BIBLIOTECA CENTRAL LUIS F LELOIR BIBLIOTECA CENTRAL LUIS FACULTAD DE CIENCIAS EXACTAS Y NATURALES UBA

Tesis de Posgrado

Rendimiento de pares isoméricos en la fisión de uranio natural con deuterones

Tenreyro, Elma Angela Antonieta

1963

Tesis presentada para obtener el grado de Doctor en Ciencias Químicas de la Universidad de Buenos Aires

Este documento forma parte de la colección de tesis doctorales y de maestría de la Biblioteca Central Dr. Luis Federico Leloir, disponible en digital.bl.fcen.uba.ar. Su utilización debe ser acompañada por la cita bibliográfica con reconocimiento de la fuente.

This document is part of the doctoral theses collection of the Central Library Dr. Luis Federico Leloir, available in digital.bl.fcen.uba.ar. It should be used accompanied by the corresponding citation acknowledging the source.

Cita tipo APA:

Tenreyro, Elma Angela Antonieta. (1963). Rendimiento de pares isoméricos en la fisión de uranio natural con deuterones. Facultad de Ciencias Exactas y Naturales. Universidad de Buenos Aires. http://digital.bl.fcen.uba.ar/Download/Tesis/Tesis_1211_Tenreyro.pdf

Cita tipo Chicago:

Tenreyro, Elma Angela Antonieta. "Rendimiento de pares isoméricos en la fisión de uranio natural con deuterones". Tesis de Doctor. Facultad de Ciencias Exactas y Naturales. Universidad de Buenos Aires. 1963. http://digital.bl.fcen.uba.ar/Download/Tesis/Tesis_1211_Tenreyro.pdf





UBA Universidad de Buenos Aires

Dirección: Biblioteca Central Dr. Luis F. Leloir, Facultad de Ciencias Exactas y Naturales, Universidad de Buenos Aires. Intendente Güiraldes 2160 - C1428EGA - Tel. (++54 +11) 4789-9293 UNIVERSIDAD DE BUENOS AIRES

Facultad de Ciencias Exactas y Naturales Doctorado en Ciencias Químicas Orientación Química Nuclear

RENDIMIENTO DE PARES ISOMERICOS EN LA FISION DE URANIO NATURAL CON DEUTERONES

Elma Angela Antonieta Tenreyro

Resumen de la Tesis presentada para optar al Título de Doctor en Química AÑO 1963

R. de Terris: 1211

Con el presente trabajo se trata de hacer una pequeña contribución, con datos experimentales, a una sistemática de determinación de rendimientos independientes de pares isoméricos en fisión.

Dado que los isómeros nucleares son nucleídos de igual número de masa y carga pero con diferentes momentos angulares intrínsecos (spines), se ha considerado de interés hallar la relación entre los rendimientos mencionados.

Con tal fin se planteó el siguiente plan de trabajo destinado a la determinación de las relaciones de rendimientos independientes de Xe^{133m/133} y Xe^{135m/135} producidos en la fisión del uranio natural inducida con deuterones de energía moderada:

- a) Preparación de los blancos a irradiar.
- b) Elección, puesta a punto y aplicación de los métodos a emplear en la separación de los nucleídos de interés de la mezcla de productos de fisión.
- c) Medición de las fuentes radioactivas preparadas y determinación de su velocidad absoluta de desintegración.
- d) Cálculos tendientes a la obtención de las relaciones de rendimientos buscadas.
- e) Análisis y conclusiones.

Como una introducción al trabajo experimental, el Capítulo I de esta Tesis se dedicó a hacer una descripción de las principales características observadas en el proceso de fisión y de algunos de los modelos nucleares utilizados durante el desarrollo de las teorías sobre fisión nuclear, algunas de las cuales fueron resumidas en el mismo Capítulo.

El Capítulo II incluye los métodos experimentales aplicados, los que implican: técnicas de irradiación, cálculos de rendimientos, separación de nucleídos producidos en fisión, dispositivos de medición de fuentes radioactivas, determinación de velocidades absolutas de desintegración y resolución de curvas de desintegración.

Las irradiaciones fueron realizadas con el haz interno del sincrociclotrón de la Comisión Nacional de Energía Atómica y los blancos estaban formados por una lámina de uranio metálico. La energía de los deuterones incidentes en el mismo se estimó en 13,3 \pm 1,4 Mev.

El cálculo de rendimientos independientes se llevó a cabo aplicando ecuaciones deducidas sobre la base del desarrollo matemático clásico de las transformaciones radioactivas sucesivas, ecuaciones cuya deducción se ha detallado en el Apóndice del trabajo.

La separación de los isótopos de xenón formados en fisión se realizó arrastrando con hidrógeno los gases producidos en la disolución de los blancos y separándolos por adsorción sobre carbón activado mantenido a una temperatura entre -12°C y -15°C (hielo y sal).

El dispositivo empleado en la medición de las fuentes radioactivas preparadas fue un espectómetro de centelleo, siendo el detector un cristal de I Na activado con **Tl.**

Para la conversión de las velocidades de contaje medidas a velocidades absolutas de desintegración se calibró en eficiencias la unidad de contaje, en las mismas condiciones seguidas en la medición de las fuentes de xenón. Se construyó así una curva de eficiencia práctica de medición.

El análisis de las curvas de desintegración se efectuó aplicando los métodos gráfico-analíticos clásicos.

Los resultados experimentales, reseñados en el Capítulo III, condujeron a la obtención de las relaciones de rendimientos independientes buscadas. Los valores hallados han sido expresados como el cociente entre el rendimiento del nivel isomérico superior (metaestable) y el rendimiento del nivel isomérico inferior (fundamental), siendo 0,40 para el par Xe^{133m/133} y 0,50 para el par Xe^{135m/135}.

Estos resultados son congruentes con los obtenidos por otros autores para otros pares isomóricos, en condiciones análogas. En todos los casos se observa una tendencia a favorecer la producción de isómeros de menor spin en la fisión del uranio



natural a energías moderadas.

La discusión seguida por Pappas y Sharp (Inorg. and Nucl. Chem., <u>10</u>, p.1732, 1952) para explicar este hecho hace uso de la teoría clásica de formación de un núcleo compuesto como etapa intermedia de las reacciones nucleares inducidas a energías moderadas.

El curso seguido por las reacciones sería tal que favorecería la formación de productos cuyosspines fueran más próximos al del núcleo compuesto.

En los pares isoméricos estudiados este producto sería el isómero de menor spin. Por lo tanto, los resultados obtenidos en este trabajo concuerdan con la teoría mencionada.

pii lorg

Gins De annie

UNIVERSIDAD DE BUENOS AIRES

Facultad de Ciencias Exactas y Naturales Doctorado en Ciencias Químicas Orientación Química Nuclear

RENDIMIENTO DE PARES ISOMURICOS EN LA FISION DE URANIO NATURAL CON DEUTERONES

Elma Angela Antonieta Tenreyro

Tesis presentada para optar al

Título de Doctor en Química

AÑO 1963

TESIS! 121

AGRADECIMIENTO

Agradezco en primer lugar a quienes apadrinaron esta Tesis: la Dra Sonia J. Nassif y el Dr Rafael Rodríguez Pasqués, ambos pertenecientes a la Cátedra de Química Nuclear de la Facultad de Ciencias Exactas y a la Comisión Nacional de Energía Atómica.

Deseo expresar mi reconocimiento a las autoridades de la C.N.E.A. por haberme permitido realizar esta investigación en los laboratorios de Radioquímica que le pertenecen, y al Consejo Nacional de Investigaciones Científicas y Técnicas gracias a cuya beca pude dedicarme a llevar a cabo esta Tesis.

Me complazco en agradecer al Dr Daniel R. Bés por la revisión que realizó de la sección correspondiente a teorías de fisión.

Quiero también agradecer a la Dra Rebeca Guber, del Instituto de Cálculo de la Facultad de Ciencias Exactas y Naturales, y al personal de dicho Instituto que realizó, con la computadora Mercury, algunos de los cálculos involucrados en el presente trabajo.

Mi gratitud también al personal de la C.N.E.A. que, de una forma u otra, facilitó la realización de esta Tesis, en particular a los miembros de la División Radioquímica, del Sincrociclotrón, y al Dr Renato Radicella por su constante apoyo e interés.

También me siento reconocida ante el Dr Carlos Mallmann y los miembros del Departamento de Física de C.N.E.A. por las útiles sugerencias formuladas.

No quiero dejar de recordar la importante colaboración prestada por el personal técnico perteneciente a los laboratorios y talleres de la C.N.E.A., quienes facilitaron la realización práctica de gran parte del trabajo.

