrafo.

III-3.2 - Dados obtidos neste trabalho

O ajuste dos dados experimentais (coincidências verdadeiras $w^{\text{exp}}(\theta)$) por mínimos quadrados da função correlação angular (II.2), conforme descrito em II-2, permitiu obter-se os coeficientes A_{22} e A_{44} . A tabela 4 mostra os presentes valores (corrigidos para ângulo sólido) e os de outros autores, e a fig.7 as curvas da função correlação angular para as sequências envolvidas.

Os coeficientes A_{KK} encontrados nas ref. 32 e 31, diferem em alguns casos dos encontrados neste trabalho, isto porque nas duas ref. os autores utilizaram detetores a NaI(Tl), os quais não resolveram as transições 487 e 512 KeV e ainda 596 e 620 KeV, dando origem a interferências entre as correlações.

A - Correlações 386-596 KeV, 753-386 KeV e 386-1107 KeV

Foi assumido que a transição 596 KeV (1107 → 512 KeV) é quadrupolar pura ($\delta(596) = 0$) com $I(1107) = 7/2$ e $I(512) = 3/2$; o que concorda com as medidas de espalhamento ($\eta, n'\gamma$) e log ft. A análise por χ^2 (expressão II.8) da cascata 386-596 KeV foi feita com as sequências de spins 7/2-7/2-3/2 e 9/2-7/2-3/2, resultando as curvas da fig.8.

RESULTADOS DAS MEDIDAS DA CORRELAÇÃO DIRECIONAL DE TRANSIÇÕES γ NO ^{71}Ga .

CASCATA GAMA (KeV)	Transição Selecionada (KeV)	A_{22}	A_{44}	Transição (KeV)	Razão da mistura multipolar $\delta(E2/M1)$
386-(596)-121	386	0,031 \pm 0,014	0,165 \pm 0,025	121	-0,20 \pm 0,3 - 2,4
386-142	386	0,039 \pm 0,011	-0,116 \pm 0,019	142	0,04 \pm 0,04
386-(620)-487	386	0,023 \pm 0,006	-0,039 \pm 0,010	487	0,12 \pm 0,05
		a) ≈ 0	$\approx 0^{**}$		
386-(596)-512	386	-0,042 \pm 0,013	-0,012 \pm 0,025	512	-0,08 \pm 0,16
386-596	386	-0,062 \pm 0,009	-0,032 \pm 0,013	386	-0,003 \pm 0,014
		a) -0,090 \pm 0,017	0,030 \pm 0,030 ⁺⁺		
386-620	386	-0,107 \pm 0,006	-0,043 \pm 0,010	620	1,3 \pm 0,8 - 0,5
		b) -0,205 \pm 0,017	-0,064 \pm 0,028		
753-386	386	0,093 \pm 0,029	-0,053 \pm 0,046	753	0,0 \pm 0,01
386-(142)-965	386	-0,112 \pm 0,032	-0,107 \pm 0,045	965	0,60 \pm 0,9 - 0,3
386-1107	386	-0,010 \pm 0,036	0,056 \pm 0,061		
		b) -0,017 \pm 0,019	0,096 \pm 0,019		
620-487	620	-0,199 \pm 0,007	0,007 \pm 0,010	487	-0,04 \pm 0,08
		a) -0,140 \pm 0,017	0,080 \pm 0,030 ^{**}		
		b) 0,223 \pm 0,029	0,07 \pm 0,04		
596-512	596	-0,003 \pm 0,013	0,006 \pm 0,020	512	-0,20 \pm 0,05

a) ref. 31 (66Sc 18)

** valores para as transições combinadas 487 + 512 KeV.

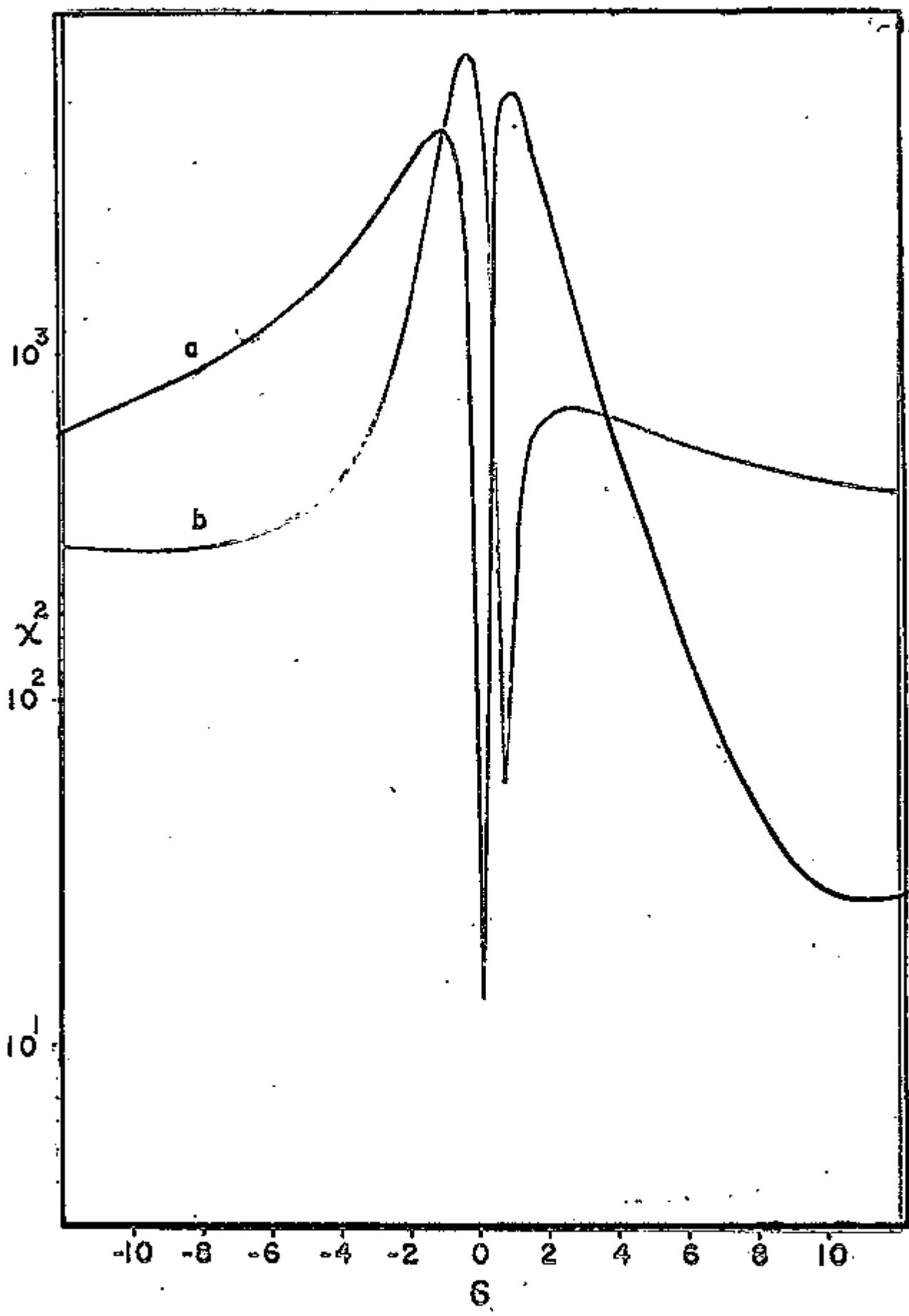


Fig. 8 - Curvas de χ^2 em função de δ (expressão II.8) para a cascata 386-596 KeV do ^{71}Ga com as sequências de spins: a) $9/2(1,2)7/2(2)3/2$ e b) $7/2(1,2)2/2(2)3/2$.

