

## ANIQUILAÇÃO DE PÓSITRONS E A FORMAÇÃO DO POSITRÔNIO

Fernando Mauro Lanças e José Talamoni

Instituto de Física e Química de São Carlos – Departamento de Química e Física Molecular  
 Universidade de São Paulo  
 Caixa Postal 369 – 13560 – São Carlos (SP) Brasil

Recebido em 8/9/86

Cópia revisada recebida em 2/10/86

### RESUMO

Neste trabalho, as propriedades e o comportamento do pósitron (“anti-elétron” ou “elétron-positivo”), são considerados do ponto de vista químico. Sua interação com um elétron, formando uma entidade química denominada *positrônio* é discutida, assim como os diferentes modelos que tentam explicar os mecanismos de formação deste sistema considerado um “átomo exótico”.

### I – INTRODUÇÃO

Dentre as inúmeras sub-áreas que a Química conquistou, devido à sua complexidade operacional, uma que encontra grande repercussão em diferentes campos da ciência moderna é, sem dúvida, a Química das Radiações, a qual enfoca, essencialmente, as interações existentes entre elétrons energéticos e a matéria [1]. A produção desses elétrons é feita de diferentes formas, ou seja, durante a trajetória de partículas ionizantes tais como  $\alpha$  e  $\beta$ , elétrons e íons acelerados, e através de fragmentos de fissão e pelo recuo de núcleos que sofrem reações nucleares [2]. Também podem surgir na forma de foto-elétrons e elétrons Compton no caso da interação entre radiações eletromagnéticas tais como raios-X ou raios  $\gamma$ , com a matéria [3]. Os elétrons assim produzidos são freados transferindo gradualmente sua energia para as espécies existentes na vizinhança, produzindo desta forma espécies excitadas, íons e elétrons secundários, terciários, etc. No fim destas interações, inúmeras modificações terão sido induzidas no sistema irradiado, existindo várias técnicas disponíveis para a detecção e medida destes efeitos. Com base nos dados experimentais coligidos, o químico tenta entender como o sistema responde à irradiação, assim como tem uma idéia do comportamento e propriedades dos elétrons quando são introduzidos no sistema.

Do ponto de vista experimental, dois métodos são utilizados para obter-se informações acerca dos eventos primários: a radiólise pulsada ou métodos químicos convencionais. Na radiólise de pulso os eventos primários podem ser estudados numa escala de tempo bastante curta\*, enquanto

que os dados obtidos por análise química convencional são indiretos, pois ela utiliza dados obtidos bastante tempo após o depósito da energia, e desses dados infere aqueles que devem ter ocorrido nos processos primários [5].

Um quadro similar existe no campo contíguo ao da Química das Radiações (Q.R.), denominado Química dos Átomos Quentes (Q.A.Q.) (Figura 1).

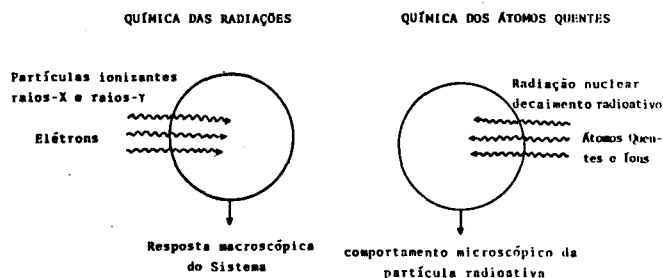


Fig. 1 – Química das Radiações e Química dos Átomos Quentes.

Neste caso, átomos ou íons radioativos podem ser injetados no sistema por dois caminhos distintos: devido à quantidade de movimento de recuo associado a uma reação nuclear, ou então serem gerados, in situ, pelo decaimento de um nuclídeo pai conveniente [7]. As espécies assim introduzidas são freadas e participam de uma variedade de processos. Novamente os métodos indiretos são utilizados, no sentido de que a descrição dos processos iniciais depende da natureza e da distribuição das formas químicas dos átomos de recuo radioativos, como são determinados bastante tempo após o processo nuclear. De qualquer forma, a Q.A.Q., possui uma grande vantagem, do ponto de vista prático, sobre a Q.R., uma vez que as espécies de interesse podem ser “seguidas” pela sua radioatividade.

Estas duas áreas estão em estreito relacionamento e usualmente se complementam pois enquanto a Q.R. descreve as mudanças e reações, no sistema iniciadas por elétrons – o mais importante intermediário na Q.R. – a Q.A.Q. descreve o comportamento de uma partícula interagindo com o meio. Porém, o átomo radioativo mais leve passível de uso em Q.A.Q., é o trítio (o isótopo mais pesado do hidrogênio) o qual é milhares de vezes mais pesado que o elétron tornando, portanto, impossível qualquer comparação direta entre ambos.

\* Da ordem de nanosegundo (ns) para a radiólise de pulso convencional, e de picosegundo (ps) para a radiólise estroboscópica ou com laser [14].

Felizmente, a natureza forneceu-nos outra partícula, a qual parece adequar-se perfeitamente às necessidades: o Pósitron. O elétron positivo ( $e^+$ ) como é também denominado, possui a mesma massa de sua contrapartida negativa, e comporta-se similarmente a qualquer partícula ionizante usada em Q.R. Da mesma forma que um traçador radioativo, ele decai — ou melhor dizendo, desaparece — com a emissão simultânea de radiações facilmente detectáveis.

O tempo de vida do pósitron, situado na faixa compreendida entre ps e ns, dá acesso ao estudo dos fenômenos relativamente primários nas interações {8}. Por fim, o pósitron pode comportar-se como uma partícula “quente”, de tal forma, que ele se torna o limite real entre a química das radiações e a química dos átomos quentes {6}.

Do ponto de vista químico, as aplicações da aniquilação de pósitrons e a química do positrônio constituem tópicos em rápida expansão, possuindo inúmeras facetas interessantes principalmente para a físico-química, química analítica e química estrutural.

Uma vez que o campo da Q.A.Q. foi motivo de recente revisão crítica por Collins et al. {9, 10}, o presente trabalho irá enfatizar especificamente as propriedades do pósitron e a formação do positrônio com o intuito de familiarizar o químico com estas entidades.

## II – ANIQUILAÇÃO DO PÓSITRON E FORMAÇÃO DO POSITRÔNIO

### II.1 – Propriedades Intrínsecas do Pósitron

#### II.1.a – Generalidades: o pósitron na teoria de Dirac

Dentre todas as previsões feitas por Dirac, a partir do tratamento relativista da mecânica quântica eletrônica, a mais importante foi a existência do positron {11}.

A equação de onda relativista para a energia total E, possui duas soluções {12}:

$$E = \pm (p^2 c^2 + m_0^2 c^4)^{1/2} \quad (1)$$

onde p = quantidade de movimento do elétron (“momentum”)

$m_0$  = massa do elétron em repouso

c = velocidade da luz

A originalidade da teoria de Dirac consiste em supor que todos os estados de energia negativos são normalmente ocupados por elétrons. Quando um elétron é excitado para um estado de energia positivo, um buraco (“hole”) é deixado no oceano ocupado por estados de energia negativo. Para os propósitos práticos, ele é considerado com um elétron de carga positiva, e é denominado de Pósitron (ou anti-elétron por ser uma anti-partícula do elétron negativo).