Culture 7. House Mar



Capítulo I El proceso de fisión	1
lDescripción del procesc de fisión	1
a)Secciones eficaces y umbrales de fisión	2
b) Distribución de masas de los fragmentos de fisión 3	2
c) Distribución de energías	5
d) Distribución de carga	5
e) Distribución an _E ular	6
f) Emisión de neutrones y radiación gamma	7 ·
2 Modelos nucleares	9
a) Modelo de capa s	9
b) Nodelo de la gota 1	0
c) Modelo estadísticol	l
d) Modelo colectivo unificadol	1
3 Teorías de fisión1	2
4 Introducción y finalidad del presente trabajo 2	6
Capítulo II Métodos experimentales 2	7
ATécnicas de irradiación 2	7
1Energía del haz de deuterones 2	7
2Blancos 2	7
3Irradiaciones 2	8
BRendimientos de fisión 2	9
lDefiniciones2	9
a) Rendimiento de fisión total o acumulativo 2	9
b) Rendimiento de fisión independiente 2	9

2Cálculo de rendimientos independientes	29
a) Actividad de un nucleído que ocupa el primer	
lugar en la cadena	30
b) Actividad de un nucleído que ocupa el segundo	
lugar en la cadena	30
c) Actividad de un nucleído con dos precursores	
independientes entre sí	31
d) Actividad de un nucleído con dos precursores re-	
lacionados genéticamente	32
CSeparación de nucleídos producidos en fisión	33
l Técnicas comunes	3 3
2 Método de separación	38
3 Montaje de las fuentes radioactivas	38
4 Control del método de separación	39
D Dispositivo de medición	40
l Descripción	40
a) Cristal detector	40
b) Tubo fotomultiplicador	40
c) Equipo electrónico	40`\
2 Disposición fuente-detector	40
3 Principios del funcionamiento	41
4 Respuesta del detector a la radiación	42
a) Efecto fotoeléctrico	43
b) Efecto Compton	43
c) Producción de parcs	43
d) Resolución del detector	44
5 Calibración en energías	44
6 Calibración en eficiencias	45

•	
EDeterminación de velocidades de desintegración	47
l Eficiencias de medición	47
a) Fuentes radioactivas utilizadas	47
b) Calibración de soluciones	49
c) Cálculo de las eficiencias p rácti cas de los	
nucleídos patrón	51
d) Trazado de la curva de eficiencias prácticas	51
2 Pasaje de velocidad de contaje a velocidad	
de desintegración	52
FResolución de curvas de desintegración	53
1 Medición de la velocidad de contaje total de	
un par de nucleídos relacionados genéticamente	53
2 Medición de la velocidad de contaje de un nu-	
cleído producido por desintegración de otro tam-	
bién presente en la muestra	54
a) Caso en el que el nucleído hija no está presente	
inicialmente.	54
b) Caso en el que el nucleído hija está presente en	
la muestra desde un principio	54
3 Medición de la velocidad de contaje total de un	
par de nucleídos relacionados genéticamente, jun-	
to con un nucleído independiente	55
Capítulo III Mediciones y resultados experimentales	5 7
A Datos de desintegración de los nucleídos	
investigados	5 7
B Medición de las actividades	59

• • • •

l Par isomérico Xe ^{135m/135}	59
2 Par isomérico Xe ^{133m/133}	60
3 Términos implicados en la resolución de las	
curvas de desintegración	61
C Relación de rendimientos independientes	63
l Par isomérico Xe ^{135m} /135	63
a) Cadena completa	63
b) Cadena aproximada	64
2 Par isomérico $Xe^{1.33m/133}$	64
a) Cadena completa	64
b) Cadena aproximada	65
D Discusión del trataniento seguido en la compara-	
ción entre los valores de relaciones de rendimien-	
tos obtenidos utilizando las cadenas completas y	
las cadenas aproximadas de productos de fisión	67
EResultados experimentales	69
FErrores y reproducibilidad	71
GAnálisis y conclusiones	7 2
Apéndice	7 5
Referencias	80

CAPITULO I

El proceso de fisión

In 1934 Fermi y sus colaboradores (9 F 34) descubrieron que los neutrones pueden ser capturados por núcleos pesados y formar luego nuevos isótopos radioactivos; encontraron en el caso del uranio, valores de Z y A mayores que los conocidos hasta entonces. Meitner (2 M 39), Hahn y Strassman (6 H 39) paralelamente con Curie y Savitch encontraron resultados inesperados en sus investigaciones, tales como radioelementos de A y Z menores que los de los isótopos del uranio cuando éste había sido irradiado con neutrones. Meitner y Frisch (2 M 39) dieron el nombre de <u>fisión</u> <u>nuclear</u> al nuevo tipo de reacción nuclear responsable de los fenómenos observados.

En el presente capítulo se hará una descripción de las principales características observadas en el proceso de fisión y dealgunos de los modelos nucleares utilizados durante el desarrollo de las teorías sobre fisión nuclear que serán resumidas en la última sección.

1.-Descripción del proceso de fisión

El término fisión involucra un número de fenómenos asociados. El proceso en el cual un núcleo se divide en dos fragmentos de tamaño comparable, que es el más común, se denomina <u>fisión</u> <u>binaria</u>. Más raramente se observan procesos en los cuales el núcleo fisionante se divide en tres o más fragmentos pesados (fisión ternaria, cuaternaria, etc.), así como también la emisión de partículas \checkmark de largo alcance y nucleídos livianos (de número de masa A mayor que 4 y menor que 2) junto con el proceso de fisión binaria.

Los productos de fisión nuclear se caracterizan por ser emisores f, lo que permite su identificación. Entre ellos se presenta con frecuencia el fenómeno de <u>isomerismo nuclear</u>. Los <u>isómeros nucleares</u> son estados de energía diferentes de un mismo isótopo que se diferencian de los estados excitados comunes solamente por poseer períodos de semidesintegración medibles, y son considerados nucleídos individuales. Se observa también que el proceso de fisión está acompañado por la emisión de radiación \bigotimes y de neutrones, algunos de los cuales parecen estar directamente asociados con él y otros ligados a las subsiguientes transformaciones \bigwedge de los fragmentos nucleares.

La fisión puede ser inducida con partículas descargadas (neutrones) o cargadas (protones, deuterones, etc.) y por radiación electromagnética. Se observa también fisión espontánea, en la que el núcleo se divide, estando en su estado fundamental, sin intervención de ningún agente externo.

En el estudio del proceso de fisión se pueden dividir los problemas que se presentan en dos grupos principales: el primero incluye el proceso en sí, cuándo y cómo se produce (energía umbral de fisión, secciones eficaces, etc), el segundo grupo comprende todas las características observadas una vez que ha ocurrido la fisión (división de masa, carga y energía entre los fragmentos y su distribución angular).

a) Secciones eficaces y umbrales de fisión

Dado que el proceso de fisión es exoenergético, el término <u>umbral de fisión</u> no significa umbral en el sentido real (por ejemplo: umbral fotoneutrónico) sino algo análogo a la energía de activación de una reacción química exotérmica.

El valor numérico del umbral de fisión depende de la sensibilidad de la medición de la sección eficaz (sección eficaz:cantidad que dá una medida cuantitativa de la probabilidad de una dada reacción nuclear) la que conduce a la determinación del umbral. For lo tanto, la energía umbral de fisión puede considerarse como una zona energética en la cual cambia la pendiente de la curva que representa una magnitud proporcional a la probabilidad de fisión (por ejemplo la sección eficaz) en función de la energía de excitación.

b)Distribución de masas de los fragmentos de fisión

Se encuentra experimentalmente que los números de masa de los productos de fisión primarios cubren un margen desde A = 72 hasta A = 158 aproximadamente. Esto indica que cada ruptura del núcleo que se fisiona puede dar lugar a distintos pares de productos.

Como los nucleídos que se fisionan contienen exceso de neutrones con respecto a protones, los fragmentos de fisión inicia-

- 2 -

les son inestables y desintegran por una serie de emisiones 3^{-} , (donde el A permanece constante); cada serie de nucleídos que comienza con un fragmento primario se denomina <u>cadena de fisión</u>. Por lo tanto para encontrar el rendimiento de un dado número de masa se mide la abundancia de un nucleído de período de semidesintogración largo próximo al final de la cadena, o del producto estable en el que ella termina.

El rendimiento de fisión de un producto particular está expresado como el porcentaje de fisiones que forman aquel producto; considerando que cada fisión da lugar a dos nucleídos el rendimiento total es de 200%. La representación de esta distribución se hace generalmente en papel semilogarítmico dado que los rendimientos varían muy ampliamente (desde 10^{-5} hasta 6% en la fisión del U²³⁵ con n térmicos).

La figura I.1 da la distribución de masas de los fragmentos de fisión para varios nucleídos. Las curvas son similares en su forma general aunque presentan diferencias en detalles. Son aprominadamente simétricas con respecto al valor <u>A+1 - V</u>, siendo A el númeio de masa del núcleo fisionante y 👂 el número de neutrones emitidos acompañando el proceso. Los picos que representan los productos pesados están casi exactamente superpuestos, mientraz que los picos de los productos livianos están algo separados. La proporción en que los nucleídos se dividen en fragmontos aproximadamente iguales (fisión simétrica) es mucho menor que la correspondiente a fragmentos con relación de masas del orden de 2 a 3 (fisión asimétrica). Los máximos de los picos aparecen aproximadamente en A = 95 (pico liviano) y A= 139 (pico pesado) y el valle central coincide con el centro de simetría de las curvas. La relación entre los rendimientos correspondientes a los picos y al valle varía con la energía de las partículas bombardeantes y con el nucleído blanco.