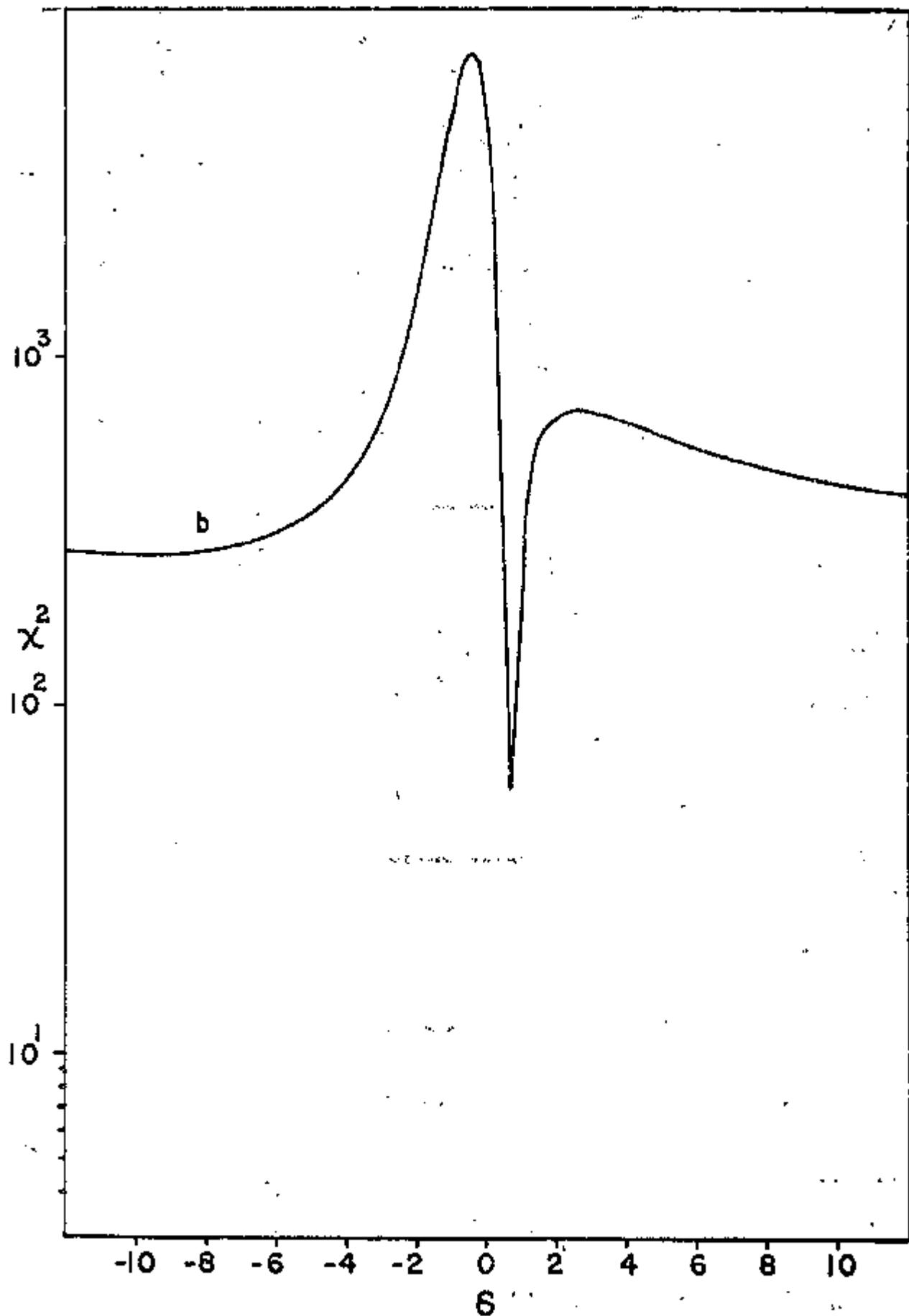


Fig. 8 - Curvas de χ^2 em função de δ (expressão II.8) para a cascata 386-596 KeV do ^{71}Ga com as seqüências de spins parciais $9/2(1, 2) 7/2(2) 3/2(1) 1/2(1, 2) 1/2(2) 3/2$.

A primeira sequência de spins resultou em grande mistura de quadrupolo em relação a dipolo para a transição de 386 KeV. Entretanto, de acordo com Velkley e outros⁽²⁷⁾, essa transição é predominantemente dipolar e além disso, Zoller e outros⁽²⁴⁾ assinalam $I^\pi(1494) = 9/2^+$ o que confirma a segunda sequência com:

$\delta \left(\frac{M2}{E1} \right) = -0,003 \pm 0,014$, para a transição de 386 KeV.

Os valores obtidos para $A_K(386)$ (tab.4) permitiram uma análise semelhante à anterior, para a cascata 753-386 KeV com as sequências de spins: $7/2^- - 9/2^- - 7/2^-$ e $5/2^- - 9/2^- - 7/2^-$, sendo que no primeiro caso, os resultados foram mais consistentes, obtendo-se:

$\delta(753) = 0,01 \pm 0,01$ para a sequência $7/2^+(M1) - 9/2^+(E1) - 7/2^-$

A mesma análise não pode ser efetuada com a cascata 386-1107 KeV devido à existência de duas transições com energias próximas a 1107 KeV (vide esquema de níveis na ref.24), em coincidência com a transição de 386 KeV. Entretanto, aceitando-se o spin $7/2^-$ para o nível a 1107 KeV, a sua deexcitação para o estado fundamental ($I^\pi = 3/2^-$) deve ser quadrupolar pura.

B - Correlações 386-620 KeV e 620-487 KeV

Utilizando-se os valores $A_K(386)$ obtidos nas medidas anteriores, a sequência 386-620 KeV foi analisada com três conjuntos de spins:

$9/2^- - 7/2^- - 3/2^-$, $9/2^- - 7/2^- - 5/2^-$ e $9/2^- - 7/2^- - 7/2^-$

para os níveis a 1404, 1107 e 487 keV, respectivamente. Curvas semelhantes à da fig.8 permitiram determinar os valores de $\delta(620)$ para cada uma das sequências de spins acima. O valor $I = 3/2$ para o nível a 487 KeV foi eliminado por resultar em grande mistura octupolar em relação à quadrupolar, o que é inaceitável. A escolha entre as duas últimas possibilidades ($I(487) = 5/2$ ou $7/2$) foi feita com o auxílio da cascata 620-487 KeV. O mínimo χ^2 foi obtido associando-se o valor $5/2$ para o spin procurado. Para as misturas multipolares encontrou-se:

$$\delta(487) = 0,04 \pm 0,08 \text{ e } \delta(620) = 1,3 \begin{matrix} + 0,8 \\ - 0,5 \end{matrix} \text{ para a sequência}$$

$$7/2^- (M1 + E2), 5/2^- (M1 + E2) 3/2^-.$$

Pode-se verificar na tabela 3 que os resultados acima são compatíveis com os de outros autores.

C - Correlação 386 (620) 487 KeV

Todos os parâmetros envolvidos na Correlação Tripla 386 (620) 487 KeV (620 KeV não é observado) foram determinados nas medidas das sequências anteriores, o que permitiu testar a consistência do experimento.

A correlação (1,3) acima foi analisada de maneira análoga às anteriores (A e B) através das expressões (I.6) e (I.7) e a hipótese da sequência $9/2^- (E1) 7/2^- (M1 + E2) 5/2^- (M1 + E2) 3/2^-$.

O resultado para a mistura multipolar da terceira transição foi:

$$\delta(487) = 0,12 \pm 0,05$$

o que é compatível com o encontrado na análise das correlações

386-620 KeV e 620-487 KeV. Assim, pode-se associar aos níveis envolvidos os seguintes spins e paridades:

$$I^{\pi} (1494) = 9/2^{+}$$

$$I^{\pi} (1107) = 7/2^{-}$$

$$I^{\pi} (487) = 5/2^{-}$$

D - Correlações 386-142 KeV e 386(142)964 KeV

Zoller e outros assinalam $I^{\pi} = 5/2^{-}$ para o nível a 964 KeV do ^{71}Ga em discordância com Velkley e outros que propõem $I = 7/2$.

Embora o valor de Zoller seja mais razoável quando se verifica a transição de 575 KeV para o nível a 390 KeV ($I^{\pi} = 1/2^{-}$), os resultados das correlações 386-142 KeV e 386(142) 964 KeV não permitiram selecionar um entre os dois valores de I propostos para o nível em consideração. Supondo o assinalamento de Zoller, as duas sequências acima permitiram retirar os seguintes resultados:

$$\text{Correlação } 386-142 \text{ KeV } \delta(142) = 0,04 \pm 0,04$$

$$\text{Correlação } 386(142) \text{ } 964 \text{ KeV } \delta(964) = 0,60 \begin{matrix} + 0,9 \\ - 0,3 \end{matrix}, \text{ isto é}$$

as duas transições tem o dipolo magnético como predominante, - para o conjunto de spins e paridades: $9/2^{+}$ (E1) $7/2^{-}$ (E2 + M1) $5/2^{-}$ e $9/2^{+}$ (E1) $7/2^{-}$ (E2 + M1) $5/2^{-}$ (E2 + M1) $3/2^{-}$, respectivamente.

E - Correlações 596-512 KeV, 386 (596)512 KeV e 386(596)121 KeV

Nas sequências acima os únicos parâmetros a determinar são as razões das misturas multipolares das transições 121 KeV e 142 KeV, todos os outros foram medidos nas correla -

ções anteriores.

A cascata 386 (596) 512 KeV foi afetada pela radiação de aniquilação de pósitrons (511 KeV) de impurezas contidas no invólucro de sílica da amostra, embora, a cascata 596-512 KeV não o tenha sido. Devido a essa interferência as contagens a 165° e 180°, da correlação afetada, foram eliminados.

Os resultados finais foram:

- Sequência 386 (596) 121 KeV com a característica

$$9/2^+ (E1) \ 7/2^- (E2) \ 3/2^- (M1 + E2) \ 1/2^-$$

$$\delta(121) = -0,20 \pm 0,3 \\ - 2,4$$

- Sequência 596 - 512 KeV com a característica

$$7/2^- (E2) \ 3/2^- (M1 + E2) \ 3/2^-,$$

$$\delta(512) = -0,20 \pm 0,05$$

- Sequência 386 (596) 512 KeV com a característica

$$9/2^+ (E1) \ 7/2^- (E2) \ 3/2^- (M1 + E2) \ 3/2^-,$$

$$\delta(512) = -0,08 \pm 0,16$$

III - 4 Meia Vida do Nível a 1494 KeV

A meia-vida $T_{1/2}$ do nível a 1494 KeV foi medida anteriormente por Khodzaev⁽³²⁾ e Li e Monaro⁽²³⁾, pelo método de coincidências atrasadas β - γ , e os valores encontrados foram:

$$\text{Ref. 32} - T_{1/2} \leq 150 \text{ pseg}$$

$$\text{Ref. 23} - T_{1/2} = (154 \pm 15) \text{ pseg}$$

A tentativa para medida da meia-vida desse nível foi feita pelo método de coincidências atrasadas gama-gama com o

sistema eletrônico diferencial descrito em II-1.5 e detectores plásticos, dopados com 5% de chumbo, acoplados a fotomultiplicadoras rápidas descritas em II-1.2.