Uma outra descrição possível do Pósitron seria a seguinte {14}: uma partícula cuja massa e spin são iguais aos do elétron, mais de carga oposta. Os valores das principais propriedades físicas do Pósitron, no vácuo, são dados na Tabela 1.

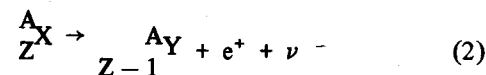
TABELA 1

Propriedades intrínsecas do pósitron (15)

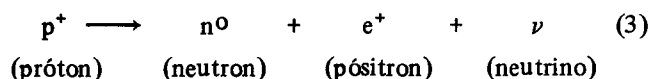
$m_0 c^2$ (MeV)	0,511
raio clássico (fm)	2,8
carga (C)	$1,602 \times 10^{-19}$
tempo de vida no vácuo	$\infty$
spin ( $\hbar$ )	1/2

#### II.1.b – Ocorrência e produção de pósitrons

Os pósitrons são encontrados nos raios cósmicos e podem ser produzidos durante a desintegração de núcleos radioativos. No último caso, o pósitron é preferencialmente formado no decaimento radioativo de núclídeos nos quais a razão próton/nêutron é igual ou maior que um, ou seja, núclídeos deficientes de nêutrons {16}, cuja desintegração se dá segundo a reação {15}:

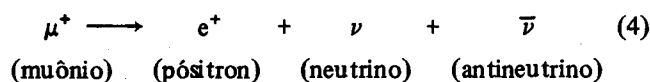


A essência da transformação nuclear em questão seria:



Da mesma forma que para a radiação  $\beta^-$ , a energia liberada na transformação nuclear anterior será dividida entre o núcleo formado e as partículas emitidas. Os pósitrons assim formados não são monoenergéticos, mas cobrem todo um espectro de energias cinéticas possíveis. As populações mais prováveis são, contudo, constituídas de pósitrons cuja energia cinética é inferior a 2 MeV {12}.

Outras reações nucleares podem produzir pósitrons, mas apresentam um mínimo interesse prático {17}. Pode-se citar, por exemplo, a desintegração de muônios, segundo a reação:



O posterior aniquilamento (desmaterialização) dos pósitrons assim criados é utilizado para detectar o desaparecimento dos muônios, num domínio da pesquisa moderna semelhante ao que está sendo citado neste trabalho, a Química do Muônio {17, 18}.

Um outro exemplo, é a criação de pares a partir da energia eletromagnética: a interação de fótons gama de energia superior a 1,02 MeV, ou seja  $2 \times m_0 c^2$ , com o campo de um núcleo, leva à criação de um par  $e^+/e^-$  {19}. Este fenômeno tem como consequência direta, a conversão de matéria em energia devido ao aniquilamento do pósitron e do elétron, o que será descrito a seguir.

## II.1.c – Desmaterialização de Pósitrons

O pósitron é uma partícula elementar estável [14] mas, como já foi dito, a presença de um elétron pode produzir sua desmaterialização, sendo a massa das duas partículas convertida em energia eletromagnética de valor total [20]:

$$E = 2m_0c^2 + T_+ + T_- \quad (5)$$

onde  $T_+$  e  $T_-$  representam as energias cinéticas do pósitron e do elétron respectivamente.

As modalidades de desmaterialização, e em particular o número de fótons emitidos, são regidos pelas diversas leis de conservação, principalmente conservação dos momentos cinéticos e angulares (spins), da energia total do sistema, da paridade [21].

A energia disponível pode ser atribuída a um único fóton se existe uma interação suficiente do pósitron com um elétron, ou em presença de um núcleo, a fim de que seja absorvida a energia de recuo [21, 22].

A emissão de dois fótons é, de longe, o processo mais provável, visto que a conservação dos spins é respeitada, ou seja, os spins do pósitron e do elétron são anti-paralelos. Devido à necessidade de conservação da quantidade de movimento, os dois fótons são emitidos com energias iguais (511 keV) e em direções sensivelmente opostas, se pelo menos o sistema  $e^+/e^-$  possui um momento cinético fraco. A probabilidade do processo (emissão de dois fótons) calculada por Dirac [11], pode ser escrita:

$$\sigma_{(2)} = \frac{\pi r_0^2}{\gamma + 1} \left[ \frac{\gamma^2 + 4\gamma + 1}{\gamma^2 - 1} \ln \left| \frac{\gamma + (\gamma^2 - 1)^{1/2}}{\gamma - (\gamma^2 - 1)^{1/2}} \right| - \frac{\gamma - 3}{(\gamma^2 - 1)^{1/2}} \right] \quad (6)$$

onde  $r_0 = \frac{e^2}{m_0c^2}$ , é o raio clássico do elétron

$$\gamma = \left[ 1 - \frac{v^2}{c^2} \right]^{-1/2}, \text{ com } v = \text{velocidade relativa do pósitron em comparação ao elétron}$$

$c = \text{velocidade da luz}$

Acima de dois fótons, as probabilidades de desintegração diminuem rapidamente. Durante a emissão de três fótons, por exemplo, os mesmos dividirão a energia total disponível ( $2m_0c^2$ , ou seja, 1,02 MeV) e possuirão uma distribuição angular. A Figura 2 mostra a aniquilação de um par elétron-pósitron com spins paralelos (b) e antiparalelos (a) enquanto que a Figura 3 mostra a distribuição energética dos fótons emitidos.

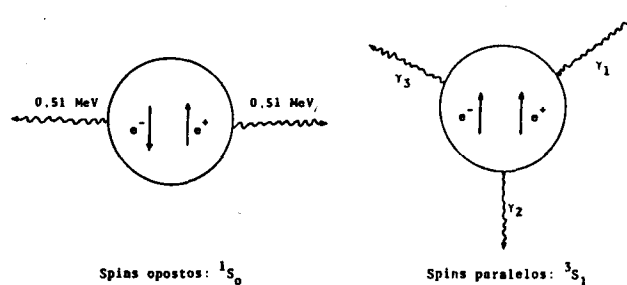


Fig. 2 – Aniquilação de um par elétron-pósitron com (a) spins opostos (b) spins paralelos

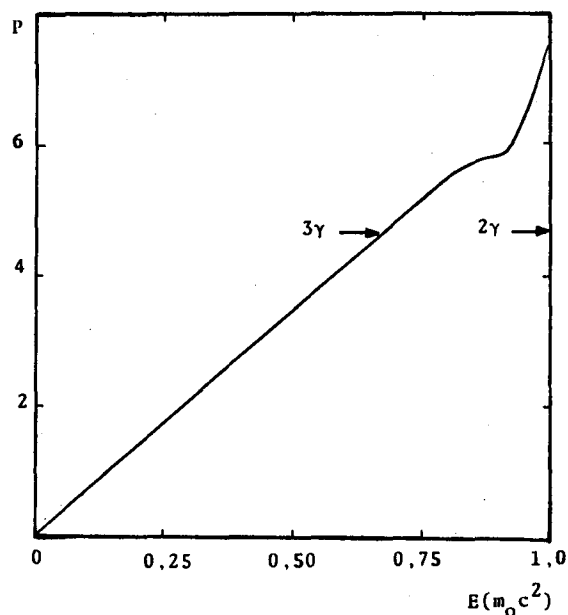


Fig. 3 – Probabilidade relativa (P) da emissão em função da energia (E) dos fótons emitidos, para uma aniquilação à 2 ou à 3  $\gamma$ .