El incremento en la energía de las partículas bombardeantes produce una variación en La forma relativa de las curvas de distribución de masas. La figura I.2 da las distribuciones de masas de los fragmentos producidos en la fisión de Uranio natural con deuterones de 5,2 Mev, 9,9 Mev y 13,6 Mev (8 S 57).

La fisión producida con partículas muy energéticas, que causan un alto grado de excitación, tiene ciertas características

- 3 -



Fig. I. 1 - Curvas de distribución de masas de los fragmentos producidas en la fisión de $U^{235}(a) U^{233}(b) y P_{U}^{239}(c)$ con neutrones térmicos (9555)



Fig I 2 - Distribuciónes de masas en la fision de uranio natural inducida con deuterones de 5,2 Mev (a) 9,9 Mev (b) y 13,6 Mev (c) (8557)





que le son propias. Jungerman y Wright (1 J 49) estudiaron la fision de U^{238} , U^{235} , Th^{232} y B^{209} , inducida con neutrones de 90 Nev y 45 Mev. La característica principal del proceso de fisión a estas altas energías es el predominio de la ruptura simétrica del núcleo fisionante. En las curvas de distribución de masas la depresión central se hallenado, obteniéndose un único pico correspondiente a la fisión simétrica; los costados de la distribución de masas se han desplazado, obteniéndose un margen más amplio de valores de A. Los productos de fisión formados a altas energías difieren bastante de los obtenidos con energías más bajas. Las cadenas de desintegración 🔏 son todas cortas y se forman muchos isótopos estables como productos primarios. Además los fragmentos livianos tienden a emitir /3[°] mientras que los más pesados pueden ser deficientes en neutrones y desintegrar por emisión /3⁺ o por captura electrónica. La figura I.3 permite comparar las curvas de distribución de masas en la fisión de U²³⁵ inducida con neutrones térmicos y con neutrones de 14 Mev.

También se observa fisión principalmente simétrica a energías más bajas en el Bi²⁰⁹ cuya curva de distribución de masas para la fisión con deuterones de 22 Mev presenta un único pico agudo (fig.I.4). La fisión del radio parece ser una combinación de la fisión asimétrica corriente y de esta fisión simétrica.Las curvas que dan la distribución de masas de los fragmentos de fisión del Ra²²⁶ con p de ll Mev (fig.I.5) presentan tres picos característicos.

La distribución de masas para la fisión del U^{235} con n térmicos presenta irregularidades en el máximo de la curva correspondiente a fragmentos con número de masa alto (pico pesado) y en el "costado izquierdo" del pico que define los rendimientos de fragmentos con número de masa bajo (pico liviano) (fig.I.3). Tales irregularidades han sido denominadas <u>estructura fina</u> y consisten en un pequeño pico bien definido, superpuesto al pico pesado, para A2134, y en rendimientos mayores que los dados por una curva suave en la zona de A = 85. Para fisión con neutrones de 14 Mev desaparece esa estructura fina, la que tampoco está presente en la fisión del U²³³ con neutrones térmicos.

- 4 -



c) <u>Distribución</u> de energías

La diferencia de masas entre el núcleo que se fisiona y los fragmentos corresponde a una energía de aproximadamente 200 Mev cuya mayor parte se debe a la energía de repulsión coulombiana de los fragmentos en el momento de ruptura. Más tarde aparece como energía cinética de los fragmentos. La distribución de energías cinéticas de los productos de fisión puede ser obtenida mediante la medición de la ionización producida por aquéllos en cámaras de ionización apropiadas.

La figura I.6 muestra la curva de distribución de energías cinéticas de los fragmentos producidos, en la fisión del U^{235} con n térmicos: este espectro de energías es típico de la fisión inducida con n lentos, y las curvas para U^{233} y Pu^{239} son enteramente análogas (fig. I.7). Los picos, ubicados aproximadamente en energías de 60,2 Mev y 94,5 Mev, muestran la asimetría del proceso de fisión. La amplia variación en la energía cinética involucrada en la fisión de un dado nucleído (desde 120 Mev hasta 180 Mev aproximadamente) ha sido atribuida a variaciones en el número y energías de los neutrones emitidos en el momento de la ruptura o a la distribución de carga primaria.

En la fisión del U^{235} la energía cinética más probable tiene un valor de 165 \pm 8 Mev según resultados de mediciones calorimétricas (4 H 40). Un fragmento <u>pesado</u> de energía cinética <u>menor</u> que la energía media tiende a ser emitido junto con un fragmento <u>liviano</u> de energía cinética también <u>menor</u> que la energía media. Ya que la suma de las masas de los dos fragmentos es aproximadamente constante, un fragmento desusadamente pesado está siempre acompañado por un fragmento liviano desusadamente pequeño. Por lo tanto la curva de distribución de energías no es, ni aún aproximadamente, una inversión de la curva de distribución de masas.

Los valores medios medidos para las energías cinéticas totales de los fragmentos de fisión de distintos nucleídos no varían sensiblemente con la energía de excitación inicial (para un mismo nucleído), y parecen ser función lineal creciente del parámetro $Z_7^{2/A^{1/3}}$ (1 L 58).

d) Distribución de carga

Las determinaciones de la distribución de carga de los fragmentos de fisión han sido llevadas a cabo principalmente por métodos químicos e involucran la medición de rendimientos de productos primarios.

Los fragmentos formados llevan consigo una gran parte de sus electrones orbitales teniendo entonces una carga residual; ésta es del orden de 20e (e es la carga del electrón) resultante de la diferencia entre la carga de la nube electrónica y la carga nuclear. Por esta razón no hay métodos físicos, tales como los que emplean curvaturas en campos magnéticos, que permitan obtener en forma directa el número atómico de los fragmentos.

Una representación de la distribución de carga de los productos de fisión daría una curva enteramente análoga a la que describe la distribución de masas. En la práctica es común graficar los resultados como <u>rendimientos fraccionarios de cadena</u> en función del <u>desplazamiento de carga</u>. El <u>rendimiento fraccionario de</u> <u>cadena</u> para un nucleído es la relación entre su rendimiento independiente y el rendimiento de todos sus isóbaros. El <u>desplazamiento de carga (Z- Z_p) es la diferencia entre la carga del isóbaro considerado (Z) y la carga más probable (Z_p) para el valor de A correspondiente. El valor Z_p es postulado por diferentes teorías (Secc.3) las que suponen siempre que el rendimiento fraccionario de cadena debe ser una función continua de Z- Z_p con un máximo para Z = Z_p.</u>

e) Distribución angular

Se observó por primera vez anisotropía angular en los fragmentos de fisión con respecto al haz incidente en la fisión ind**t**cida con fotones (4 W 52). La anisotropía en la distribución angular de los fragmentos depende del tipo de nucleído fisionante, de la relación de masas de los fragmentos y de la energía de bombardeo.

La distribución angular de los fragmentos refleja la forma en la que el núcleo fisionante divide el momento angular que le fue suministrado por la partícula bombardeante; la parte de este momento angular que se convierte en momento angular orbital entre los fragmentos es lo que se observa en la distribución angular.

Se encontró que para energías de fotones incidentes ligeramente superiores al umbral se emiten más fragmentos en ángulo recto con respecto al haz de fotones que en otras direcciones.

Cuando la partícula incidente tiene energías de hasta unas decenas de Mev las características principales observadas en la distribución angular de los fragmentos son las siguientes:

- I) Los fragmentos son emitidos con probabilidades mayores en la dirección del haz incidente, en el mismo sentido y en sentido opuesto.
- II) Con blancos de A impar y blancos par-par la anisotropía es aproximadamente la misma (a diferencia con la fotofisión a bajas energías).
- III) La anisotropía observada en el bombardeo con partículas es mayor que la observada con deuterones y a su vez es mayor que la resultante de bombardear con protones.
 - IV) En la fisión con neutrones la anisotropía aumenta agudamente cada vez que se alcanza un umbral correspondiente a "primera, segunda y tercera posibilidad de fisión".
 - V) Cuando aumenta la energía de bombardeo la anisotropía media (tomada sobre intervalos de aproximadamente 10 Mev) cambia sólo suavemente.
 - VI) La anisotropía es mayor para las masas más asimétricas (A=182,185), efecto que ha sido observado también en fotofisión (8 F 54).
- VII) Al aumentar el valor Z²/A del núcleo blanco, la anisotropía decrece. Se ha estudiado también la distribución angular de los fragmentos de fisión inducida con energías próximas a 100 Mev y aún mayores. Cuando las partículas bombardeantes son iones pesalos la anisotropía es relativamente alta. En la fisión producida con nucleones de alta energía las anisotropías son generalmente pequeñas.

f) Emisión de neutrones y radiación gamma

La comparación entre la relación de neutrones a protones en los fragmentos de fisión y en los núcleos fisionantes indica la posibilidad de la emisión de neutrones durante el curso del fenómeno.