Selecionou-se em um dos canais ("start") a transição - de 753 KeV e no outro ("stop") a energia de 386-KeV. O "prompt" foi obtido com uma fonte de ⁶⁰Co nas energias da sequência - 753 - 386 KeV.

A introdução de linhas com atrasos conhecidos no canal de "stop" permitiu determinar a resolução em tempo e a calibração do sistema.

O nosso resultado é $T_{1/2}$ (1494 KeV) \approx 150 pseg, o que concorda com as referências (23) e (32).

C A P Í T U L O

I V

"CORRELAÇÃO ANGULAR DO ^{69}Ga "IV - 1 Introdução

O esquema de níveis do núcleo ^{69}Ga tem sido estudado extensivamente, e os dados obtidos até 1968 encontram-se na ref. 34. Os níveis e as transições gama de interesse para este trabalho encontram-se na fig. 9.

Similarmente ao ^{71}Ga , diversas técnicas experimentais tem sido aplicadas ao ^{69}Ga : decaimento β (34) (35); reações nucleares ($^3\text{He}, d$) (28) (36), (d, n) (37) (38), (n, p) (27) e (α, γ) (29); excitação coulombiana (30); ressonância nuclear - fluorescente (26) (39); assim como captura radioativa de prótons (40) e correlação angular gama-gama (31) (32).

Os resultados das correlações angulares das referências (31) e (32) foram prejudicados pela resolução insuficiente dos detetores utilizados (cristais de NaI(Tl)).

Na primeira parte deste capítulo apresentamos os detalhes mais importantes do procedimento experimental e em seguida fazemos um resumo dos parâmetros de interesse para a correlação angular, conhecidos antes deste trabalho. Na última parte, é feita a análise das presentes medidas da função correlação angular para as sequências de transições gama: 553-318, 787-318, 1206-318, 234-872, 1051-872, 1349-574 e 587-1336 KeV.

A combinação desta e de outras medidas permitiu asso-

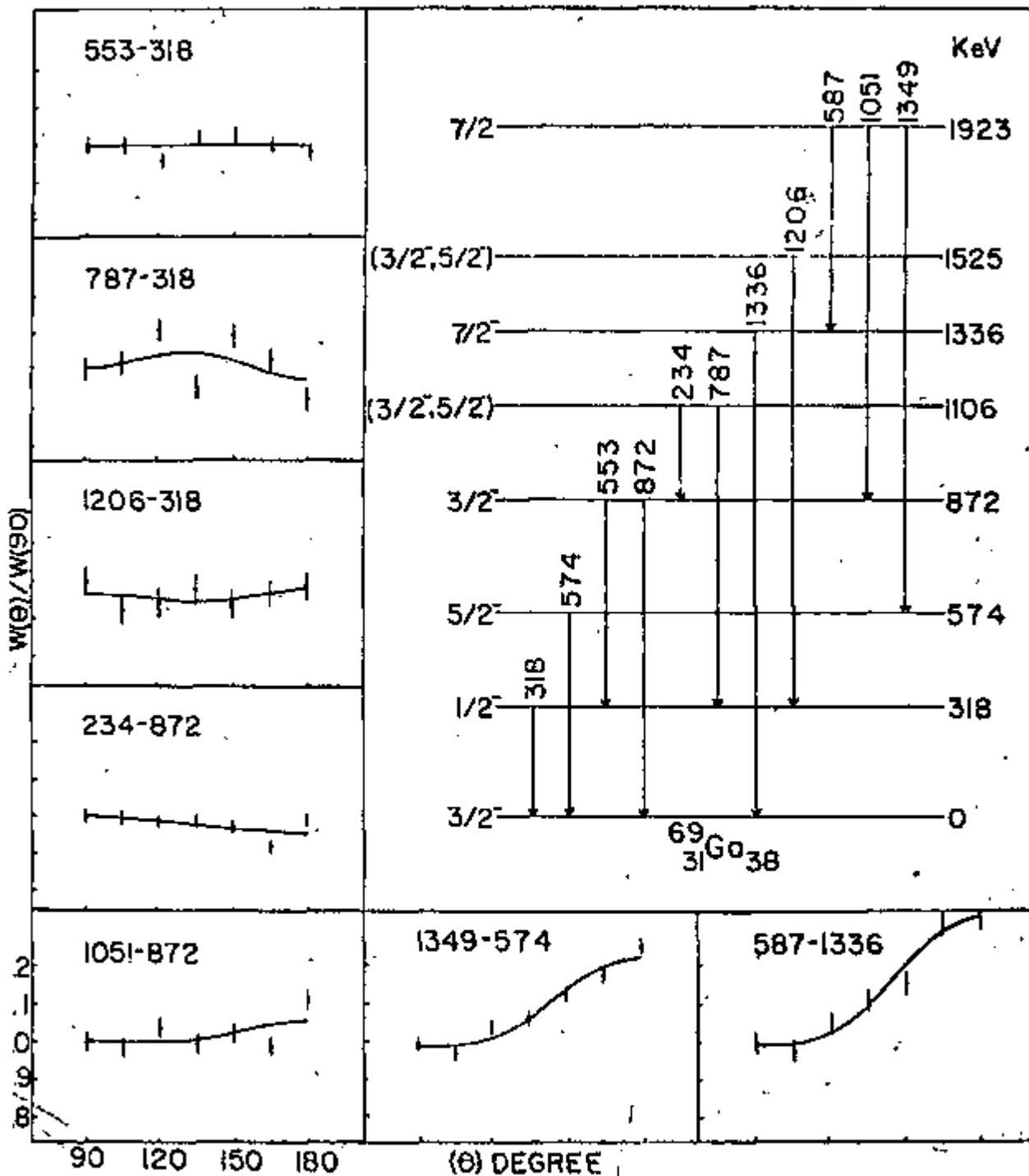


Fig. 9 - Esquema parcial de níveis do núcleo ^{69}Ga , e curvas da função correlação angular, das sequências de transições gama medidas neste trabalho.

ciar spins e paridades aos níveis: 318($1/2^-$), 574($5/2^-$), 872 ($3/2^-$), 1106($3/2^-$, $5/2^-$), 1336($7/2^-$) e 1923 KeV ($7/2^-$). Além disso, foi possível determinar as razões das misturas multipolares de uma série de transições envolvendo os níveis acima, conforme discussão no parágrafo IV-3 (tabela 6).

TABELA 6

RESULTADOS DAS MEDIDAS DA CORRELAÇÃO DIRECIONAL DE TRANSIÇÕES γ NO ^{69}Ga

cascata gama (KeV)	transição selecionada (KeV)	A_{22}	A_{44}	Razão da mistura multipolar	
				transição (KeV)	$\delta(E2/M1)$
553-318	318	$0,015 \pm 0,014$	$-0,016 \pm 0,022$		
787-318	318	$-0,001 \pm 0,024$	$-0,070 \pm 0,037$		
1206-318	318	$0,003 \pm 0,032$	$0,039 \pm 0,051$		
234-872	872	$-0,030 \pm 0,009$	$0,001 \pm 0,014$	234	$0,28 \pm 0,04^{\text{a}}$
					$0,08 \pm 0,02^{\text{b}}$
1052-872	872	$0,007 \pm 0,023$	$-0,042 \pm 0,040$	1052	$0,0 \pm 0,10^{\text{c}}$
1349-574	1349	$0,150 \pm 0,015$	$0,053 \pm 0,083$	1349	$0,13 \pm 0,03$
587-1336	1336	$0,208 \pm 0,023$	$0,075 \pm 0,120$	587	$-1,10 \pm 0,08$

a) com spin 3/2 para o nível a 1106 KeV.

b) com spin 5/2 para o nível a 1106 KeV.

c) este valor é para $\delta\left(-\frac{M3}{E2}\right)$

IV-2 - Técnica Experimental

As transições gama do ^{69}Ga foram estudadas através do decaimento $^{69}\text{Ge} \xrightarrow[\beta^+]{38\text{h}} ^{69}\text{Ga}$, e a fonte radioativa de ^{69}Ge foi obtida por reação (γ, n) em Ge natural (800 mg) no acelerador linear do IFUSP. Irradiações durante 25 horas com bremsstrahlung de 70 MeV (corrente aproximada de 0,1 μA) foram suficientes.

O espectro simples (com detetor a Ge(Li)), obtido imediatamente após a irradiação, mostrou a existência do isótopo ^{72}Ga ($T_{1/2} = 14$ h) produzido por reação (γ, p) . Esse inconveniente foi eliminado estocando a amostra durante, 35 horas, antes do início da experiência. As vidas médias pequenas (<150 pseg) ⁽²⁹⁾⁽³⁹⁾ dos níveis envolvidos permitiram a utilização de amostras em pó sem que houvesse perturbações da correlação angular.

As figuras 10a e 10e mostram os espectros simples, nas regiões de interesse, obtidos com detetores a Ge(Li) e NaI(Tl), respectivamente, com o mesmo arranjo experimental utilizado nas correlações do ^{71}Ga .

A seleção da transição de 318 KeV (fig. 10e), no canal do NaI(Tl), permitiu obter simultaneamente coincidências com as transições de 553,787 e 1206 KeV, como se verifica na figura 10b.