As razões entre as seções de choque dos três processos descritos são:

$$\sigma_{(3)}/\sigma_{(2)} \cong \alpha \text{ e } \sigma_{(1)}/\sigma_{(2)} \cong \alpha^4 \quad (7)$$

onde  $\sigma_{(i)}$  é a seção do choque para a emissão de "i" fótons, e  $\alpha = \frac{1}{137}$  é a constante de estrutura fina [21, 23].

Evidentemente, os modos de desintegração citados anteriormente não correspondem mais estritamente às propriedades intrínsecas do pósitron, visto que o mesmo é, em si, uma partícula estável. Eles dão, contudo, uma imagem mais realista do comportamento "in natura" do pósitron. Este comportamento se complica ainda mais nos meios físicos, onde o pósitron pode interagir com vários elétrons. A densidade eletrônica dos meios condensados terá como efeito uma diminuição do tempo de vida do pósitron. Por exemplo, para um par  $e^+/e^-$  interagindo, e no caso não relativista, a expressão (6) se simplifica:

$$\sigma_{(2)} = \pi r_0^2 \frac{c}{v} \quad (8)$$

onde  $r_0$  = raio clássico do elétron  
 $c$  = velocidade da luz  
 $v$  = velocidade relativa pósitron-elétron.

Substituindo-se os valores numéricos obtém-se:

$$\sigma_{(2)} = 7,4 \times 10^{-15} \cdot \frac{1}{v} \text{ cm}^2/\text{e}^-$$

A velocidade de aniquilação depende de  $\sigma_{(2)}$  e do número de elétrons por unidade de volume; para uma densidade eletrônica  $N(\text{cm}^{-3})$ , a probabilidade de aniquilação por unidade de tempo, ou seja, a velocidade de aniquilação será dada por:

$$\lambda_{(2)} = \sigma_{(2)} Nv = \pi r_0^2 \frac{c}{v} Nv = \pi r_0^2 cN(\text{s}^{-1}) \quad (9)$$

O correspondente tempo de vida  $\tau_{(2)}$  será:

$$\tau_{(2)} = \frac{1}{\lambda_{(2)}} \quad (10)$$

Todavia, as relações precedentes se referem uma vez mais à um caso idealizado. Com efeito, as implicações da atração colombiana entre o pósitron e o sistema polieletrônico, das repulsões nucleares, do princípio da exclusão de Pauli e dos outros efeitos de campo, tomam extremamente difícil o cálculo do efeito da densidade eletrônica sobre o tempo de vida do pósitron{24, 25}.

## II.2 – Propriedades Intrínsecas do Pósitronio

### II.2.a – Generalidades

Em lugar de se desmaterializar espontaneamente com um elétron, tal como foi descrito na seção precedente, o pósitron pode interagir com esta partícula para formar uma espécie de curto tempo de vida, o *positrônio*, símbolo *Ps* (outras entidades podem ser criadas nos sistemas polieletrônicos, mas de formação extremamente pouco provável e sem interesse prático {26}). Esta combinação pode existir em dois estados, segundo as orientações relativas dos spins. Se os spins do pósitron e do elétron são paralelos ocorre a formação de um estado triplete, denominado *ortopositrônio*, símbolo *o.Ps*, e se os mesmos são antiparalelos teremos um estado singlete, denominado *parapositrônio*, símbolo *p.Ps*. Devido à diferença de números de sub-níveis magnéticos possíveis das duas espécies de *Ps*, a produção de *o.Ps* é três vezes maior que a de *p.Ps*. As propriedades intrínsecas dessas espécies, agrupadas na Tabela 2, são idênticas na maioria dos casos, exceto quanto ao modo de aniquilação, e o que consiste numa diferença fundamental, o tempo de vida: *o.Ps* é muito mais estável que *p.Ps* {27}.

Ao contrário dos átomos da classificação periódica, para os quais o modelo clássico de Bohr permite a representação de um núcleo central ao redor do qual gravitam os elétrons, o *Ps* presta-se mal a uma descrição simplista. Pode-se representar, todavia, que as duas partículas gravitam ao redor de seus centros de massa, no equilíbrio de forças eletrostáticas atrativas e de forças centrífugas. Contudo, suas identidades são perdidas em benefício de uma entidade neutra, da qual esperamos, por vezes, que ela possa se comportar como um átomo de Hidrogênio super-leve.

TABELA 2

Propriedades comparativas entre *Ps* e H{18}

CARACTERÍSTICA	POSITRÔNIO		HIDROGÊNIO
	<i>o.Ps</i>	<i> p.Ps </i>	
Massa no repouso (MeV)	1,02		938,77
Massa reduzida	1/2 $m_0$		$m_0$
Raio de Bohr ( $A^0$ )	1,06		0,53
Carga (C)	0		0
Potencial de ionização (eV)	6,77		13,6
Velocidade Térmica ( $\text{cm} \cdot \text{s}^{-1} \times 10^{-5}$ ; 293 K)	67		2,2
Afinidade eletrônica (eV)	0,2		0,75
Coefficiente de Difusão ( $\text{cm}^2 \text{s}^{-1} \times 10^5$ )	30		4,5
Tempo de vida intrínseco (ns)	140  0,125		$\infty$
Modo de aniquilação intrínseco	3 $\gamma$  2 $\gamma$		

## II.2.b – Ps: um isótopo leve do H?

Naturalmente, a diferença fundamental entre Ps e H resulta das massas absolutas. Eles possuem, contudo, características suficientemente semelhantes, tal como é mostrado na Tabela 2, para que um paralelo possa ser tentado entre os mesmos.

Para o número quântico principal  $n$ , os níveis de energia,  $E_n$ , do Ps são dados por:

$$E_n = -\frac{\pi^2 m_0 e^4}{\hbar^2 n^2} \quad (11)$$

com  $e$  = carga do elétron

$$\hbar = \frac{h}{2\pi}, \text{ onde } h = \text{constante de Planck}$$

Isto dá, para o estado fundamental 1S do Ps, uma energia de ligação  $E_1 = 6,8 \text{ eV}$  [18]. A estrutura fina dos níveis de energia do Ps foi estudada em detalhes pelos teóricos [28,29]: a interação entre os momentos angulares orbitais não pode mais ser desprezada; por outro lado, os momentos magnéticos associados aos spins sendo os mesmos para as duas partículas,  $e^+$  e  $e^-$ , Ps apresenta uma estrutura hiperfina de níveis que é tão importante quanto a estrutura fina do H. Essas considerações permitem mostrar, entre outras, que uma diferença de energia de  $8,5 \times 10^{-4} \text{ eV}$  existe entre os dois estados o.Ps e p.Ps.

Evidentemente, a possibilidade de estudar os efeitos isotópicos (diferença nos calores de reação, nos fatores pré-exponenciais devido às velocidades térmicas diferentes, nos coeficientes de difusão, etc.) pela comparação entre os comportamentos do H e do Ps atraiu a atenção dos químicos [27]. Mas a grande diferença na reatividade química das duas espécies, em um número relativamente grande de casos, não poderia ser explicada pela simples diferença de massas [18]. Comparativamente ao H, a possibilidade de reação de Ps com os solutos por Efeito Tunel foi algumas vezes invocada, mas este campo de pesquisa, a química do positrônio propriamente dita, permanece ainda hoje praticamente inexplorado.