Los neutrones emitidos como resultado del proceso de fisión pueden agruparse en dos clases: neutrones inmediatos y retardados. Más del 99% del total de neutrones son emitidos dentro - 8 -

de un pequeñísimo intervalo de tiempo, del orden de 10⁻¹² segundos, y los restantes, dentro de los 10⁻⁴ segundos.

Se cree que el núcleo se divide primeramente en dos fragmentos cuya relación de neutrones a protones es demasiado alta para su estabilidad. Los fragmentos inestables evaporan probablemente uno o más neutrones inmediatamente después de su formación. Son éstos los llamados neutrones inmediatos. Las experiencias sobre correlación angular entre estos neutrones y los productos primarios muestran que aquéllos son emitidos preferentemente en la misma dirección que los fragmentos, lo que concuerda con la teoría enunciada sobre su formación.

Aproximadamente el 0,73% de los neutrones totales provenientes de fisión (los llamados neutrones retardados) son emitidos hasta algunos minutos después de la división del núcleo fisionante, con intensidad gradualmente decreciente. El estudio de esta intensidad permitió distinguir cinco grupos bien definidos de neutrones retardados, cuya velocidad de disminución de intensidad es función exponencial del tiempo.

Los neutrones retardados son emitidos cuando se forma un nucleído, por desintegración $/3^{\circ}$ de uno de sus precursores, en un estado tan altamente excitado que puede desexcitarse por emisión de un neutrón. Dado que este último proceso es prácticamente instantáneo el neutrón parece ser emitido con un período igual al de la desintegración $/3^{\circ}$ precedente. Como ejemplo se puede citar el Br⁸⁷ que decae a Kr⁸⁷ el que al ser formado en un nivel de energía muy alto emite un neutrón para producir el núcleo estable de Kr⁸⁶.

La energía de los neutrones inmediatos varía dese 0,05 Mev hasta 17 Mev aproximadamente. En el intervalo entre 0,075 Mev y 17 Mev la distribución de energías puede estar dada por: $N_{(E)} = e^{-E} \operatorname{senh} \sqrt{2E} \operatorname{siendo} N_{(E)}$ el número de neutrones de energía E.

El número medio de neutrones emitidos en la fisión del U²³⁵ con neutrones térmicos (\checkmark) es de 2,47 ± 0,03 (5 A 61) y su energía media es del orden de 1,98 Mev.

En el proceso de fisión también se observa la presencia de emisión gamma. Hay evidencias experimentales que indicarían que los rayos **b** inmediatos no son emitidos hasta que los fragmentos han evaporado todos los neutrones que pueden desprender.

Rose y Wilson (5 W 47) hallaron el valor de 5,2 ± 0,5 Mev por fisión para la energía total de los rayos gamma inmediatos y que aproximadamente son emitidos seis rayos or fisión con una distribución amplia de energías. Menos del 2% de los fotones tienen energías mayores que 2 Mev. De la observación experimental de la distribución angular de los fotones inmediatos con respecto a los fragmentos Hoffman (7 H 58) encontró que tal distribución es esencialmente isotrópica. Hay sin embargo una ligera anisotropía, un pequeño porcentaje más alto de fotones emitidos en la dirección del fragmento que en ángulo recto.

2.- Modelos nucleares

En ausencia de una teoría nuclear exacta capaz de explicar la totalidad de las características surgidas durante el estudio de algunos fenómenos nucleares, entre ellos el de fisión, se desarrollaron a partir de 1939 varios modelos nucleares que intentan justificar las observaciones experimentales. Cada modelo explica solamente algunas de las propiedades nucleares conocidas. A continuación se dan, en líneas generales, las principales características de algunos de los modelos nucleares utilizados en el desarrollo de la teoría de la fisión nuclear.

Los modelos de <u>partículas independientes</u> suponen que hay muy poca interacción entre los nucleones cuando el núcleo está en su estado fundamental o en uno de sus nivelos menos excitados. El <u>modelo de capas</u> es un ejemplo de este tipo.

Los modelos de <u>interacción fuerte</u> postulan una gran interacción entre los nucleones. El modelo de la <u>gota líquida</u> y el <u>modelo estadístico</u> pertenecen a este grupo.

Hay modelos que tratan de conciliar las características extremas (independencia de las partículas e interacción fuerte); el <u>modelo unificado o colectivo</u> es uno de ellos.

a) <u>Modelo de capas</u>

Se ha observado la existencia de nucleídos especialmente estables cuando el número de protones (Z) o el número de neutrones (N) es igual a uno de los siguientes números: 2, 8, 14, 20, 28, 50, 82, 126, los que han sido llamados <u>números mágicos</u>. La evidencia de números mágicos para neutrones es mucho mayor que para protones. Los fenómenos relacionados con números mágicos han sido interpretados como una indicación de que los neutrones y protones dentro del núcleo están ordenados en capas, igual que los electrones en los átomos. Cada capa está limitada a un cierto número máximo de nucleones de un dado tipo. Cuando se llena una capa, la configuración resultante es particularmente estable, y, por lo tanto, de baja energía.

Las teorías que tratan de describir la naturaleza de estas capas están todas basadas en el modelo de la partícula independiente. Suponen que los nucleones se mueven bajo la influencia de un potencial común y que la interacción entre ellos puede ser tratada como una pequeña perturbación.

El modelo de capas ha sido usado con éxito para describir los hechos principales del fenómeno de los números mágicos y tambien spines, momentos magnéticos y espectros de niveles de muchos nucleídos.

b) Modelo de la gota líquida

Algunas de las propiedades de las fuerzas nucleares (saturación, corto alcance, etc.) son análogas a ciertas características de las fuerzas que mantienen unida a una gota líquida. El llamado <u>modelo de la gota líquida</u> considera al núcleo como una gota de fluído incomprensible uniformemente cargada. Los nucleones en el núcleo corresponderían a las moléculas del líquido, de allí la observada variación aproximadamente lineal de la energía y el volumen del núcleo con el número de nucleones (A). La energía necesaria para evaporar completamente una gota en moléculas separadas es proporcional al número de moléculas y es análoga a la energía de unión del total de los nucleones en el núcleo. La tensión superficial (\bigcirc) introduce un nuevo factor (proporcional a A^{2/3}) debido a que las partículas superficiales están menos fuertemente unidas que las internas.

También se tiene en cuenta la repulsión electrospática entre los protones presentes en el núcleo, la que conduce a un término en la expresión de la energía de unión total del núcleo en el que figura la carga nuclear Ze.

Sobre la base de todas estas consideraciones, del modelo de

- 10 -

la gota se deduce una fórmula semiempírica para la masa (o la energía de unión) de un núcleo en su estado fundamental que intenta describir la dinámica nuclear en términos equivalentes al movimiento de una gota líquida.

c) Modelo estadístico

El método estadístico introducido por V.F. Weisskopf (1 W 47) para describir el comportamiento del núcleo hace las siguientes suposiciones generales:

 I) El núcleo puede ser considerado como una "fase condensada" del sistema neutrón-protón, en el sentido termodinámico (modelo de la gota).

Además, (parte principal de la suposición primera) las propiedades características de la materia nuclear, especialmente la estrecha proximidad de los constituyentes, son mantenidas aún cuando el núcleo esté excitado a energías suficientemente altas como para emitir uno o más de sus constituyentes. Esta suposición no se mantiene para energías de excitación muy altas de los núcleos. El margen de energías en el que el núcleo puede ser considerado como una fase condensada varía de núcleo a núcleo, pero la suposición es valedera hasta energías de excitación que representan una fracción grande de su energía de unión total.

- II) Según N. Bohr, una reacción nuclear se puede dividir en dos pasos: a) formación del núcleo compuesto en un estado bien definido y b) desintegración del sistema. Este segundo paso se puede considerar como independiente del primero.
- III) El método estadístico supone la existencia de valores medios de ciertas magnitudes promediados sobre estados dentro de un intervalo de energías de excitación no demasiado altas. Se supone que estos promedios son función suave de la energía. Las magnitudes referidas son distancias entre niveles, probabilidades de transición a ciertos estados, etc.

d) Modelo colectivo o unificado

Ciertas características del núcleo se describen de un modo muy conciso refiriéndolas a las órbitas de las partículas (evidencias de spin, momento magnético y estructuras de capas) y otras a los movimientos colectivos del núcleo en conjunto. Hill y Wheeler (1 H 53) desarrollaron el llamado <u>modelo</u> <u>colectivo</u>, tratando de unificar las ideas aparentemente opuestas del modelo de la gota y del de la partícula independiente, considerados ambos parte incompleta de un todo.

En el modelo colectivo resultante se hace una distinción entre el estado nucleónico del sistema (definido por los estados ocupados por los nucleones individuales) y los estados de vibración y rotación del núcleo como un todo. La energía cinética y potencial de estos movimientos recibe una explicación en términos de grados de libertad de las partículas individuales. Así como en la descripción vibracional-rotacional-electrónica de la estructura molecular, Hill y Wheeler consideraron razonable que la emergía potencial de deformación nuclear fuera definida por la suma de las energías de interacción, en función de la forma del sistema. Estados diferentes de todas las partículas individuales darían lugar a superficies de energía potencial diferente. Las fecuencias de vibraciones corresponden, en términos generales, a las predichas por el modelo de la gota simple.