Outras coincidências foram obtidas com a seleção, em duas etapas, das transições de 872 KeV (234-872 e 1051-872 KeV na fig. 10c) e 1336 + 1349 KeV (1349-574, 587-1336 KeV na fig. 10d), de maneira idêntica à anterior.

As coincidências acidentais e as contribuições de espalhamento Compton das altas energias foram desprezíveis em relação ao erro estatístico.

A função correlação angular foi medida em um total de sete ângulos, nos dois quadrantes do espectrômetro, em passos de 15° a partir de 90° .

IV-3 - Resultados experimentais da correlação angular

IV-3.1 Dados anteriores do ^{69}Ga

Há razoável quantidade de informações sobre os cinco primeiros estados nucleares (tabela 5), em consideração neste trabalho (0,318, 574, 872 e 1106 KeV), embora o mesmo não ocorra com os dois últimos (1136 e 1923 KeV).

O spin do estado fundamental do ^{69}Ga foi determinado como sendo $3/2^{(41)}$, e a paridade é negativa com base no seu momento magnético⁽⁴¹⁾ e na transição permitida $^{69}\text{gZn}(1/2^-) \xrightarrow{\beta^-} ^{69}\text{Ga}(33)$.

Os dados da tabela 5 confirmam o valor $I^\pi = 3/2^-$ para o estado fundamental.

O nível a 872 KeV tem seu spin e paridade assinalados como $5/2^-$ por Zoller e outros⁽³⁴⁾, e $3/2^-$ por Raman e Couch⁽³⁵⁾, sendo que este último concorda com os resultados de reações nucleares ($^3\text{He},d$)⁽²⁸⁾⁽³⁶⁾ e $(n,n'\gamma)$ ⁽²⁷⁾. Raman e Couch mostram que esse nível é populado pelo decaimento β^- do $^{69}\text{gZn}(1/2^-)$ e não pelo $^{69}\text{mZn}(9/2^+)$ como foi proposto por Zoller e outros.

Os resultados dos experimentos de reações nucleares $^{68}\text{Zn}(^3\text{He},d)$ ⁽³⁶⁾ e $^{68}\text{Zn}(d,n)$ ⁽³⁷⁾ mostram um nível a 1100 KeV com $\ell = 1$, identificado por Velkley e outros, e Zoller e outros, como sendo o estado a 1106 KeV, e os últimos propõem $I^\pi(1106) = 3/2^-$. Entretanto, Riccato e David⁽²⁸⁾, e Couch e outros⁽³⁸⁾ identificam a linha a 1100KeV como sendo o estado a 1027 KeV, além disso os primeiros⁽²⁸⁾ mostram que $I^\pi = (1106) = 5/2^-$ também é compatível com as características das transições observadas.

T A B E L A 5

Energia (a) do nível [KeV]	(b) (He ³ , d) l_p	(c) (d, n) l_p	J^π		
			(n, n' γ) (d) + decaimento γ	decaimento β - γ	Ressonância nuclear (g)
0	1	1		3/2 ⁻ (e)	
518	1	1	1/2	1/2 ⁻ (e)	
574	3	3	5/2	5/2 ⁻ (e)	3/2, 5/2
672	1		3/2	5/2 ⁻ (e), 3/2 ⁻ (f)	3/2, 5/2
106	1*	1*	\leq 5/2	3/2 ⁻ (e)	3/2, 5/2
136	(3)		7/2		

- a) Energia do nível conforme ref. (34).
- b), c) l_p é o momento angular do proton transferido conforme referências (28) e (37), respectivamente.
- d) J^π assinalado conforme ref. (27)
- e), f) e g) J^π assinalados por Zoller e outros (34), Raman e Couch (35), Langhoff e Frevert (39), respectivamente.

* vide discussão no texto.

IV-3.2 Dados obtidos neste trabalho

O ajuste por mínimos quadrados dos resultados experimentais das correlações do ⁶⁹Ga, de maneira idêntica à do ⁷¹Ga, permitiu obter-se os coeficientes A_{22} e A_{44} da tabela 6. A fig. 10 mostra as curvas da função correlação angular para cada caso.

As correlações 553-318, 787-318, e 1206-318 KeV, aproximadamente isotrópicas, confirmam o spin 1/2 do nível intermediário (318 KeV); como consequência nenhuma informação sobre as multipolaridades dessas transições pode ser obtida.

A - Correlação 234-872 KeV

A razão da mistura multipolar da transição do nível a 872 KeV para o estado fundamental, foi determinada por vários autores: Langhoff e Frevert⁽³⁹⁾ encontraram $\delta(-\frac{E2}{M1}) < 0,55$ e Nemashkalo e outros⁽⁴⁰⁾ indicam -0,11 e -3,05. A escolha da mistura multipolar que melhor se ajusta foi feita calculando-se a vida-média do nível a 872 KeV, com o auxílio do valor $B(E2) + (872 \text{ KeV} + 0 \text{ KeV}) = 0,0085 e^2 10^{-48} \text{ cm}^4$ (tabela 7) e das expressões IV.1 e IV.2 (suposto o coeficiente de conversão interna desprezível).

$$\tau = \frac{\tau(E2) \delta^2}{1 + \delta^2} I_{\gamma} \quad e \quad (IV.1)$$

$$\tau(E2) = 8,19 \cdot 10^{-14} (\Delta E)^{-5} B(E2) \gamma^{-1} \quad (IV.2)$$

onde:

τ = vida-média em seg.

ΔE = energia do nível em MeV.

$B(E2)$ = probabilidade reduzida de transição quadrupolar elétrica em unidades de $e^2 \cdot \text{cm}^4 \cdot 10^{-48}$

I_{γ} = intensidade relativa da transição γ considerada.

As expressões acima podem ser deduzidas com relativa facilidade através de (I.14) e da definição de τ .

Desse modo, as vidas-médias encontradas foram:

$\delta(E2/M1)$	τ (pseg)
-0,11	0,23
-3,05	17,2

Comparando os valores acima com o medido por Langhoff e Frevert ($0,31 \pm 0,06$ pseg), pqde-se eliminar a segunda possibilidade (-3,05).

A análise da correlação angular 234-872 KeV com as sequências de spins $3/2(1,2)$ $3/2(1,2)3/2$ e $5/2(1,2)3/2(1,2)3/2$ (onde $\delta(E2/M1)_{872} = -0,11$), resultou para a transição de 234 KeV as razões multipolares $0,28 \pm 0,04$ e $0,08 \pm 0,02$, respectivamente.

Embora a correlação angular não tenha permitido eliminar a ambiguidade quanto ao spin, pode-se concluir que a transição 1106 — 872 KeV é predominantemente dipolar.

B - Correlações 1051-872 KeV, 587-1336 KeV e 1348-574 KeV.

As medidas efetuadas por Velkley e outros e Nemashkalo e outros, indicam para a razão da mistura multipolar da transição do nível a 574 KeV, para o estado fundamental, os valores:

$0,03 \leq \delta \leq 0,1$ ou $1,5 \leq \delta \leq 3,5$ e $-0,04$ ou $3,05$ respectivamente.

Analogamente à transição de 872 KeV, o cálculo da vida-média do nível envolvido (com $B(E2)_{574} = 0,00057 \cdot 10^{-48} e^2 \text{ cm}^4$, (da tabela 7) resultou:

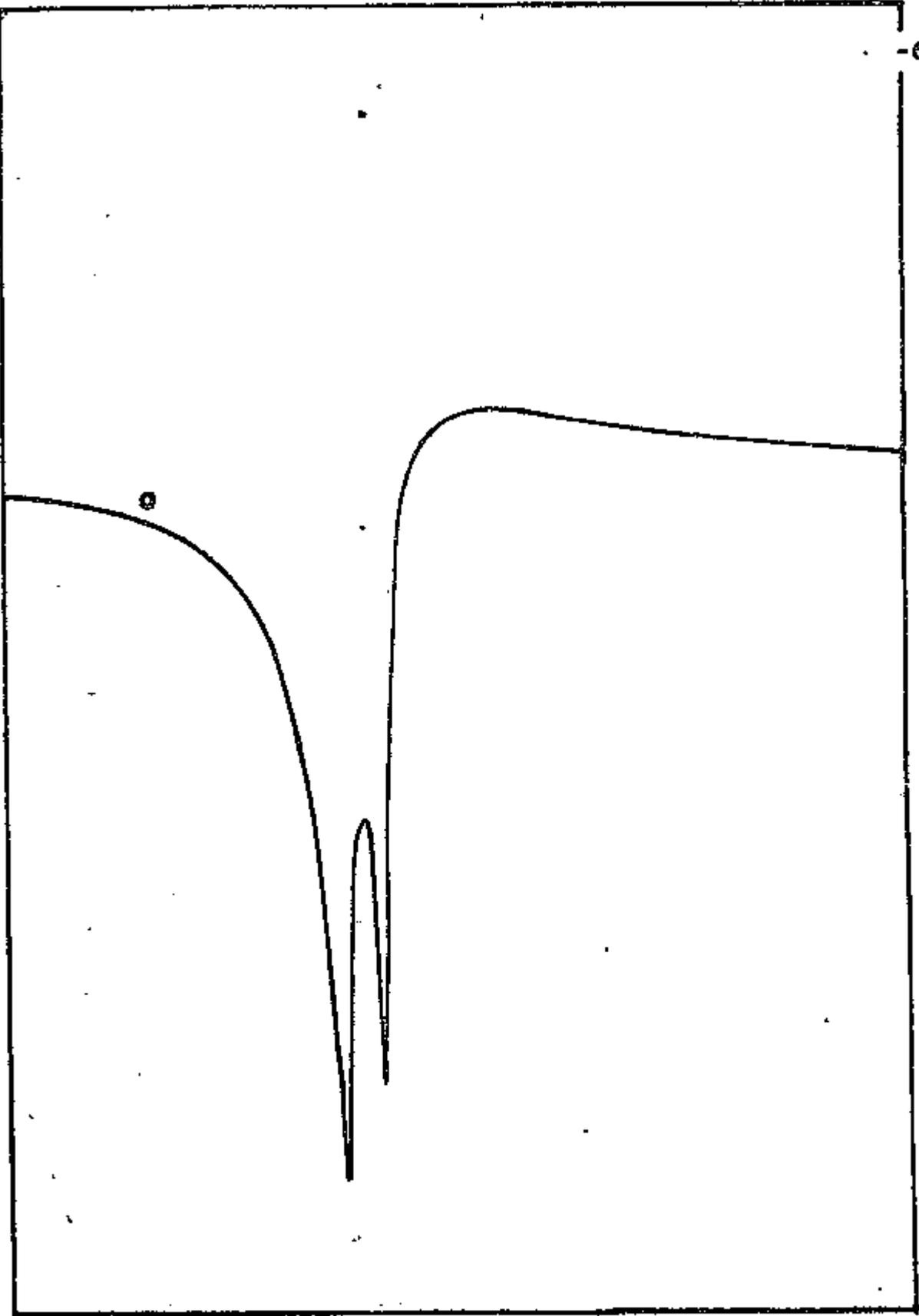
$\delta(E2/M1)$	τ (pseg)
0,03 - 0,1	2-20
1,5 - 3,5	2300-2130
-0,04	3,7
3,05	2080