## II.2.c – Desmaterialização do Ps

Da mesma forma que para o pósitron, os modos de aniquilação de Ps são regidos pelas leis de conservação e as regras de seleção. Conseqüentemente, os mesmos serão diferentes para o estado tripleto, o.Ps, e para o estado singleto, p.Ps.

### II.2.c.1 – Estado singleto, p.Ps: aniquilação por $2\gamma$

Para o estado singleto, de spin total  $S = 0$ , e como  $L = 0$ , temos:  $J = L + S = 0$ , caracterizando o estado inicial (antes da aniquilação) do sistema. Como um fóton só pode levar uma unidade de momento angular ( $L = 1$ , em unidades  $\hbar$ ), o estado final compreende necessariamente um número par de fótons. Aqui ainda, a probabilidade de aniquilação diminuindo muito rapidamente com o núme-

ro de fótons criados, o processo mais provável é a emissão de 2 fótons. Estes 2 fótons são polarizados, respectivamente à direita e à esquerda, o que corresponde aos momentos angulares  $+1$  e  $-1$ : se p.Ps está em repouso, suas energias são iguais (511 keV) e suas direções opostas.

O tempo de vida do p.Ps pode ser calculado da mesma maneira que para o  $e^+$ , levando-se em conta a atração coulombiana. Pode-se escrever a densidade eletrônica, à partir da função de onda coulombiana  $\psi$  [21]:

$$\psi_{(0)}^2 = \frac{1}{\pi(2a_0)^3} \quad (12)$$

( $a_0$  = raio da órbita de Bohr para o átomo de Hidrogênio).

À partir das equações [8,9] e [10] pode-se chegar a:

$$\lambda_{(2)} = \frac{1}{\tau_{(2)}} \sigma_{(2)} v \psi_0^2 \quad (13)$$

No estado fundamental,  $n = 1$ , e portanto:

$$\tau_{(2)} = 0,125 \text{ ns}$$

Tem-se aqui um  $\tau_{(2)}$  muito curto, dificilmente acessível pelas técnicas atuais, de tal forma que p.Ps não pode ser utilizado com confiança como sonda, por intermédio da medida de seu tempo de vida. Por outro lado, pode-se prever que, contrariamente ao o.Ps, um tempo de vida intrínseco tão curto não será sensivelmente modificado pelas interações de p.Ps com seu meio ambiente.

### II.2.c.2 – Estado tripleto, o.Ps: aniquilação por $3\gamma$

Desta vez, tem-se  $S = 1$  e  $J = L + S = 1$  (vamos considerar aqui somente o caso mais "normal", onde  $L = 0$ ) para definir o estado inicial. O número de fótons criados será portanto necessariamente ímpar. A lei da conservação do momento cinético impede, quando o o.Ps está isolado, a emissão de um único fóton. Desta maneira, a desintegração do o.Ps será feita pela criação de três fótons, as quantidades superiores permanecendo como sempre muito pouco prováveis. Pode-se mostrar que a razão das probabilidades de desintegração por  $2\gamma$ (p.Ps) ou  $3\gamma$ (o.Ps) será dada por [30]:

$$\frac{\lambda_{(3)}}{\lambda_{(2)}} = \frac{4}{9} (\pi^2 - 9) = \frac{1}{1115} \quad (15)$$

Conhecendo  $\tau_{(2)}$  (conforme relação 13) pode-se chegar a:

$$\tau_{(3)} = 140 \text{ ns}$$

O tempo de vida do o.Ps é, portanto, muito mais longo que o do p.Ps, mais acessível às medidas e, sobretudo, susceptível de ser modificado pela interação com seu meio ambiente.

## II.3 – Propriedades Extrínsecas: e<sup>+</sup> e Ps em soluções

### II.3.a – Generalidades

As diversas propriedades que acabam de ser descritas, em particular os modos de aniquilamento, podem ser modificadas assim que e<sup>+</sup> ou Ps penetram em um meio condensado (no presente trabalho discutiremos particularmente o caso dos líquidos).

Quanto ao e<sup>+</sup>, é conveniente considerar-se antes de tudo sua frenagem na solução, depois suas interações com o solvente. Estas últimas, consistem essencialmente na possibilidade de formação de Ps e na solvatação, antes que tenha lugar a aniquilação; o Ps, por sua vez, interage com o solvente. A presença de um soluto pode, naturalmente, mudar estas diversas interações e em particular modificar a probabilidade relativa de formação do Ps, P.

### II.3.b – Interação do e<sup>+</sup> em um líquido: formação de Ps

Ao penetrar em um meio condensado, o e<sup>+</sup> (formado inicialmente com uma energia cinética de algumas centenas de eV) perde progressivamente sua energia produzindo ionizações, depois excitações e, finalmente, vibrações e rotações. Assim que o mesmo se encontra suficientemente frenado\*, o que corresponde a tempos da ordem do picosegundo, ele pode formar Ps. Dois modelos principais, mas ainda controversos, tentam explicar o mecanismo de formação do Ps: o modelo dos *átomos quentes*, baseado no modelo de Ore {31} (e nos modelos aplicados em química dos átomos quentes {32-60}) e o modelo do *“cacho”* (spur){61} baseado nas interpretações dos resultados de radiólise {62-109}.

#### II.3.b.1 – O Modelo de Ore

Conforme foi visto, a formação do Ps ocorre numa faixa de energia de alguns eV. A fim de entender-se o mecanismo, o processo será exemplificado para uma molécula gasosa M.

A formação do Ps pode ser formulada como segue:

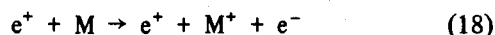


Se o potencial de ionização (I) da molécula do substrato (M) é maior que 6,8 eV (a energia de ligação do par pósitron-elétron no estado fundamental do átomo de Ps), a formação do Ps será uma reação endoenergética, com um limiar de energia cinética, E<sub>min</sub>:

$$E_{min} = Q = (I - 6,8) \text{ eV} \quad (17)$$

isto é, apenas pósitrons tendo energia cinética (E<sub>c</sub>) maior que este valor poderão formar o Ps.

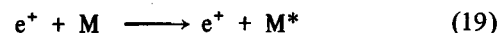
Entretanto, se E<sub>c</sub>, a energia cinética dos pósitrons, for maior do que I, a probabilidade de formação do Ps é pequena comparada à secção de choque das reações que levam à ionização da molécula do substrato, isto é:



\* (energia de alguns eV)

e apenas alguns átomos de Ps serão formados.

Uma reação que compete com a formação do Ps é a excitação eletrônica das moléculas do substrato pelo pósitron, a qual poderá ocorrer quando a E<sub>c</sub> for maior que E\*, a energia do primeiro potencial de excitação de M,



Portanto, para gases, a maior parte do Ps é formada de pósitrons com energias cinéticas compreendidas entre o primeiro potencial de excitação eletrônica da molécula do substrato, E\* (limite superior) e |I-6,8| eV (limite inferior), ou seja,

$$E_{min} = Q = (I-6,8) \text{ eV} \quad E_{max} = I \text{ ou } E^* \quad (20)$$

O pósitronio será formado se:

$$\begin{array}{ccc} E_{min} < E_c < E_{max} \\ (I-6,8) & & (I \text{ ou } E^*) \end{array} \quad (21)$$

Este modelo de formação do Ps foi desenvolvido inicialmente por ORE {30} e a faixa de energia na qual a formação do Ps é mais provável é denominada de “intervalo de Ore” (“Ore Gap”).