3.- Teorías de fisión

El objeto de la presente sección es pasar revista brevemente a algunas de las numerosas teorías desarrolladas para explicar diversos aspectos del proceso de fisión.

Para explicar la asimetría se ha acudido a diferentes teorías y métodos que pueden servir también para explicar otros parámetros de la fisión. Entre ellos son de mencionar: perfeccionamiento del modelo de la gota líquida (1 B 39; 1 S 51; 1 H 53), incluyendo efectos dinámicos (2 H 58); la relación entre la penetración de la barrera y la asimetría de fisión (1 F 46); efectos de las capas nucleares (1 M 48; 3 H 55); la determinación del modo de fisión según la población de niveles de los fragmentos (2 F 53,1 N 56; l C 58);los estados cuánticos del núcleo fisionante en el punto de ensilladura (2 B 56); la interacción de las fucrzas nucleares entre los fragmentos, la deformación de éstos, la dependencia de la fuerza de interacción nuclear y la energía cinética sobre la deformación y el efecto de los números mágicos sobre la fisión nuclear (3 B 60; 4 B 61; 5 B 61).

En los numerosos aspectos del proceso de fisión intervienen

- 12 -

factores tan complejos que no es raro que cada una de estas tentativas teóricas acusara impropiedades o fallas en la explicación completa del proceso.

Entre los iniciadores de las teorías de fisión se cuentan Niels Bohr y John A. Wheeler, quienes desarrollaron un tratamiento detallado del mecanismo de los procesos de fisión y los efectos que los acompañan, basándose en el modelo nuclear de la gota (1 B 39). Estudiaron la dependencia de la carga y la masa nuclear sobre la energía de deformación crítica (energía mínima requerida para llevar al núcleo a una forma crítica), la que está relacionada con la energía potencial de una gota en un estado de equilibrio inestable. La suposición básica es que los cambios de energía que ocurren durante el proceso de fisión, provocados por las fuerzas nucleares, son originados por la tensión superficial, debido a las variaciones en la forma del núcleo.

Consideraciones estadísticas simples llevaron a Bohr y Wheeler a una expresión aproximada para la velocidad de fisión, dependiente solamente de la energía de deformación crítica y de las propiedades de la distribución de niveles nucleares. Estimaron además probabilidades de fisión y trataron de analizar las observaciones experimentales sobre secciones eficaces para distintos nucleídos y distribuciones de masas de los fragmentos.

El desarrollo general de la aplicación del modelo de la gota al fenómeno de fisión fue continuado por diversos investigadores,quienes siguieron la línea iniciada por Meitner y Frisch $(2 \ M \ 39)$ y por Bohr y Wheeler, y condujo a la interpretación de algunas de las principales características del proceso mediante el estudio de: I) El mecanismo comparado con la deformación y división de las gotitas. II) La forma de rotación simétrica dada por la expresión del radio nuclear R en función del ángulo Θ (ángulo formado por el eje de simetría del núcleo y el radio vector comprendido entre el centro nuclear y un punto que define su superficie) (fig.I.8) o por las amplitudes de oscilación \bigotimes del núcleo obtenidas del análisis armónico de esa función periódica:

$$R_{(\theta)} = R_0 \left(1 + \sum_{i=1}^{Pi} \alpha_{i}^{Pi}(\cos\theta) \right)$$
(I.1)
Pi(cos θ) (I.1)



III) La energía de deformación $V_{(\mathcal{N})}$ considerada como función de las amplitudes de oscilación o de coordenadas de deformación similares y su cálculo a partir de los términos significativos de la fórmula semiempírica de energías de unión nucleares:

$$V_{(\bullet,)} = 4 \pi r_0^2 A^{2/3} \int f_s(\bullet,)^+ \frac{3 z^2 e^2}{10 r_0 A^{1/3}} fe(\bullet,) \quad (1.2)$$

En esta expresión f_s (\checkmark) y f_e (\checkmark)son las funciones adimensionales de la "forma" de la gota deformada.

Fue definido también el <u>punto de ensilladura de la energía</u> ("saddle point"), <u>mínimo de energía, energía crítica, energía de</u> <u>activación para la fisión o barrera de fisión</u> como el mínimo de energía requerida para pasar desde el núcleo original a una deformación crítica. Esta energía y la forma crítica asociada están univocamente especificadas por el parámetro de fisionabilidad x (adimensional).

$$x = \frac{z^2 e^2}{10 A G (\frac{4}{3} \pi r_0^3)} = \frac{z^2/A}{(z^2/A)_{crit}} = \frac{z^2}{45A}$$
(1.3)

Cuendo este parámetro vale 1 la gota ya es inestable en su forma esférica; para un valor de x=1 la energía crítica tiene la forma:

$$E_{f} = 13 \text{ Mev } A^{2/3}f_{(x)}$$
 (I.4)

La función **sin** dimensiones $f_{(x)}$ ha sido calculada para distintos valores de x; cuando la excitación del núcleo compuesto es menor que T_{f} , tiene que penetrar a través de una barrera de potencial para sufrir fisión; cuando E crece por encima de E_{f} la fisión se hace rápidamente más probable; la probabilidad parcial para la fisión $f_{(E)}$ incrementa entonces casi exponencialmente con la energía.

El modelo simple de la gota, tal como fue aplicado en sus principios por Meitner y Frisch, N. Bohr y Wheeler, Hill, etc., permitió obtener valores de umbrales de fisión que concuerdan en el orden general de magnitud con los resultados de las observaciones experimentales.

No es sorprendente que el modelo no predijera con detalle la variación correcta de E_f con Z y A puesto que los cálculos seguidos tenían en cuenta núcleos originales esféricos y en cambio los núcleos reales están fuertemente deformados (3 F 53; 2 W 53; 1 A 54).

-14-

Por otra parte, el modelo simple de la gota hace una idealización demasiado sencilla de las complicadas interacciones nucleares y no debería esperarse que diela cuenta de los detalles del proceso de fisión. Además, dificultados matemáticas han hecho imposible realizar cálculos exactos de la energía potencial de superficie predicha por el modelo y solamente se han hecho algunos intentos de incorporar la dinámica del problema.

Los períodos de fisión espontánea calculados con el modelo de la gota resultaban ser menores que los experimentales para isótopos de A impar. Swiatecki (2 S 55), Newton (2 N 55) y Wheeler (3 W 55) sugirieron que los períodos anormalmente altos observados scirían debidos a "efectos de partícula-independiente".

Aage Bohr (2 B 56) fue el primero que dió una descripción del estado del núcleo en el punto de ensilladura capaz de explicar aquél y otros hechos experimentales hasta entonces sin explicación.

Examinando el estado cuántico de los núcleos fisionables cuando atraviesan el punto de ensilladura halló umbrales efectivos de fisión y su dependencia del spin y de la paridad del núcleo compuesto. Partió de la idea de deformación de núcleos compuestos sugerida por N. Bohr (6 B 36): cuando un núcleo pesado captura un neutrón o absorbe un fotón de energía elevada, se forma un núcleo compuesto en cl que la energía de excitación se distribuye entre un gran número de grados de libertad de dicho núcleo. El complejo estado de movimiento que se inicia de este modo fue descripto en función de vibraciones y rotaciones nucleares colectivas acopladas al movimiento de nucleones individuales (7 B 52; 8 B 53; 1 H 53). La sugestion principal hecha por A.Bohr es que el núcleo compuesto tiene un período de vida relativamente muy largo, generalmente del orden de 10⁶ veces superior al de los períodos nucleares fundamentales, después del cual se desintegra por emisión de radiación, de neutrones o por fisión. Este último proceso ocurre cuando se concentra una cantidad de energía potencial de deformación suficiente para permitir que el núcleo atraviese la configuración correspondiente al punto de ensilladura, en el cual las fuerzas repulsivas de Coulomb están en equilibrio con las interacciones nucleares de cohesión (2 M 39;1 B 39).

- 15 -

Para energías de excitación no muy por encima del umbral de fisión, el núcleo, al atravesar el punto de ensilladura, está "frío" ya que la mayor parte de su contenido energético está ligado a la energía potencial de deformación. Los estados cuánticos de que dispone el núcleo en el punto de ensilladura (llamados canales de fisión) están entonces ampliamente separados y representan tipos relativamente sencillos del movimiento del núcleo. A. Bohr supone que estos canales forman un espectro similar al de los primeros niveles excitados de un núcleo. Este carácter ordenado del movimiento de los núcleos en el punto de ensilladura originaría un número de consecuencias en los fenómenos de fisión. Se explicaría así la anisotropía en la distribución angular de los fragmentos, la que sería función de los números cuánticos del momento angular del canal. Además, el amplio espaciado de los canales implicaría que el umbral de fisión podría depender significativamente del spin y de la paridad del núcleo compuesto.

El trabajo de A. Bohr (1 B 39) está en su mayoría dedicado al estudio de la anisotropía en la distribución angular de los fragmentos y a los umbrales de fisión, relacionándolos con el spin y la paridad del núcleo compuesto.

Los autores nombrados hasta este punto han encarado el estudio de la fisión nuclear casi exclusivamente a partir del modelo simple de la gota.