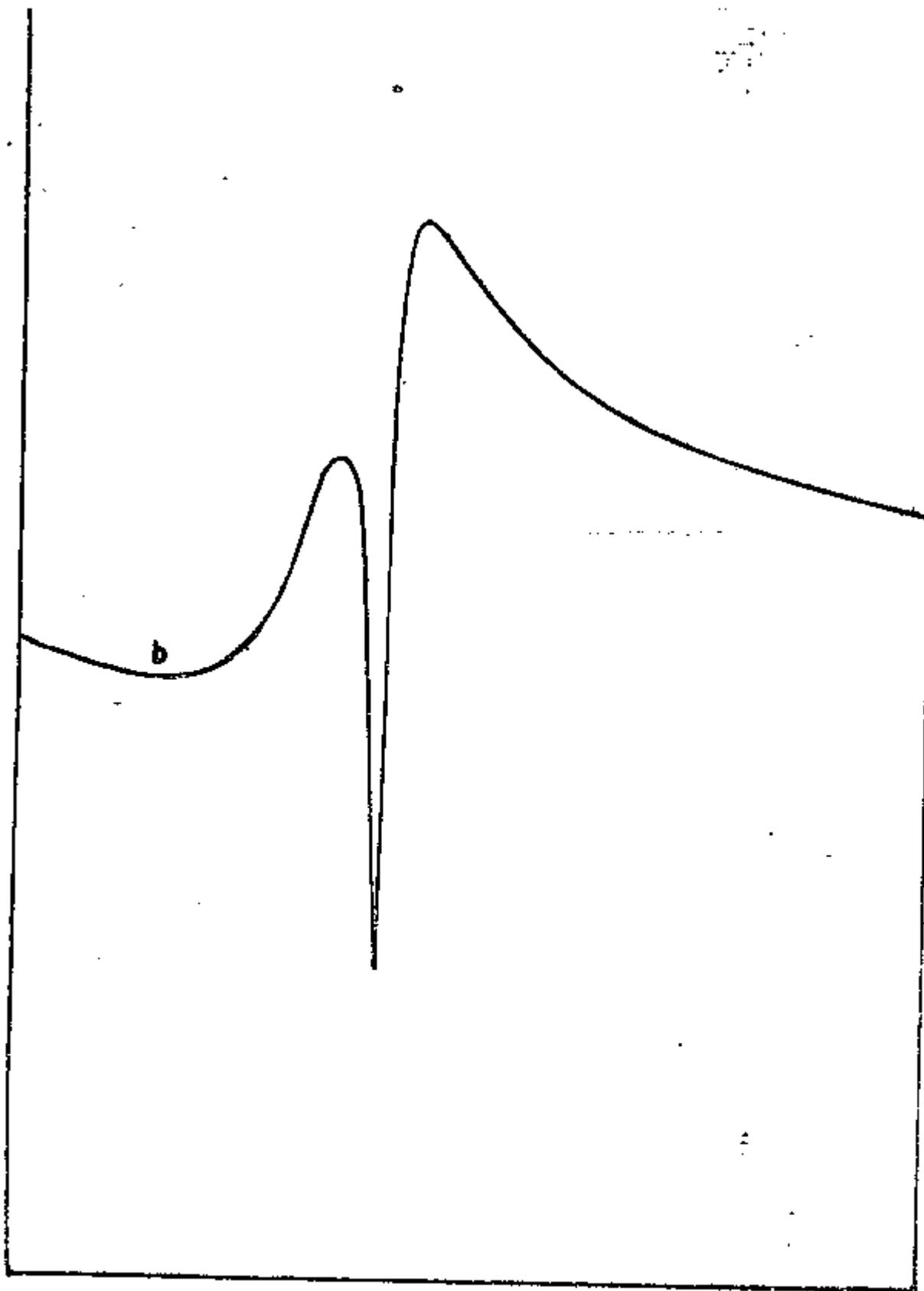
Ivascu e outros⁽²⁹⁾, e Laughoff e outros⁽³⁹⁾, determinaram experimentalmente (D.S.A. e ressonância nuclear fluorescente) a vida-média desse nível como sendo: $2,4 \pm 1,0$ pseg e $7,5 \pm 3,0$ pseg, respectivamente, o que indica como escolha razoável $\delta\left(\frac{E2}{M1}\right) = -0,04$.

O nível a 1923 KeV de onde se originam as sequências 1051-872, 587-1336 e 1348-574 KeV, é populado pelo decaimento β^+ (CE) do estado fundamental do ^{69}Ge ($I^\pi = 5/2^-$)⁽³³⁾⁽³⁴⁾ com $\log ft = 5,6$ ⁽³⁴⁾, indicando transição permitida com $\Delta I = 0, \pm 1$ e $\Delta \pi = +$. Nesse caso os possíveis spins para esse nível são: 7/2, 5/2 e 3/2.

A análise dos χ^2 dos resultados experimentais das sequências 1051-872 e 1348-574 KeV não permitiu eliminar nenhuma das três possibilidades para o spin do nível a 1923 KeV. Entretanto, a sequência 587-1336 KeV indica $I(1923) = 7/2$, pois o spin 3/2 resulta em grande mistura octopolar para a transição de 587 KeV, o que pode ser rejeitado, enquanto que o mínimo χ^2 para o spin 5/2 é muito grande comparado ao do 7/2 como se pode verificar na fig. 11. Com essa hipótese, obteve-se para as razões multipolares os valores:

$\delta(E2/M1) = 0,13 \pm 0,03$, $0,0 \pm 0,10$ e $-1,1 \pm 0,08$, para as transições de 1348, 1051 e 587 KeV, respectivamente, supondo-se no último caso, que a transição de 1336 KeV é quadrupolar