A validade deste modelo é limitada no caso de fases condensadas, uma vez que os limites do intervalo de Ore são determinados não apenas pelos potenciais de excitação e ionização, mas também pela energia de dissociação e forças intermoleculares, tais como as interações dipolo-dipolo {110}.

Uma recente revisão do modelo inclui novas idéias para o caso de seu uso na interpretação de reações entre o Ps e espécies iônicas e neutras em líquidos {111}.

Um exemplo de aplicação deste modelo é ilustrado na Figura 4, onde o esquema mostra a energia posta em jogo quando da interação de um pósitron com o argônio.

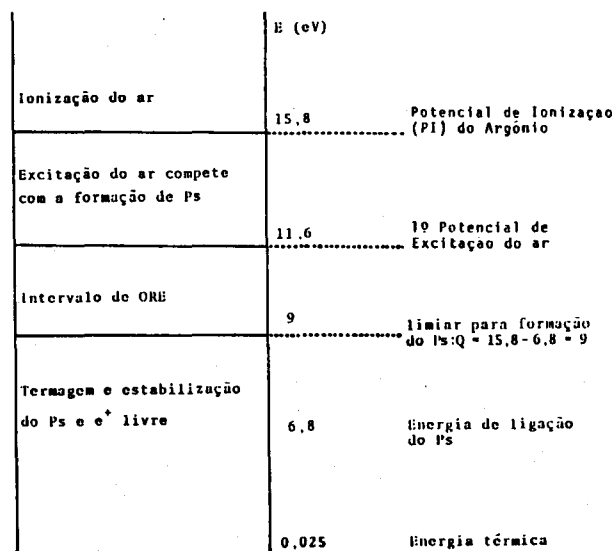


Fig. 4 – O modelo de Ore: interação pósitron-argônio.

Este modelo foi praticamente o único a ser usado até o surgimento, recentemente, do modelo de reação do "cacho" (Spur).

### II.3.b – O Modelo de "Cacho"

Neste sentido, a idéia do "cacho" compreende a região contendo o pósitron termalizado e as espécies pré-existentes no meio e aquelas produzidas durante o processo de termalização. Neste caso, é assumido que o Ps é formado como o resultado de uma reação, no "cacho", entre o pósitron e um elétron secundário, existente no "cacho" produzido pelo pósitron. O modelo indica uma correlação entre a probabilidade de formação do Ps e as propriedades dos elétrons estudados em Química da Radiação [112-158].

No modelo, o cacho é definido como um grupo de intermediários reativos, os quais estão tão juntos que existe uma probabilidade significativa de reagirem uns com os outros antes de se difundirem no meio. As propriedades dos cachos têm atraído muita atenção em química da radiação. Os elétrons secundários, terciários, etc., formados durante a frenagem de um elétron ou pósitron, terão uma energia cinética média de 10-50 eV. Eles irão viajar, portanto, uma certa distância antes de serem termalizados. Os elétrons poderão então recombinarem no cacho, ou difundir-se para fora dele, isto é, fora do campo coulombiano dos íons, e se tornarem elétrons livres.

Informações sobre a distribuição de elétrons nos cachos podem ser obtidas de estudos usando sequestradores [120]. A adição de sequestradores, isto é, um composto que reage com os elétrons no cacho, muda o rendimento dos produtos radiolíticos. Medidas do rendimento dos produtos e as análises cinéticas dos resultados podem dar informações sobre a concentração de espécies carregadas nos cachos.

Com base nestas idéias e em resultados experimentais, Mogensen [61] formulou os princípios do modelo das reações no cacho para explicar a formação do Ps. O pósitron perderá os últimos 100-200 eV de sua energia cinética na criação de um cacho contendo alguns elétrons e os correspondentes íons positivos (Figura 5).

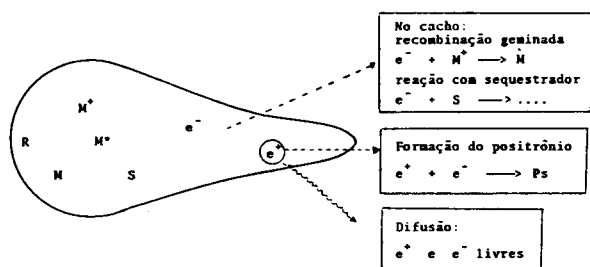


Fig. 5 – Cacho formado na termalização do pósitron (modificado de Adloff (6)).

Os elétrons perderão suas energias iniciais de 10-50 eV viajando por uma distância da ordem do tamanho do cacho. Também o pósitron perderá seus últimos 10-50 eV em uma distância da mesma ordem. A formação do Ps poderá ocorrer com uma reação entre o pósitron e um dos elétrons no cacho. Este processo deverá completar-se com a recombinação dos elétrons e os íons positivos e também com a difusão dos elétrons para fora dos cachos. As reações, no cacho, de elétrons ou do pósitron com as moléculas do solvente ou com sequestradores também diminuirão a probabilidade de formação do Ps. Qualquer solvatação dos elétrons ou do pósitron no cacho poderá influenciar fortemente na formação do Ps, através do aumento da blindagem dielétrica das forças coulombicas entre as partículas e a redução na mobilidade das partículas de solvatação. Também as reações químicas entre sequestradores e espécies de meia vida curta – as quais reagiriam com o elétron ou o pósitron – poderão influenciar na formação do Ps.

Portanto, a formação do Ps compete com as possíveis reações das duas espécies: o elétron e o pósitron. Alguns exemplos destas interações encontram-se na Tabela 3.

TABELA 3

Possíveis reações do pósitron e do elétron que competem com a formação do Ps.

$e^- + M^+ \rightarrow M$	recombinação geminada
$e^- + M \rightarrow M^-$ $e^+ + M \rightarrow M^+$	ligação
$e^- + S \rightarrow S^-$ $e^+ + S \rightarrow S^+$	sequestradores de $e^-$ e $e^+$
$e^- + s \rightarrow e^-_s$ $e^+ + s \rightarrow e^+_s$	solvatação
$S + M^+ \rightarrow M + S^+$	sequestrador de buracos (compete com a recombinação geminada)

O último dos processos, o sequestro de buracos, poderá interferir no rendimento do Ps, uma vez que compete com a recombinação geminada.

### III CONCLUSÃO

Como ficou evidenciado no presente trabalho, o pósitron, entidade bastante conhecida dos físicos, pode interagir com um elétron e formar uma espécie química denominada *positrônio*, relativamente desconhecida dos químicos. O objetivo deste artigo foi colocar o químico em contato com as propriedades fundamentais do pósitron

e do positrônio (Ps). O curto tempo de vida do Ps e sua grande sensibilidade às propriedades do meio o tornam uma poderosa ferramenta na elucidação de problemas físico-químicos.

A Química do Positrônio, assim como os arranjos experimentais para seu estudo, serão motivos de um outro artigo a ser submetido em breve a esta revista.

#### AGRADECIMENTOS

Os autores agradecem o apoio financeiro do Conselho Nacional de Desenvolvimento Científico e Tecnológico (CNPq).