Fong (4 F 56) presentó una teoría de la fisión nuclear enfocada estadísticamente; en el desarrollo final de la misma se valió extensamente de modelo de la gota, apartándose así del tratamiento puramente estadístico.

Los cálculos de Bohr y Wheeler (1 B 39) y Frankel y Metropolis (5 F 47), basados sobre el modelo de la gota líquida, y usando la fórmula de masas del mismo modelo, dan como resultado que la <u>energía total desprendida</u> es mayor para fisión simétrica. La fórmula de masas del modelo de la gota (la dada por Fermi(6 F 49) y usada por Metropolis y Reitwiesner para calcular su tabla de masas (3 M 50))algunas veces está en marcado desacuerdo con los valores experimentales. Posteriores progresos en la determinación de masas nucleares permitieron a Fong (4 F 56) calcular más exactamente la energía total desprendida. Sus cálculos(que tienen en cuenta efectos de capas) muestran que la energía total desprendida en algunos modos asimétricos de fisión puede ser mayor que la correspondiente a fisión simétrica.

Frankel y Metropolis calcularon la forma del núcleo fisionante en el punto de ensilladura de la energía cobre la base de férmula de Bohr y Wheeler y dedujeron que sería simétrica aunque sin presentar un estrangulamiento en el cual se produciría la ruptura del núcleo deformado.

Los cálculos de Hill (5 H 50) demuestran que el proceso de fisión se desarrolla con suficiente lentitud como para que las ondas de superficie circunden el núcleo de un extremo a otro muchas veces antes de que se desarrolle un estrechamiento y se produzca la fisión. Fong supone también que el proceso desde el este punto de ensilladura hasta la ruptura es suficientemente lento como para que durante el mismo un nucleón pueda cruzar el núcleo muchas veces. Por lo tanto, es posible que el modo de fisión sea determinado en una etapa bastante al final del proceso, probablemente justo antes de la separación de los fragmentos.

Sugiere Fong que, debido a la lentitud del proceso, en cualquier momento se establece un "equilibrio estadístico instantáneo" 🕔 desde el punto de ensilladura hasta la separación. Deduce, de acuerdo a esto, que cualquier probabilidad relativa de un dado modo de fisión sería proporcional a la correspondiente densidad de estados cuánticos. La probabilidad relativa observada de los modos de fisión sería así proporcional a la densidad de estados cuánticos de la correspondiente configuración en el momento mismo en que se alcanza aquel equilibrio estadístico, presumiblemente el momento inmediatamente antes de la separación. Para el cálculo, Fong aproxima la configuración en este momento crítico a la de dos fragmentos deformados en contacto, cuya densidad de nivelos puede ser calculada y depende de la energía de excitación de los fragmentos en ese instante. Según se deduce del modelo estadístico del núcleo, la densidad de estados cuánticos variaría exponencialmente con la onergía de excitación. Por lo tanto sería de esperar que pequeños cambios en la energía de excitación de los fragmentos produzcan grandes cambios en la probabilidad para cl correspondiente modo de fisión. La diferencia (del orden de 5 Mev) entre la energía de excitación correspondiente a fisión

- 17 -

asimétrica y simétrica se traduciría entonces en una diferencia muy grande entre las respectivas probabilidades relativas de fisión. Siguiendo los principios enunciados, Fong calculó la densidad de estados cuánticos del sistema en el momento crítico; esta cantidad resulta ser función de los números de masa y carga y de la energía de Coulomb de los fragmentos, y depende paramétricamente del núcleo blanco, de la partícula incidente y de la energía de bombardeo. En esa forma derivó cuantitativamente la distribución de masas, carga, energías cinéticas y muchas otras distribuciones presentadas por los productos de fisión, así como también la dependencia sobre tales distribuciones del núcleo blanco, partícula incidente y energías de bombardeo. La curva de distribución de masas calculada por Fong para la fisión del U²³⁵ con neutrones térmicos concuerda apreciablemente con la obtenida experimentalmente.

El tratamiento estadístico fué nuevamente considerado por Newton (1 N 56). Este autor tuvo en cuenta el efecto de la barrera de Coulomb sobre la probabilidad de un modo particular de fisión.

Partió de una expresión del ancho de canal correspondiente a la fisión del núcleo en un par dado de fragmentos en la que figuran: la menor distancia de separación entre los centros de masas de los fragmentos para la cual ellos pueden ser considerados como partículas separadas (R), el número de onda (k) de su movimiento relativo, el ancho reducido del canal (\bigotimes) y las funcionas de onda que definen el potencial de Coulomb ($F_{C(R)}$ y $G_{C(R)}$).

Identificando el número de canales de salida con el número de estados después de la fisión, Newton obtuvo la probabilidad relativa de un proceso de fisión en el cual los fragmentos tienen energías de excitación dadas (entre E_i y $E_i + d_{E_i}$).

Esta probabilidad queda expresada en términos de & k, R, $F_{c(R)}$, $G_{c(R)}$ y las densidades de niveles de los fragmentos (W_1) para la energía de excitación E_i , la energía total liberada E_F y la energía cinética E_K de los fragmentos.

Newton supuso constantes a R y a 🖁 , y utilizó para las densidades de estados expresiones deducidas por métodos estadísticos. Los resultados que obtuvo finalmente no son muy satisfactorios, dado que predicen una probabilidad mayor para fisión simétrica y una curva de distribución de energías cinéticas medias con un máximo demasiado débil.

Desde el punto de vista de Newton, consideraciones puramente estadísticas no pueden dar una explicación de la curva de distribución de masas aunque podrían reproducir algunas de las propiedades del proceso de fisión.

Cameron (1 C 58) continuó la línea de investigación seguida por Fong y Newton, usando un nuevo conjunto de masas nucleares y de densidades de niveles. Modificó la teoría de Newton eliminando la suposición de que R es constante (independiente del canal particular de fisión). Consideró a R formado por la suma de dos términos, uno de ellos (R_0) es función de la relación (m) entre las masas de los fragmentos, y el otro (R^*) representa el aumento adicional en el radio de los fragmentos como consecuencia de la excitación interna.

Cameron determinó $R_{o(m)}$ de manera de reproducir la curva experimental de distribución de masas en la fisión del U²³⁵ con neutrones térmicos. Cuando son usados esos valores de R_o para calcular la energía cinética media de los fragmentos en función de m se encuentra que, igual que en el tratamiento de Newton, se obtiene sólo una ligera concordancia con los resultados experimentales. En cierto sentido, los cálculos de Cameron sugieren la necesidad de una combinación de teorías estadísticas, efectos de partícula independiente y efectos colectivos (responsables de la variación de R con m) para poder dar cuenta de la distribución asimétrica de masas.

En resumen, se puede decir que mientras la discusión de la fisión nuclear en términos del modelo de la gota da hasta ahora una idea solamente cualitativa, las teorías de Fong y Newton dan resultados cuantitativos, pero una explicación satisfactoria del proceso de fisión no está dada ni por la idea de que la probabilidad de fisión está determinada exclusivamente por el factor estadístico di por la posterior consideración del efecto de la barrera de Coulomb (suponiendo constantes R y).

La suposición de que R es dependiente del canal(Ro de Cameron)

- 19 -

es, además, una hipótesis que requiere justificación física.

W. Brunner y H. Paul (3 B 60; 4 B 61; 5 B 61) mostraron que la variación de R_0 puede explicarse, y justificarse cuantitativamente, si se considera que los fragmentos ejercen fuerzas nucleares entre sí aún después de la separación. De esta forma se modifica la teoría de la barrera de potencial de Newton: aparece así una parte correspondiente a fuerzas nucleares además del término de Coulomb.

Resulta entonces claro que R₀ dependa del canal porque puede ser definido como el punto de penetración de la barrera de potencial y, por lo tanto, depende de la intensidad y alcance de las fuerzas nucleares de interacción y de la posición del túnel.

Brunner y Paul determinaron semiempíricamente la magnitud de las fuerzas de interacción nuclear, de manera de poder reconstruir la curva experimental de distribución de masas.

Los trabajos realizados por estos autores durante los años 1960 y 1961 tratan en forma detallada el proceso de fisión,desarrollando una teoría de la fisión nuclear que parece explicar my satisfactoriamente una gran parte de las características observadas:

Según Brunner y Paul el tratamiento seguido por Fong sobreestima mucho la densidad de niveles nucleares en las zonas vecinas a los nucleídos mágicos. Si se utilizara un valor más correcto de la densidad de niveles, los resultados de Fong dejarían de concordar con los experimentales. Además, los valores de la energía cinética de los fragmentos calculados por Fong tampoco concuerdan con los observados.

Brunner y Paul consideraron el nivel virtual del sistema de dos partículas (formado por los dos fragmentos) a través del cual tiene lugar el proceso de fisión. Determinaron la altura de este nivel a partir de la energía cinética media observada de los fragmentos. Identificaron la probabilidad relativa de fisión con la probabilidad de penetración de la barrera resultante de la combinación de las fuerzas nucleares y de Coulomb. Determinaron la magnitud de las fuerzas de interacción nuclear partiendo de la condición de que la teoría debería reproducir la curva observada de distribución de masas de los fragmentos de fisión. Señalaron que

•. ,[:]

los órdenes de magnitud de los valores así obtenidos coinciden con los esperados y que su variación con la relación de masas de los fragmentos parecía estar relacionada con la formación de capas cerradas en aquéllos.