c) $3/2(2,3) 7/2 (2) 3/2.$

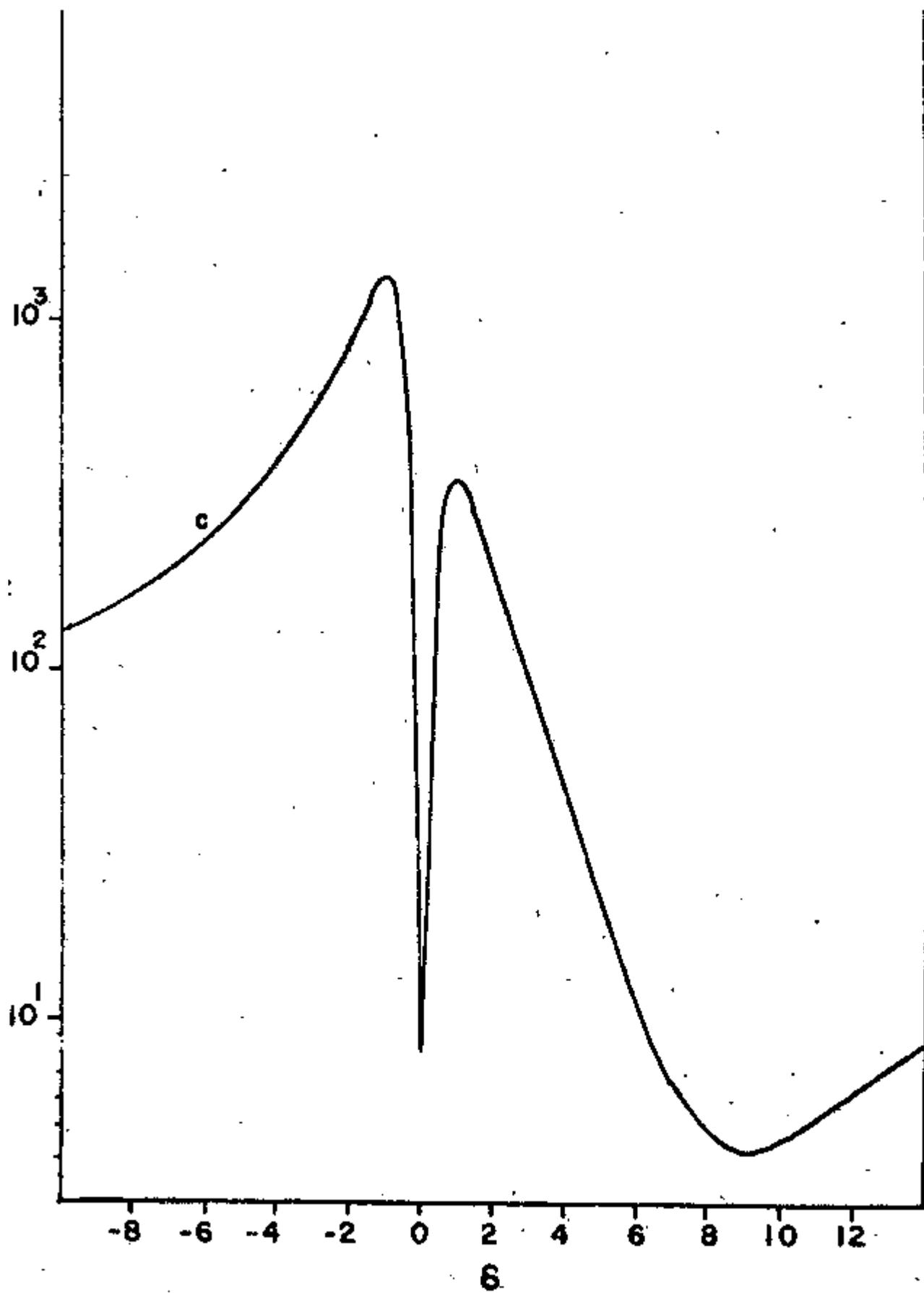


Fig. 11 - Curvas de χ^2 para a sequência 587-1336 KeV com as seq.

a) $7/2(1,2)$ $7/2(2)$ $3/2$,

b) $5/2(1,2)$ $7/2(2)$ $3/2$;

c) $3/2(2,3)$ $7/2(2)$ $3/2$.

pura.

Os resultados anteriormente citados não permitem associar qualquer paridade para o nível a 1923 KeV.

C A P Í T U L O

V

"ANÁLISE DOS RESULTADOS EXPERIMENTAIS"V-1 - Introdução

Até o presente momento não há teoria que possa explicar satisfatoriamente os níveis a baixa energia dos núcleos esféricos de A-ímpar e em particular aqueles da região $28 \leq Z \leq 40$. Entretanto várias aproximações tem sido propostas para os casos específicos do $^{71,69}\text{Ga}$, as quais serão analisados neste capítulo, frente aos dados experimentais conhecidos, dos referidos núcleos.

Sempre que possível a análise será feita em termos de probabilidade de transição, as quais em conjunto com os momentos de dipolo magnético e quadrupolo elétrico, são mais sensíveis à estrutura intrínseca do núcleo.

V-2 - Parâmetros Experimentais

Alguns dos parâmetros experimentais mais significativos do $^{71,69}\text{Ga}$ encontram-se nas tabelas 3,4,5,6 e 7. A quarta coluna da última tabela apresenta as probabilidades reduzidas de transição quadrupolar ($B(E2)$) determinadas por experimentos de excitação coulombiana⁽³⁰⁾, enquanto que na nona coluna encontram-se as vidas-médias (τ) de alguns níveis nucleares desses isótopos, medidas por DSA⁽²⁹⁾. Os valores de τ da oitava coluna dessa mesma tabela, foram calculados através das expressões IV.1 e IV.2, com os $B(E2)$ e δ 's experimentais e nos

TABELA 7

Nível KeV	J ⁿ	δ _{exp}	B(H ₂) + τ ² 10 ⁻⁵⁰ cm ⁴			ν (para μ)			c ² _n	
			UKP ^{a)}	teórico ^{a)}	teórico ^{b)}	teórico ^{d)}	B(H ₂) _{exp}	UKP ^{e)}	(c ² _n , d) ^{f)}	(d, n) ^{g)}
71Ga										
389,8	1/2 ⁻		<0,034	1,00	0,102	-	-	-	0,0	
487,5	3/2 ⁻	0,04	<0,022	5,2	0,09	>22,4	-	-	0,53	
511,6	3/2 ⁻	0,03	0,80	2,5	0,20	5,0	2,1 ± 1,0		0,10	
	3/2 ⁻		0,20	0,0083	0,056					
810,5	1/2 ⁻		0,40	0,0166		-		0,35 ± 0,23		
	5/2 ⁻	0,56	2,15	0,78	1,01	0,92	>1,2			
1107	7/2 ⁻	B2	0,15	2,54	0,18	1,0	>0,5 ^{h)}			
1109	1/2 ⁻		1,25		1,04	-	-		0,7	
	5/2 ⁻		0,64	0,07	-					
1395	7/2 ⁻		0,48	0,05	-				2,1 ± 0,7	
	5/2 ⁻		<0,34	0,46	-					
1476	7/2 ⁻		<0,26	0,35	-					
69Ga										
c)										
318,0	1/2 ⁻		1,3	1,38	0,82 0,45	1,2 1,4			0,63	0,6
573,9	5/2 ⁻	0,01	0,057	3,7	0,29 0,16	0,3 0,4	3,68	2,4 ± 1,0	0,75	0,77
871,7	3/2 ⁻	-0,02	0,85	1,0	3,70 2,28	2,4 3,1	0,23		0,65	0,75
1027	1/2 ⁻		0,74	0,30	2,56 1,79	1,0 2,5		<0,16	0,07	0,08
	3/2 ⁻		3,4	0,0061	5,55 3,40	-				
1106,4	5/2 ⁻			0,004	-	-		0,35 ± 0,10		
	7/2 ⁻	B2	1,9	2,35	3,48 2,58	2,7 3,7		0,48 ± 0,16	±0,08	0,05

Valores de B(H₂), τ e c² dos núcleos 71,69Ga.

- a) ref. 30 b) ref. 44 c) ref. 46 d) ref. 45 e) ref. 29
 f) ref. 28 g) ref. 38

* refere-se às transições do nível da es-
 luna um para o fundamental.

** medida através da transição 1107 → 487 KeV.

tram razoável concordância com as medidas diretas.

As estimativas do modelo coletivo para as probabilidades reduzidas de transição quadrupolar foram determinadas pelas médias dos valores experimentais dos núcleos par-par vizinhos (tabela 8) ao $^{71,69}\text{Ga}$, encontrando-se:

$$B(E2)_{p-p} = 0,038 e^2 10^{-48} \text{ cm}^4 \text{ para o } ^{71}\text{Ga}$$

$$B(E2)_{p-p} = 0,030 e^2 10^{-48} \text{ cm}^4 \text{ para o } ^{69}\text{Ga}.$$

Por outro lado, a expressão 1-18 permite obter-se a estimativa de Weisskopf para esse parâmetro:

$$B(E2)_W = 0,0017 e^2 10^{-48} \text{ cm}^4$$

O MEPS permite, ainda, estimar os momentos de dipolo magnético (μ_0) e quadrupolo elétrico (Q_0) do estado fundamental desses núcleos, através das expressões V.1 e V.2.

$$(*) \quad \langle \mu \rangle_{\text{MEPS}} = g_L (j - 1/2) + 1/2 g_S \text{ em n.m.} \quad (V.1)$$

com $g_L = 0$ ou 1 para próton ou nêutron e,

$$g_S = 5,585 \text{ ou } -3,826 \text{ para próton ou nêutron.}$$

$$(**) \quad Q_{\text{MEPS}} = - \frac{2j - 1}{2j + 2} \langle r^2 \rangle \quad (V.2)$$

$$\text{com } \langle r^2 \rangle = 3/5 r_0^2 A^{2/3} \text{ e } r_0 = 1,2 \cdot 10^{-13} \text{ cm}$$

(*) válida para $j = l + 1/2$

(**) quando se trata de estado buraco o sinal dessa expressão deve ser trocado.

TABELA 8

núcleo	nível KeV	* B(E2) + e ² / 10 ⁻⁴⁸ cm ⁴
⁶⁸ Zn	1080	0,025
⁷⁰ Zn	887	0,032
⁷⁰ Ge	1040	0,03344
⁷² Ge	835	0,046

Valores experimentais de B(E2)+ para os núcleos par-par vizinhos ao ⁷¹Ga e ⁶⁹Ga, conforme ref. 50.

TABELA 9

Quant.	Exp ^{a)}	MEPS	teórico ^{b)}	teórico	teórico
⁷¹ Ga					
μ_0 (n.m)	2,565	3,79	2,50	2,57 ^{c)}	2,56 ^{d)}
Q_0 (barn)	0,12	0,06	0,17	0,14	-0,15
⁶⁹ Ga					
μ_0 (n.m)	2,016	3,79	2,19	1,99 ^{e)}	1,94 ^{f)}
Q_0 (barn)	0,19	0,06	0,16	0,10 0,14	0,18

Momentos de dipolo magnético e quadrupolo elétrico dos núcleos ^{71,69}Ga.