#### IV – BIBLIOGRAFIA

- 1 J. W. Hunt, in "Advances in Radiation Chemistry", M. Burton e J. L. Magee Ed., John Wiley & Sons, New York (1976).
- 2 J. W. Hunt, R. K. Wolf e S. S. Chenneryn, in "Fast Processes in Radiation Chemistry and Biology", G. E. Adams, E. M. Filden e B. D. Michael Ed., John Wiley & Sons, London (1975).
- 3 A. H. Compton e S. K. Allison, "X-Rays in Theory and Experiment", 2<sup>nd</sup> ed. New York: Van Nostrand, 1935, Chapter 3.
- 4 J. C. Mialocq, J. Sutton e P. Goujon, *J. Chem. Phys.* **72**, 6338 (1980).
- 5 "Radiation Effects in Liquids and Solids". Faraday Discussions of the Chemical Society, **63** (1977).
- 6 J. P. Adloff, "Position Annihilation in Liquids and Radiation Chemistry", in Plenary Lectures of II Symposium on Nuclear Chemistry, Radiochemistry and Radiation Chemistry. México (1978).
- 7 G. Stöcklin, "Chemie des Atomes Chauds". Masson et Cil Ed., Paris (1972).
- 8 V. I. Goldanskii, *Acc. Chem. Res.* **10**, 153 (1977).
- 9 C. H. Collins, F. M. Lanças, J. C. Andrade e K. E. Collins, *Química Nova* **2**, 4 (1979).
- 10 C. H. Collins, F. M. Lanças, J. C. Andrade e K. E. Collins, *Química Nova* **2**, 148 (1979).
- 11 P. A. M. Dirac, *Proc. Cambridge Phil. Soc.* **26**, 361 (1930).
- 12 J. A. Merrigan, J. H. Green e S. J. Tao, "Physical Methods of Chemistry", A. Weissberger e B. W. Rossiter Ed., John Wiley & Sons, New York (1972).
- 13 J. Bernstein, "The Elusive Neutrino", V. S. Atomic Energy Commission (1969).
- 14 R. D. Evans, "The Atomic Nucleus", McGraw-Hill, New York (1955).
- 15 G. Friedlander, J. W. Kennedy and J. M. Miller, "Nuclear and Radiochemistry", John Wiley & Sons, New York (1964).
- 16 I. Kaplan, "Nuclear Physics", Addison-Wesley Publishing Company, Inc., Reading, Mass. (1962).
- 17 P. W. Percival, *Radiochim. Acta* **26**, 1 (1979).
- 18 V. I. Goldanskii and V. P. Shantarovich, "Modern Physics in Chemistry", E. Fluck and V. I. Goldanskii Ed., Academic Press, London (1976).
- 19 P. V. C. Hough, *Phys. Rev.* **74**, 80 (1948).
- 20 F. Perrin, *Compt. Rendus* **197**, 1302 (1933).
- 21 R. N. West, "Positron Studies of Condensed Matter", Tyler & Francis Ed., London (1974).
- 22 M. Eldrup, "Positron Lifetimes in Water and Ice, and in Frozen Aqueous Solution", *Riso Report* n<sup>o</sup> 254 (1971).
- 23 J. H. Rich, *Phys. Rev.* **81**, 140 (1951).
- 24 R. A. Ferrel, *Rev. Mod. Phys.* **28**, 308 (1956).
- 25 P. R. Wellac, "Positron Annihilation in Solid State Physics", Academic Press, Vol. 10, New York (1960).
- 26 G. Ferrante, *Phys. Rev.* **170**, 76 (1968).
- 27 H. J. Ache, *Angew. Chem. Internat.* **11**, 179 (1972).
- 28 J. Pirene, *Arch. Sci. Phys. Nat.* **28** (1946) *ibd.* **29**, 121 (1947).
- 29 P. Karplus and A. Klein, *Phys. Rev.* **86**, 257 (1952).
- 30 A. Ore and J. L. Powell, *Phys. Rev.* **75**, 1696 (1949).
- 31 A. Ore, *Univ. Bergen Arbok, Naturvitenskapelig Rekke*, n<sup>o</sup> 9 (1949).
- 32 L. J. Bartal e H. J. Ache, *Radiochim. Acta* **17**, 205 (1972).
- 33 L. J. Bartal, J. R. Nicholas e H. J. Ache, *J. Phys. Chem.* **76**, 1124 (1972).
- 34 L. J. Bartal e H. J. Ache, *Radiochim. Acta* **19**, 49 (1973).
- 35 L. J. Bartal e H. J. Ache, *J. Phys. Chem.* **77**, 2060 (1973).
- 36 J. B. Nicholas, R. E. Wild, L. J. Bartal e H. J. Ache, *J. Phys. Chem.* **77**, 178 (1973).
- 37 W. J. Madia, A. L. Nichols e H. J. Ache, *J. Chem. Phys.* **60**, 335 (1974).
- 38 W. J. Madia, A. L. Nichols e H. J. Ache, *Appl. Phys.* **3**, 189 (1974).
- 39 W. J. Madia, A. L. Nichols e H. J. Ache, *Appl. Phys.* **4**, 37 (1974).
- 40 W. J. Madia, J. C. Schung, A. L. Nichols e H. J. Ache, *J. Phys. Chem.* **78**, 2682 (1974).
- 41 R. E. Wild e H. J. Ache, *Radiochem. Radional. Lett.* **23**, 249 (1975).
- 42 S. J. Tao, *J. Chem. Phys.* **56**, 5499 (1972).
- 43 L. J. Bartal e H. J. Ache, *J. Inorg. Nucl. Chem.* **36**, 267 (1974).
- 44 L. J. Bartal e H. J. Ache, *J. Inorg. Nucl. Chem.* **36**, 922 (1974).
- 45 E. Hall, W. J. Madia e H. J. Ache, *Radiochem. Radional. Lett.* **23**, 283 (1975).
- 46 W. J. Madia e H. J. Ache, *J. Phys. Chem.* **80**, 451 (1976).
- 47 Yan-Ching Jean e H. J. Ache, *J. Am. Chem. Soc.* **9**, 7504 (1977).
- 48 Yan-Ching Jean e H. J. Ache, *J. Phys. Chem.* **82**, 811 (1978).
- 49 L. A. Fucugauchi, G. Djermouni, E. D. Handel e H. J. Ache, *J. Am. Chem. Soc.* **101**, 2841 (1979).
- 50 B. Djermouni e H. J. Ache, *J. Phys. Chem.* **83**, 2476 (1979).
- 51 E. D. Handel e H. J. Ache, *J. Chem. Phys.* **71**(5),