Calcularon la energía de excitación total de los fragmentos resultantes de la fision del U²³⁵ con neutrones térmicos utilizando las leyes de conservación de la energía, la fórmula de masas de Fong (4 P 56) para los productos primarios de fisión y los valores experimentales de energías cinéticas medias (E) de los fragmentos (9 B 50; 3 S 57). La energía de excitación así determinada tiene un mínimo pronunciado cuando uno de los dos fragmentos es vecino a nucleídos mágicos (N=82, Z=50). Este resultado está apoyado por las mediciones hechas por Apalin (3 A 61) del número de neutrones emitidos en fisión en función de la relación de masas (m) de los fragmentos. Determinaron la deformación de los fragmentos a partir de E basándose en la suposición de que ésta se distribuye entre los mismos en relación igual a la de sus masas, por medio del modelo simple de la gota pero considerando la dependencia de la tensión superficial con la estructura de capas.

Las consideraciones hochas por los autores con respecto a la teoría de fisión nuclear los condujo al concepto de un potencial de fuerzas nucleares de interacción entre los dos fragmentos, cuya profundidad (depth) V_K^0 depende de la estructura de capas. A partir de la variación cuantitativa de V_K^0 en función de la relación de masas m dedujeron nuevamente la deformación de los fragmentos "en el momento" de su formación, sobre la suposición de que la estructura de capas influye fundamentalmente a través del mecanismo de deformación en una magnitud que depende de la configuración nucleónica. Los resultados de la deformación de los fragmentos que obtuvieron en esta forma concuerdan muy bien con los calculados semiempiricamente por los mismos autores a partir de Ξ .

En resumen, del concepto básico de deformación de los fragmentos "en el momento" de la separación, Brunner y Paul, dedujeron efectos mágicos sobre el potencial de las fuerzas nucleares entre los dos fragmentos y sobre la energía cinética media de los mismos; la combinación de estos efectos los condujo a una

- 21 -

explicación cuantitativa de la asimetría observada en fisión. Como ejemplo, discutieron la fisión espontánea del Cf^{252} y la fisión simétrica inducida por deuterones en el Bi²⁰⁹.

Por último, dieron una explicación cualitativa, sobre la base de las ideas generales ya mencionadas, de la conocida reducción de la asimetría de fisión cuando incrementa la energía de excitación del núcleo fisionante.

La discusión seguida hasta este punto ha omitido un tema importante que debe considerarse al estudiar el proceso de fisión: la distribución de carga nuclear entre los fragmentos. Este asunto será tratado en los párrafos siguientes.

La repartición de carga nuclear en fisión presenta una distribución que es la más angosta entre todas las distribuciones correspondientes a las propiedades del proceso de fisión. Con los datos experimentales disponibles se han elaborado varias teorías que tratan de explicarla, pero ninguna de ellas es del todo satisfactoria.

Distintos investigadores han enunciado postulados que intentan predecir la carga más probable (Z_p) para cada número de masa, considerando diferentes mecanismos según los cuales podría tener lugar el proceso de fisión. Detos postulados son brevemente resumidos a continuación:

I) Distribución uniforme do carga

Sugarman, Turkevich y otros sugirieron que la carga se distribuye entre los fragmentos de igual manera que en el núcleo original. Es decir, la relación neutrón protón (número de neutrones / número de protones) es la misma en los fragmentos que en el núcleo fisionado. Esta hipótesis se basó en el modelo nuclear de la gota.

II) Energía potencial mínima

En este postulado, sugerido por Wigner y Way (8 W 45), se supone que, previo a la ruptura del núcleo, hay un reordenamiento nucleónico tal que minimiza la suma de las energías de unión, las energías de desintegración y la energía electrostática de repulsión mutua (calculada considerando dos esferas en contacto).
III) <u>Postulado de igual desplazamiento de carga</u>

Empíricamente derivado por Glendenin, Coryell y Edwards (3 G 49), establece que la distribución de carga nuclear entre los fragmentos conduce a una carga más probable (Z_p) desplazada de la carga estable (Z_A) en la misma cantidad para ambos, es decir:

$$(\mathbf{Z}_{A} - \mathbf{Z}_{P})_{L} = (\mathbf{Z}_{A} - \mathbf{Z}_{P})_{P}$$

donde:

L: fragmento liviano.

P: fragmento pesado.

- Z_A: valor, no entero de la carga estable más probable para nucleídos de número de masa A.
- IV) Postulado de distribución de carga no uniformer

Originariamente propuesto por Present (6 P 47), supone que la distribución de carga, calculada sobre la base de dos esferas en contacto, sea radialmente no uniforme, debido a la tendencia de las cargas eléctricas a desplazarse hacia la superficie de los cuerpos. Esto conduciría a una relación de carga/ masa mayor en el fragmento más liviano que en el más pesado.

En resumen, el problema de la distribución de carga nuclear es el de caracterizar la carga más probable (Z_p) para cualquier dado número de masa; esto es lo que tratan de hacer los postulados enunciados, los que traten a su vez otros problemas a resolver: cuál es el valor apropiado de Z_A , cuál es el núcleo considerado como fisionante, cuál es la masa de los fragmentos, etc.

Mucho se ha discutido sobre la elección del valor de Z_{Λ} . Glendenin (3 G 49) usa una función contínua de Z_{Λ} , mientras que Pappas (7 P 53) y otros investigadores sugieren una función de Z_{Λ} que presenta discontinuidades en los finales de capas. Esta controversia aún se mantiene.

La determinación semiemp \pm rica de Z_p ha sido encarada por varios investigadores. Wahl (9 W 58) sugiere el uso de una curva emp \pm rica de Z_p obtenida directamente a partir de valores de rendimientos independientes y acumulativos y de una curva universal de distribución de carga.

Muy pocos de los razonamientos enunciados pueden aplicarse

al caso de la fisión a altas energías. No hay ningún postulado que determine Z_p en forma satisfactoria, ni se conoce ninguna curva universal de distribución de carga. La emisión de neutrones comienza a competir cada vez más con el proceso de fisión, de manera que debe ser tomada en cuenta una amplia variedad de nucleídos fisionantes resultantes de la emisión de neutrones por parte del núcleo compuesto.

El problema se hace aún más difícil de resolver por el pequeño número de datos disponibles sobre rendimientos independientes a altas energías.

El estudio de la distribución de carga nuclear en fisión ha sido encarado en distintas formas por diversos autores, Coryell, Kaplan y Fink (5 C 61) estudiaron la correlación entre la carga más probable (Z_p) de los fragmentos de fisión y la energía de excitación y composición del núcleo compuesto.

Con todos los datos de rendimientos fraccionarios en cadena de que disponían (para la fisión del U^{235} con n térmicos) obtuvieron valores experimentales de Z_p; compararon luego esos Z_p con los calculados mediante los diversos postulados, teniendo en cuenta el efecto de capas en la variación de Z_A con A. De esta comparación dedujeron que los postulados de distribución uniforme y de igual desplazamiento de carga no son capaces de predecir en forma correcta los valores de Zp. También examinaron el postulado de energía potencial mínima utilizando en primer lugar los datos de masas nucleares tabulados por Levy (5 L 57) y, en segundo lugar, la ecuación de masas dada por Cameron (6 L 57). Los resultados obtenidos difieren apreciablemente según se utilicen los valores de masas de uno u otro autor. Esto refleja la discrepancia entre los valores de masas nucleares calculados con distintas ecuaciones para nucleídos que distan de la estabilidad tres o cuatro desintegraciones /3°. Estos nucleídos serían los formados con mayor probabilidad como productos primarios defisión. Finalmonte, Coryell, Kaplan y Fink consideran que los datos experimentales disponibles presentan ciertas características:

I) Z_p es una función univoca de A.

II) Z_P es conocido con una incertidumbre de \pm 0,15 unidades de carga (métodos más modernos permiten una mayor precisión en la determinación de Z_P).

- 24 -

III) Z_P muestra estructura fina.

Walh, Ferguson, Nethaway, Troutner y Wolfsberg (10 W 62), en un nuevo intento de explicar la distribución de carsa en fisión a bajas energías, determinaron experimentalmente rendimientos fraccionarios independientes los que, junto con otros datos publicados, les permitieron obtener una información directa para productos de fisión térmica del U²³⁵ con números de masa 91, 139, 140, 141, 142 y 143. Suponiendo que la variación de los rendimientos fraccionarios independientes con el número atómico, para cada A, está representada por una curva gaussiana, hallaron valores de Z_p para distintos números de masa y obtuvieron una nueva expresión empírica de Zp en función de A. Aunque esta función y las curvas gaussianas concuerdan bastante bien con los datos experimentales disponibles, el tratamiento seguido por Wahl y sus colaboradores es apenas algo más que una correlación empírica. Con la suposición de que las curvas gaussianas que definen rendimientos fraccionarios independientes en función de Z son iguales para todos los números de masa, aunque desplazados sobre el eje Z, el tratamiento seguido permite obtener los 7 pr correspondientes a números de masas en zonas en las que se dispone de un único rendimiento fraccionario independiente por cadena. También se podrían obtener así, de las curvas, valores de rendimientos fraccionarios que presenten dificultades experimentales. Todo esto, sin embargo, no constituye un verdadero conocimiento de la distribución de carga nuclear en el proceso de fisión.