- a) ref. 43 b) ref. 30 c) ref. 44 d) ref. 22
 e) ref. 46 f) ref. 45

A tabela 9 apresenta esses resultados de μ_0 e Q_0 juntamente com os valores experimentais, e os dos modelos teóricos aplicáveis ao $^{71,69}\text{Ga}$. Os resultados desses modelos para os $B(E2)$ encontram-se na tabela 7. Essa última tabela contém, ainda, os fatores espectroscópicos determinados por reações $(^3\text{He},d)$ (28) e (d,n) (38).

V-3 - Análise em termos de modelos nucleares

Os parâmetros experimentais da tabela 7 combinados com os $B(E2)$ calculados no parágrafo anterior mostram que alguns níveis do ^{69}Ga apresentam fortes características de partícula (573,9 e 871,7 KeV), ou coletivas (1106,4 e 1336,1 KeV), enquanto que outros (318,4 e 1027 KeV) indicam uma estrutura mais complexa.

Os dois primeiros níveis (573,9 e 871,7 KeV) tem suas características de partícula confirmadas não só pela predominância M1 nas transições para o estado fundamental, e alto fator espectroscópico nas reações de "pick-up" de próton, como também pelos $B(E2)$ lentos comparados aos núcleos par-par vizinhos. A conclusão de forte caráter coletivo dos níveis a 1106,4 e 1336,1 KeV se deve às rápidas transições $B(E2)$ dos dois estados, para o fundamental, em relação às estimativas de Weisskopf, além do baixo fator espectroscópico do segundo deles, e a não identificação do primeiro nas reações $(^3\text{He},d)$ e (d,n) .

Análise semelhante para o ^{71}Ga indica que os níveis a 389,9 e 487,3 KeV apresentam forte caráter de partícula, desde que os fatores espectroscópicos para reações $(^3\text{He},d)$ (28), dos mesmos, são elevados e a deexcitação para o estado funda

mental é predominantemente M1, com B(E2) baixo em relação aos núcleos par-par vizinhos. Entretanto, a estrutura desse núcleo mostra-se mais complexa que o anterior, pois com exceção dos dois níveis acima, todos os outros situam-se em uma posição intermediária do modelo coletivo e de partícula simples, embora ocorram tais casos também no ^{69}Ga .

Resumindo, a análise feita aqui demonstra a impossibilidade de um estudo da estrutura nuclear dos referidos isótopos através de um modelo simples. Em casos como esses os resultados experimentais têm sido analisados em termos de acoplamento de 1 ou 3 partículas numa camada j , interagindo com um caroço par-par.

Isakov⁽⁴⁴⁾ propõe para o ^{71}Ga uma aproximação em que trata os três últimos prótons interagindo por forças residuais do tipo gaussiana, e movimentando-se no campo médio produzido pelo caroço par-par (^{68}Ni). O caroço de ^{68}Ni tem dupla camada fechada espera-se então, que a energia do primeiro estado 2^+ seja muito grande em relação à energia de separação dos estados de partícula simples da camada correspondente a $Z = 28$ ($2p_{3/2}$, $1f_{5/2}$, $2p_{1/2}$). Isso permitiu que as interações com o caroço fossem consideradas através da introdução de uma carga efetiva e_{ef} , que é independente das transições do ^{71}Ga , ajustada a partir dos dados experimentais (parâmetro livre). O espectro energético obtido é razoável, e os valores de μ_0 e Q_0 (tabela 9) concordam bem com os experimentais. Os resultados para B(E2)⁺ (tabela 7), também possuem um bom grau de concordância com aqueles da excitação coulombiana.

A aproximação semi-microscópica proposta por V. Paar⁽⁴⁵⁾ e R. Almar e outros⁽⁴⁶⁾ para os isótopos ímpares do Ga supõe os três últimos prótons interagindo via força de emparelhamen

to, e acoplados fracamente, a um vibrador quadrupolar. Os cálculos são efetuados explicitamente para o ^{69}Ga , considerando os estados de partícula simples $2p_{3/2}$, $1f_{5/2}$ e $2p_{1/2}$ e os de zero e um fonon do caroço. Os valores previstos para os níveis de energia, μ_0 e Q_0 (tabela 9) e $B(E2)$ (tabela 7) estão em concordância razoável com os experimentais.

Os resultados das correlações angulares gama-gama no $^{71,69}\text{Ga}$ de Khodzaev⁽³³⁾, levaram este autor à tentativa de interpretar alguns níveis a baixa energia desses núcleos, em termos do modelo de excitação de caroço de de-Shalit⁽⁴⁷⁾. Nessa aproximação o autor supõe que os níveis a 390 ($1/2^-$), 512 ($3/2^-$), 487 ($5/2^-$) e 1107 KeV ($7/2^-$) do ^{71}Ga , e 318 ($1/2^-$), 574 ($5/2^-$), 872 ($3/2^-$) e 1923 KeV ($7/2^-$) do ^{69}Ga , são resultados do acoplamento do primeiro estado excitado 2^+ do caroço par-par com o de partículas simples $2p_{3/2}$ do 31° proton. Entretanto, o modelo de de-Shalit proíbe transições M1 do quarteto para o estado fundamental (desde que estas transições referem-se ao caroço par-par) e E2 pura entre os níveis desse quarteto (desde que esta transição tem como responsável a partícula). Tais características estão em completa discordância com os nossos resultados (tabelas 4 e 6), os quais mostram claramente a predominância M1 nas transições para o estado fundamental, e a existência de transições E2 pura entre os níveis do suposto quarteto.

Aproximações em que se considere acoplamento de um só proton com um caroço par-par foram tentadas por Temperley e outros⁽⁴⁸⁾, Cooper e Easterday⁽²²⁾, Andreev e outros⁽³⁰⁾ e Scholz e Malik⁽⁴⁹⁾.

Os três primeiros propõem um acoplamento de intensidade intermediária entre os estados de partícula $2p_{3/2}$, $2f_{5/2}$ e

$2p_{1/2}$ (a ref. 22 considera também o estado $1g_{9/2}$), com os estados de um e dois fonons das vibrações quadrupolares do caroço (a ref. 22 considera também vibração octupolar 3^-). A Hamiltoniana desses modelos é basicamente a expressão I.10. Para o cálculo da integral radial (que envolve $K(r)$), Temperley e outros escolheram um potencial de forma gaussiana, Andreew e outros, o de Saxon-Woods, e Cooper e outros efetuaram os cálculos com esses dois potenciais e um terceiro que foi a derivada do potencial de Saxon-Woods.

O espectro energético do ^{69}Ga , assim obtido por Temperley e outros e Andreew e outros, concordam bem entre si, e com o experimental. Na segunda referência (Andreew e outros), são calculados também os parâmetros $B(E2)$ (tabela 7), μ_0 e Q_0 (tabela 9), que concordam bem com os resultados experimentais e os teóricos de Almar e outros e V.Paar.

Para o ^{71}Ga o espectro de energia calculado por Cooper e Easterday não concorda com o experimental de Zoller e outros (34). Por exemplo, os dois primeiros níveis surgem na ordem inversa $5/2^-$ e $1/2^-$ e acima destes a energia de excitação dos estados previstos é muito alta. O valor de μ_0 (tabela 9) é muito próximo do experimental mas, o sinal de Q_0 (tabela 9) está em completa discordância.

Um espectro energético melhor para esse isótopo é obtido por Andreew e outros o qual não difere muito dos resultados de Isakov. Entretanto, o mesmo não se pode afirmar sobre as estimativas de $B(E2)$ (tabela 7), μ_0 e Q_0 (tabela 9), que não estão em tão boa concordância com os resultados experimentais, quanto os de Isakov.

A última aproximação a ser analisada aqui é a de Scholz e Malik⁽⁴⁹⁾ que propõem um acoplamento forte de uma partícula

e um caroço rotacional, com interações residuais do tipo emparelhamento, entre os prótons do mesmo. O espectro energético obtido para o ^{71}Ga não concorda com o experimental, pois inverte os dois primeiros níveis e resulta em energia de excitação muito baixa para os outros níveis.

Finalmente salientamos que os modelos aqui considerados são aproximações teóricas mostrando cada uma delas, alguns aspectos da realidade física. Não há intenção neste trabalho de uma análise competitiva no sentido de se optar por um dos acoplamentos, mas sim, o uso destes, quando possível, como guias auxiliares para o melhor conhecimento experimental da estrutura nuclear.

CONCLUSÕES

No presente trabalho são estudadas, experimentalmente, características nucleares dos níveis e transições do $^{71,69}\text{Ga}$ núcleos esféricos, com A-ímpar. Os estudos são feitos através da Técnica de Correlação Angular Direcional Gama-Gama. O equipamento utilizado é tecnicamente aprimorado, pois os detectores tem alto poder de resolução em energia, e os circuitos são transistorizados (ou integrados) com excelente estabilidade. Tanto o ^{71}Ga quanto o ^{69}Ga foram investigados largamente por trabalhos anteriores, e o nosso propósito ao estudá-los é, usando os mais recentes avanços técnicos, fornecer parâmetros adicionais para uma melhor compreensão de suas estruturas nucleares.