- 2083 (1979).
- <sup>52</sup> A. Boussaha e H. J. Ache, *Journal of Colloid and Interface Science* **78**, 257 (1980).
- <sup>53</sup> A. Foglio Para e E. Lazzarini, *J. Inorg. Nucl. Chem.* **40**, 1473 (1978).
- <sup>54</sup> A. Foglio Para e E. Lazzarini, *J. Inorg. Nucl. Chem.* **40**, 1393 (1978).
- <sup>55</sup> I. Depedri, A. Foglio Para e E. Lazzarini, *J. Inorg. Chem.* **40**, 1831 (1978).
- <sup>56</sup> I. Depedri, A.L. Fantola Lazzarini e E. Lazzarini, *J. Inorg. Nucl. Chem.* **41**, 625 (1979).
- <sup>57</sup> A.L. Fantola Lazzarini, A. Foglio Para e E. Lazzarini, *J. Inorg. Nucl. Chem.* **42**, 957 (1980).
- <sup>58</sup> A. Foglio Para e E. Lazzarini, *J. Inorg. Nucl. Chem.* **42**, 475 (1980).
- <sup>59</sup> A.L. Fantola Lazzarini e E. Lazzarini, *J. Inorg. Nucl. Chem.* **42**, 953 (1980).
- <sup>60</sup> Y. Ito e Y. Tabata, *Radiat. Phys. Chem.* **15**, 329 (1980).
- <sup>61</sup> O.E. Mogensen, *J. Phys. Chem.* **60**, 998 (1974).
- <sup>62</sup> O.E. Mogensen e V.P. Shantarovich, *Chem. Phys.* **6**, 100 (1974).
- <sup>63</sup> P. Jansen, M. Eldrup, B. Skytte-Jensen e O.E. Mogensen, *Chem. Phys.* **10**, 303 (1975).
- <sup>64</sup> M. Eldrup, V.P. Shantarovich e O.E. Mogensen, *Chem. Phys.* **11**, 129 (1975).
- <sup>65</sup> G. Wikander, *Chem. Phys. Lett.* **43**, 344 (1976).
- <sup>66</sup> A.G. Maddock, J. Ch. Abbe e A. Haessler, *Chem. Phys.* **17**, 343 (1977).
- <sup>67</sup> P. Jansen e O.E. Mogensen, *Chem. Phys.* **25**, 75 (1977).
- <sup>68</sup> B. Levay e O.E. Mogensen, *J. Phys. Chem.* **81**, 373 (1977).
- <sup>69</sup> A.G. Maddock, J. Ch. Abbe e A. Haessler, *Chem. Phys. Lett.* **47**, 314 (1977).
- <sup>70</sup> A.G. Maddock, J. Ch. Abbe, G. Duplatre e A. Haessler, *Chem. Phys.* **26**, 163 (1977).
- <sup>71</sup> G. Duplatre, A.G. Maddock, J. Ch. Abbe e A. Haessler, *Chem. Phys.* **28**, 433 (1978).
- <sup>72</sup> G. Duplatre, J. Ch. Abbe, A.G. Maddock e A. Haessler, *Radiat. Phys. Chem.* **11**, 249 (1978).
- <sup>73</sup> G. Duplatre, J. Ch. Abbe, A.G. Maddock e A. Haessler, *Radiat. Phys. Chem.* **11**, 199 (1978).
- <sup>74</sup> W. Wikander, *Chem. Phys.* **38**, 181 (1979).
- <sup>75</sup> W. Wikander, *Chem. Phys.* **39**, 309 (1979).
- <sup>76</sup> J. Ch. Abbe, G. Duplatre, A.G. Maddock e A. Haessler, *Radiochem. Radioanal. Lett.* **38**, 303 (1979).
- <sup>77</sup> O.E. Mogensen, *Chem. Phys.* **37**, 139 (1979).
- <sup>78</sup> B. Levay, *At. Energy Rev.* **17**, 413 (1979).
- <sup>79</sup> J. Ch. Abbe, G. Duplatre, A.G. Maddock e A. Haessler, *Radiat. Phys. Chem.* **15**, 617 (1980).
- <sup>80</sup> J. Ch. Abbe, G. Duplatre, A.G. Maddock e A. Haessler, *J. Radioanal. Chem.* **55**, 25 (1980).
- <sup>81</sup> G. Duplatre, J. Ch. Abbe, A.G. Maddock e A. Haessler, *J. Chem. Phys.* **72**, 89 (1980).
- <sup>82</sup> J. Facetti, J. Ch. Abbe, G. Duplatre, A.G. Maddock e A. Haessler, *Radiat. Phys. Chem.* **15**, 541 (1980).
- <sup>83</sup> B. Levay e D.E. Mogensen, *Chem. Phys.* **53**, 131 (1980).
- <sup>84</sup> G. Wikander, *Chem. Phys.* **49**, 153 (1980).
- <sup>85</sup> B. Levay, S.J.G. Lund e O.E. Mogensen, *Chem. Phys.* **48**, 97 (1980).
- <sup>86</sup> J. Ch. Abbe, G. Duplatre, A.G. Maddock e A. Haessler, *Chem. Phys.* **49**, 165 (1980).
- <sup>87</sup> G. Duplatre, L.M. Al-Shukri e A. Haessler, *J. Radioanal. Chem.* **55**, 199 (1980).
- <sup>88</sup> A. Haessler, J. Ch. Abbe e G. Duplatre, *Nucl. Instr. Meth.* **174**, 371 (1980).
- <sup>89</sup> G. Duplatre, L.M. Al-Shukri e A.G. Maddock, *J. Radioanal. Chem.* **60**, 159 (1980).
- <sup>90</sup> P. Kirkegaard, M. Eldrup, O.E. Mogensen e N.J. Pedersen, *Computer Phys. Commun.* **23**, 307 (1981).
- <sup>91</sup> G. Duplatre, J. Ch. Abbe, J. Talamoni, J.C. Machado e A. Haessler, *Chem. Phys.* **57**, 175 (1981).
- <sup>92</sup> C.D. Jonah, J. Ch. Abbe, G. Duplatre e A. Haessler, *Chem. Phys.* **58**, 1 (1981).
- <sup>93</sup> J. Talamoni, J. Ch. Abbe, G. Duplatre e A. Haessler, *Chem. Phys.* **58**, 13 (1981).
- <sup>94</sup> J.C. Machado, A.M. Neto, J.Ch. Abbe e A. Haessler, *Radiochem. Radioanal. Lett.* **46**, 257 (1981).
- <sup>95</sup> J. Ch. Abbe, G. Duplatre, A.G. Maddock, J. Talamoni e A. Haessler, *J. Inorg. Nucl. Chem.* **43**, 2603 (1981).
- <sup>96</sup> R. Zana, S. Millan, J. Ch. Abbe e G. Duplatre, *J. Chem. Phys.* **86**, 1457 (1982).
- <sup>97</sup> J. Talamoni, J. Ch. Abbe, G. Duplatre, L. Kawka e A. Haessler, *Radiat. Phys. Chem.* **19**, 467 (1982).
- <sup>98</sup> J. Talamoni, J. Ch. Abbe e G. Duplatre, *Chem. Phys. Lett.* **90**, 242 (1982).
- <sup>99</sup> J. Talamoni, J. Ch. Abbe, G. Duplatre e A. Haessler, *Radiat. Phys. Chem.* **20**, 275 (1982).
- <sup>100</sup> J. Talamoni, J. Ch. Abbe, G. Duplatre, Ch. D. Jonah e A. Haessler, em "Positron Annihilation", P.G. Coleman, S.C. Sharma, L.D. Diana (eds.); North-Holland Publishing Company, 804 (1982).
- <sup>101</sup> G. Wikander, *Chem. Phys.* **66**, 227 (1982).
- <sup>102</sup> G. Wikander e O.E. Mogensen, *Chem. Phys.* **72**, 407 (1982).
- <sup>103</sup> O.E. Mogensen e F.M. Jacobsen, *Chem. Phys.* **73**, 223 (1982).
- <sup>104</sup> F.M. Jacobsen e O.E. Mogensen, *Chem. Phys.* **69**, 71 (1982).
- <sup>105</sup> J. Talamoni, J. Ch. Abbe, G. Duplatre e A. Haessler, *Radiat. Phys. Chem.* **21**, 431 (1983).
- <sup>106</sup> G. Duplatre, J. Talamoni, J. Ch. Abbe e A. Haessler, *Radiat. Phys. Chem.* **23**, 000 (1985).
- <sup>107</sup> G. Wikander, O.E. Mogensen e M.J. Pedersen, *Chem. Phys.* **77**, 159 (1983).
- <sup>108</sup> O.E. Mogensen, F.M. Jacobsen e M. Eldrup, *Chem. Phys. Lett.* in press (1985).
- <sup>109</sup> J. Ch. Abbe, G. Duplatre e A. Haessler, *J. Chem. Phys.* in press (1985).
- <sup>110</sup> R.A. Ferrel, *Rev. Mod. Phys.* **28**, 308 (1956).
- <sup>111</sup> S.J. Tao e J.H. Green, *J. Chem. Soc. (A)* 408 (1968).
- <sup>112</sup> E.J. Hart e M. Ambar, "The Hydrated Electron", Wiley, 44 (1970).
- <sup>113</sup> W.F. Schmidt e A.O. Allen, *J. Chem. Phys.* **52**, 2345 (1970).
- <sup>114</sup> R.K. Wolf, M.J. Bronskill e J.W. Hunt, *J. Chem. Phys.* **53**, 4211 (1970).
- <sup>115</sup> R.M. Minday, L.D. Schmidt e H.T. Davis, *J. Chem. Phys.* **54**, 3112 (1971).
- <sup>116</sup> J.P. Dodelet e G.F. Freeman, *Can. J. Chem.* **50**, 2667 (1972).