No ^{71}Ga foram estudadas onze correlações angulares gama-gama e no ^{69}Ga sete, sendo que nenhuma delas tinha sido medida anteriormente com espectrômetro a Ge(Li)-NaI(Tl). Os resultados obtidos possibilitaram uma determinação conclusiva dos spins dos níveis a 2247, 1107 e 964 KeV do ^{71}Ga e 1923, 1336 e 872 KeV do ^{69}Ga , sobre os quais havia poucas informações ou controvérsias. Por outro lado, o nosso experimento associado aos de outros autores permitiu determinar as razões das misturas multipolares $\delta(E2/M1)$, com os respectivos sinais, da maioria das transições mais intensas desses dois núcleos. Dentro das possibilidades do nosso equipamento, o estudo do $^{71,69}\text{Ga}$ foi completo e a precisão nos valores de $\delta(E2/M1)$ pode ser melhorada somente com a utilização de um espectrômetro a Ge(Li)-Ge(Li).

As razões das misturas multipolares com as probabilidades de transição B(E2) (determinados, por excitação coulomb -

biana), possibilitaram estimativas das vidas médias de alguns níveis, dos referidos núcleos, que concordaram com as medidas diretas. Foi possível observar também algumas semelhanças na estrutura nuclear desses dois isótopos, tais como:

- a predominância de transições M1 para o estado fundamental,
- a sequência de spins ($1/2$, $5/2$, $3/2$, $1/2(3/2)$, $5/2(3/2)$, $7/2$) dos primeiros níveis, assim como suas energias de excitação e
- os momentos de dipolo magnético e quadrupolo elétrico do estado fundamental.

Isso encoraja-nos a supor que a introdução de um par de neutrons no ^{69}Ga não altera drasticamente a sua estrutura nuclear.

Finalmente, foi feita uma análise comparativa entre os resultados experimentais e os calculados através dos modelos nucleares. As aproximações estudadas aqui podem ser divididas basicamente em dois tipos: as que consideram um proton acoplado a um caroço par-par, e as que consideram três prótons acoplados ao caroço. Os resultados das aproximações do segundo tipo (Isakov, R.Almar e outros e V.Paar) de um modo geral são melhores. Isso é bastante razoável, desde que os núcleos $^{71,69}\text{Ga}$ possuem três prótons fora de uma camada fechada ($1f_{7/2}$) e, distinguir um deles para interagir com o caroço é artificial, embora, alguns parâmetros assim calculados concordem bem com os experimentais.

As razões das misturas multipolares de transições desses dois isótopos, aqui obtidas, além dos spins nucleares, devem fornecer mais elementos, para a construção de um modelo teórico que se ajuste melhor às propriedades nucleares dos mesmos.

Entretanto, o estudo de outros isótopos de proton ímpar da região $69 \leq A \leq 85$, se faz necessário para uma compreensão mais acurada da estrutura dos núcleos aqui envolvidos.

REFERÊNCIAS

1. J.W.Dunworth
- Rev. Sci. Instr. 11 (1940) 167.
2. D.R.Hamilton
- Phys. Rev. 58 (1940) 122.
3. G.Goertzel
- Phys. Rev. 70 (1946) 897.
4. E.L.Brady and M.Deutsch
- Phys. Rev. 72 (1947) 870.
5. L.C.Biedenharn and M.E.Rose
- Rev. Mod. Phys. 25 (1953) 729.
6. H.Frauenfelder and R.M.Steffen, em Alpha-Beta and Gamma-Ray Spectroscopy (ed. K.Siegbahn, vol.2, North Holland Publishing Co. 1965).
7. H.J.Rose e D.M.Brink
Rev. Mod. Phys 39 (1967) 306.
8. M. Ferentz and N.Rosenzweig, em Alpha-Beta and Gamma-Ray Spectroscopy (ed. K.Siegbahn, vol.2, North Holland Publishing Co. 1965) Ap. 8.
9. A.Bohr, and B.R.Mottelson, em Nuclear Structure I (W.A.Benjamin, Inc., Amsterdam, 1969).
10. J.P.Elliott and A.M.Lane, em Handbuch der Physik 39 (Springer, Berlin, 1957) 240.
11. J.M.Eisemberg and W.Greiner, em "Nuclear Model" vol. I (North-Holland Publishing Co, Amsterdam, 1970).
12. M.A.Preston, em "Physics of the Nucleus" (Addison-Wesley Publishing Co. Inc., Massachusetts, 1962).

13. J.P.Elliott, em "Collective Motion in Nuclei", NYO - 2271 (University of Rochester, New York, 1958).
14. S.A.Moszkowski, em Alpha-Beta and Gamma Ray Spectroscopy (Ed. K.Siegbahn, North-Holland Publishing Co., Amsterdam 1965).
15. M.J.L.Yates, "Finite Solid Angle Corrections", em Perturbed Angular Correlations (ed. E.Karlsson, E.Mathias, K. Siegbahn, 1964).
16. D.C.Camp and A.L.Van Lehn
- Nucl. Instr. Meth. 78 (1969) 192.
17. J.L.Black and W.Gruhle
- Nucl. Instr.Meth. 46 (1969) 213.
18. Angular Correlations in Nuclear Disintegrations,
Delft, the Netherlands - Agosto 1970 (17-22).
19. R.N.Saxena, Nilton T.S.Monteiro e A.Bairrio Nuevo Jr.
-"Espectrometro para Correlação Angular Gama-Gama",
Publ. IEA, 359 (outubro 1974).
20. A.J.Becker and R.M.Steffen
- Phys. Rev. 180 (1969) 1043.
21. G.Lederer, J.M.Hollander and I.Perlman
- Table of Isotopes (John Wiley & Sons, 1967).
22. L.R.Cooper and H.T.Easterday
- Nuovo Cimento 64 (1969) 188.
23. A.C.Li' and Sergio Monaro
- Nucl. Phys. A 91 (1967) 353.
24. W.H.Zoller, W.B.Walters and G.E.Gordon
- Nucl. Phys. A 142 (1970) 177.

25. H.W.Taylor and B.Singh
- Nucl. Phys. A 148 (1970) 548.
26. Raymond G.Arnold, Edward C.Booth and Willion J.Alston
- Phys. Rev. C 7 (1973) 1490.
27. D.E.Velkley, K.C.Chung, A.Mittler, J.U.Brandenberger and
M.T.McEllistrem
- Phys. Rev. 179 (1969) 1090.
28. A.Riccato and P.David
- Nucl. Phys. A 228 (1974) 461 .
29. M.Ivascu, D.Bucurescu, D.Popescu, V.Avrigeanu and E.Dra-
gulescu
- Nucl. Phys. A 225 (1974) 357.
30. D.S.Andreev, A.P.Grimberg, G.M.Gusin'skii, K.I.Erokhina,
V.S.Zvonov and I.Kh. Lemberg
- Bull. Acad. Sci. USSR Physical Series 36 (1972) 738.
31. Nuclear Data Sheet vol. 10 (1973) 219 (ref. 59 La 04,
62 Gh01. 66 Sc. 18) .
32. M.M.Khodzaev
π Sovk Journal Nucl. Phys. 10 (1970) 516.
33. D. Von Ehreinstejn and J.P.Schiffer
π Phys. Rev. 164 (1967) 1374 .
34. W.H.Zöller, G.E.Gordon and W.B.Walters
- Nucl. Phys. A 124 (1969) 15.
35. Subramanian Raman and Richard G.Couch
- Phys. Rev. C 1 (1970) 744.
36. B.Zeidman, R.H.Siemssen and L.L.Lee Jr.
- Bull. Am. Soc. 10 (1965) 1126.

37. V.V. Okorokov, V.P. Bochim, V.S. Romanov, V.M. Serezhim, V. A. Smotryaev, D.L. Tolchewkov, I.S. Trostin and Yu.N. Cheblukov
- Sov. J. Nucl. Phys. 8 (1969) 387.
38. R.G. Couch, J.A. Biggerstaff, F.G. Perey, S. Raman and K.K. Seth
Phys. Rev. C 2 (1970) 149.
39. H. Langoff and L. Frevert
- Nucl. Phys. A 111 (1968) 225.
40. B.A. Nemashkalo, V.E. Storizhko, V.F. Boldyshev, O.I. Ekhi-
chev, A.P. Klyucharev and A.I. Popov
- Sov. J. Nucl. Phys. 17 (1973) 117.
41. I. Lindgren, em Alpha-Beta and Gamma Ray Spectroscopy
(Ed. K. Siegbahn, North Holland Publishing Co. 1965).
42. C.M. Fon, R.W. Zurmühle and M. Soyce
- Nucl. Phys. A 97 (1967) 458.
43. Nuclear Data B 2 (1968) n°6, 1.
44. V.I. Isakov
- Bull. Acad. Sci. USSR Physical Series 36 (1972) 727.
45. V. Paar
- Nucl. Phys. A 211 (1973) 29.
46. R. Almar, O. Civitarese, F. Krmpotic and J. Navaza
- Phys. Rev. C 6 (1972) 187.
47. A. de-Shalit
- Phys. Rev. 122 (1958) 1530, Phys. Rev. Lett. 1 (1962) 264
48. J.K. Temperley, D.K. McDaniels and D.O. Wells
- Phys. Rev. 139 (1965) 1125.

- ~~49.~~ W.Scholz and F.B.Malik
- Phys. Rev. 176 (1968) 1355.
- ~~50.~~ P.H.Stelson and K.K.McGawan
- Nucl. Phys. 32 (1962) 652.