- <sup>117</sup>G. Beck e J.K. Thomas, *J. Chem. Phys.* **57**, 3649 (1972).
- <sup>118</sup>J.W. Hunt, R.K. Wolf, M.J. Bronskill, C.D. Jonah, E.J. Hart e M.S. Matheson, *J. Phys. Chem.* **77**, 425 (1973).
- <sup>119</sup>M.G. Robinson e G.R. Freeman, *Can. J. Chem.* **51**, 641 (1973).
- <sup>120</sup>M.G. Robinson e G.R. Freeman, *Can. J. Chem.* **51**, 680 (1973).
- <sup>121</sup>C.D. Jonah, E.J. Hart e M.S. Matheson, *J. Phys. Chem.* **77**, 1838 (1973).
- <sup>122</sup>H.A. Schwanz, *J. Chem. Phys.* **55**, 3647 (1971).
- <sup>123</sup>J.L. Magee e A.B. Taylor, *J. Chem. Phys.* **56**, 3061 (1972).
- <sup>124</sup>G. Czapski e E. Peled, *J. Phys. Chem.* **77**, 893 (1973).
- <sup>125</sup>J.R. Brandon e R.F. Firestone, *J. Phys. Chem.* **78**, 792 (1974).
- <sup>126</sup>M.M. Fischer e W.H. Hamill, *J. Phys. Chem.* **77**, 171 (1973).
- <sup>127</sup>P. Kirkegaard e M. Eldrup, *Comp. Phys. Comm.* **7**, 401 (1974).
- <sup>128</sup>L.K. Patterson e S.J. Rzed, *Chem. Phys. Lett.* **31**, 254 (1975).
- <sup>129</sup>J.R. Miller, *J. Phys. Chem.* **79**, 1070 (1975).
- <sup>130</sup>J.W. Hunt, R.K. Wolf e S.S. Chenneryn, em "Fast processes in radiation chemistry and biology", Wiley, London (1975).
- <sup>131</sup>W.J. Chase e J.W. Hunt, *J. Phys. Chem.* **79**, 2835 (1975).
- <sup>132</sup>J.H. Baxandale e P. Wardman, *Nat. Standard Ref. Data Ser.* **54**, Nat. Bur. Stds. U.S. (1975).
- <sup>133</sup>A.O. Allen, T.E. Gangwer e R.A. Holroyd, *J. Phys. Chem.* **79**, 25 (1975).
- <sup>134</sup>G.L. Bolton, K.M. Jha e G.R. Freeman, *Can. J. Chem.* **54**, 1497 (1976).
- <sup>135</sup>G.V. Buxton e K.G. Kemsley, *Trans. Farad. Soc.*, *J. Chem. Soc.* **466** (1976).
- <sup>136</sup>V.M. Byakov, *Int. J. Radiat. Phys. Chem.* **8**, 283 (1976).
- <sup>137</sup>G.R. Freeman e G.L. Bolton, *Proc. 4th Tihany Conf. on Radiat. Chem.*, Hungary, 1976, p. 999.
- <sup>138</sup>V.I. Goldanskii e V.P. Shantarovich, em "Modern Physics in Chemistry", E. Fluck e V.I. Goldanskii Ed., Academic Press, London (1976).
- <sup>139</sup>J.W. Hunt, em "Advances in Radiation Chemistry", Wiley, New York (1976).
- <sup>140</sup>G.A. Kenney-Wallace e C.D. Jonah, *Chem. Phys. Lett.* **39**, 596 (1976).
- <sup>141</sup>A.A. Zanshova, S.A. Kabalchi e A.K. Pikaev, *High Energy Chem.* **11**, 50 (1977).
- <sup>142</sup>D. Razem e W.H. Hamill, *J. Phys. Chem.* **81**, 1625 (1977).
- <sup>143</sup>C.D. Jonah, J.R. Miller e M.S. Matheson, *J. Phys. Chem.* **81**, 1618 (1977).
- <sup>144</sup>J.W. Hunt e W.J. Chase, *Can. J. Chem.* **55**, 2080 (1977).
- <sup>145</sup>L. Gilles, M.R. Bono e M. Schmidt, *Can. J. Chem.* **55**, 2003 (1977).
- <sup>146</sup>A. Farazdel e P.E. Cade, *J. Chem. Phys.* **66**, 2598 (1977).
- <sup>147</sup>G.A. Kenney Wallace, *Acct. Chem. Res.* **11**, 433 (1978).
- <sup>148</sup>D. Razem e W.H. Hamill, *J. Phys. Chem.* **82**, 1347 (1978).
- <sup>149</sup>B. Levay e A. Vertes, *Radiochem. Radioanal. Lett.* **37**, 27 (1979).
- <sup>150</sup>M. Ogasawara, K. Shimizu, K. Yoshida, J. Kroh e H. Yoshida, *Chem. Phys. Lett.* **64**, 43 (1979).
- <sup>151</sup>G.A. Kenney Wallace, *Phil. Trans. R. Soc. Lond. A.* **299**, 309 (1980).
- <sup>152</sup>J.W. Van Leeuwen, M. Heijman, H. Nauta e G. Casteleijn, *J. Chem. Phys.* **73**, 1483 (1980).
- <sup>153</sup>J.C. Mialocq, J. Sutton e P. Goujon, *J. Chem. Phys.* **72**, 6338 (1980).
- <sup>154</sup>C. Stradowski, M. Wolszczac e J. Khoh, *Radiat. Phys. Chem.* **16**, 465 (1980).
- <sup>155</sup>Y. Wang, M.K. Crawford, M.J. McAuliffe e B. Eisenthal, *Chem. Phys. Lett.* **74**, 160 (1980).
- <sup>156</sup>J.M. Wiesenfeld e E.P. Ippen, *Chem. Phys. Lett.* **73**, 47 (1980).
- <sup>157</sup>V.M. Byakov e F.G. Nichiporov, *Radiochem. Radioanal. Lett.* **48**, 101 (1981).
- <sup>158</sup>G.A. Kenney Wallace e Ch. D. Jonah, *J. Phys. Chem.* **86**, 2572 (1982).