4.- Introducción y finalidad del presente trabajo

Una manera de encarar el estudio del proceso de fisión es intentar hallar una relación entre el spin del núcleo fisionante, el de los fragmentos y la probabilidad de formación de éstos.

Diversos investigadores (9 P 52, 2 J 55, 2 K 55, 19 B 5**9**, 13 W 56) han determinado experimentalmente las relaciones entre los rendimientos independientes de pares isoméricos producidos en fisión, debido a que, siendo nucleídos de igual A y Z, poseen spines generalmente muy diferentes entre sí.

El trabajo experimental ha sido encarado, en líneas generales, bajo distintos aspectos: la variación de la relación de rendimientos de un determinado par isomérico en función de la energía de las partículas que inducen fisión (9 P 52); la comparación de los resultados experimentales con los calculados a partir de distintas teorías sobre el mecanismo del proceso (19 B 5**9**); la determinación de las relaciones de rendimientos, a una determinada energía, para distintos pares isómericos.

Con el presente trabajo se trata de contribuir con datos experimentales a una sistemática de relaciones de rendimientos independientes de pares isoméricos producidos en fisión. Con tal fin se han determinado las relaciones de rendimientos independientes de los pares $Xe^{133m/133}y Xe^{135m/135}$ en la fisión inducida en uranic natural con deuterones de energía moderada (13,3 ± 1,4 Mev)

- 27 -

CAPITULO II

MTTODOS EXPERIMENTALES

A.- Técnicas de irradiación

1.- Energía del haz de deuterones

Todas las irradiaciones se realizaron con deuterones en el haz interno del sincrociclotrón de la Comisión Nacional de Energía Atómica de Buenos Aires, exponiendo el blanco a un radio de 78,5 cm. La intensidad de corriente en el mismo fluctuaba entre 8 y 9 \mathcal{M} A, correspondiendo a un flujo de \sim 6,3 x 10¹² deuterones/segundo.

El haz de deuterones, cuyo espectro de energías dentro del cicletrón alcanza un valor máximo de $28,1 \pm 1,2$ Mev, debía atravesar una chapa de oro de 816,76 mg/cm² de espesor antes de alcanzar el blanco de uranio. Se calculó en 13,3 $\pm 1,4$ la energía de los deuterones incidentes sobre el mismo.

2.- Blancos

Los blancos irradiados estaban formados por una lámina de uranio metálico de 0,28 mg/cm², de composición isotópica natural, como material fisionable, cubierto en su totalidad por una lámina de oro para degradar la energía del haz incidente; ambas estaban sujetas entre dos chapas portablancos de cobre fijadas a una mordaza refrigerada con agua fría.

El uranio natural (cuyas características están dadas en la Table siguiente) fue cedido por el Instituto de Metalurgia de la C.T.E.A. en forma de láminas metálicas de 15 μ de espesor.

 Abundancia natural de los isótopos del Uranio (2 L 56)

 Número de masa
 Abundancia (átomos %)

 234
 0,0057 ± 0,0002

 235
 0,7204 ± 0,0007

 238
 99,2739 ± 0,0007

El espesor de la chapa de oro interpuesta entre el haz de deuterones y el blanco de uranio era de 816,76 mg/cm².

Una de las chapas portablanco (de cobre 892 mg/cm² de espesor)estaba provista de un orificio rectangular de 31 mm de largo y 3,5 mm de ancho para permitir el paso del haz de deuterones. La disposición del blanco de uranio, la lámina de oro y las chapas portablancos está indicada en la figura II.A.l.

Las dimensiones de la sección transversal del haz de deuterones son: 4 mm de ancho y 25 mm de largo.

3.- Irradiaciones

Los tiempos de irradiación fueron en todos los casos de 16 minutos, y el peso de uranio irradiado de 30 mg aproximadamente.

La energía del haz de deuterones incidente sobre los blancos de uranio se estimó en 13,3 \pm 1,4 Mev. La incertidumbre de este valor se determinó teniendo en cuenta la dispersión del haz dentro del ciclotrón y el "straggling" sufrido al atravesar la lámina de oro.

El valor del "straggling" fue calculado aplicando la fórmula clásica de Bohn (5 S 53). La pérdida de energía sufrida por los deuterones en el oro fue obtenida por interpolación gráfica de las tablas de Aron, Hoffman y Williams (6 A 49) y de Rich y Madey (1 R 54). En la misma forma se pudo comprobar que el espesor de los blancos de uranio, (0,28 mg/cm²), no introducía ninguna variación apreciable en la energía de las partículas bombardeantes.



Fig.II A.1 - Disposición del blanco de uranio, la lámina de oro y las chapas porta-blanco.-

B.- <u>Rendimientos</u> <u>de</u> fisión 1.- <u>Definiciones</u>

En el proceso de fisión cada fragmento producido (es decir, cada nucleído primario) da lugar a una cadena de desintegración que termina en un nucleído estable. Por lo tanto, todos los miembros de la cadena pueden formarse de dos maneras: independientemente o a través de la desintegración de sus precursores. Esto permite definir dos tipos de rendimientos de fisión:

- a) <u>Rendimientos de fisión total o acumulativo</u> (y) <u>de un producto</u> <u>de fisión</u>:porcentaje de actos de fisión que dan lugar al nucleído considerado por formación independiente y a través de la desintegración de sus precursores.
- b) <u>Rendimiento de fisión independiente</u>: (y_i) porcentaje de actos de fisión que dan lugar al nucleído considerado por formación directa en su estado fundamental y estados excitados de muy corta vida. Los isómeros son tratados como nucleídos individuales.

De acuerdo con estas definiciones, el rendimiento acumulativo de un miembro de la cadena resulta ser igual a la suma de su propio rendimiento independiente más los rendimientos independientes de sus precursores.

2.- Cálculo de rendimientos independientes

El cálculo del rendimiento independiente de un producto de fisión requiere el conocimiento de su velocidad absoluta de desintegración, constante de desintegración, relaciones genéticas, condiciones de irradiación, etc.

En los párrafos siguientes se dan las ecuaciones utilizadas durante el trabajo. El desarrollo de las mismas puede seguirse en el Apéndice.

En todas ellas se trata de obtener una expresión que dé la velocidad absoluta de desintegración del nucleído en cuestión (la que se obtiene experimentalmente) en función de su rendimiento independiente, los rendimientos de sus precursores, las constantes de desintegración y los tiempos de irradiación y de espera implicados. La combinación de tales ecuaciones conduce a sistemas cuya resolución permite obtener los rendimientos buscados. La base del desarrollo matemático seguido es el análisis hecho por Bateman (2 R 30) de las transformaciones radioactivas sucesival y el trabajo de M. E. Bosch y S. M. Abecasis (11 B 59) sobre los rendimientos acumulativos en la fisión del uranio.

En los casos tratados, los períodos de semidesintegración de los nucleídos de interés eran mucho mayores que los de sus antecesores más lejanos, lo que permite el cálculo de su velocidad de desintegración considerando la cadena como iniciada por su precursor inmediato (llamado A en las expresiones matemáticas).

a) <u>Actividad de un nucleído que ocupa el primer lugar en la ca-</u><u>dena</u>

$$(D_A)_{x} = R y_A (1 - e^{-\lambda_A t}) e^{-\lambda_A x}$$
(II.B. 1)

- $(D_A)_x$ = velocidad de desintegración del nucleído A, producido en un tiempo t de irradiación, después de transcurrido un intervalo x desde el fin de irradiación.
- R = número de átomos de uranio transformados en la unidad de tiempo.
- y_A = rendimiento del nucleído A en fisión. Por ser el primer miembro de la cadena es producido únicamente en forma independiente, por lo tanto es $y_A^1 = y_A$
- $\lambda_{\rm A}$ = constante de desintegración del nucleído A

٨

b) <u>Actividad de un nucleído que ocupa el segundo lugar en la</u> <u>cadena</u>

D

$$(D_{B})_{x} = R y_{A} \left(\frac{\lambda_{B}}{\lambda_{B} - \lambda_{A}} (1 - e^{-\lambda_{A}t})_{\theta} - \lambda_{A}x + \frac{\lambda_{A}}{\lambda_{A} - \lambda_{B}} (1 - e^{-\lambda_{B}t})_{\theta} - \lambda_{B}x \right) + Ry_{B}^{i} (1 - e^{-\lambda_{B}t})_{\theta} - \lambda_{B}x$$
 (II.B.2)

- $(D_B)_x = velocidad de desintegración del nucleído B, producido en$ un tiempo t de irradiación, después de transcur**r**ido un intorvalo x desde el fin de irradiación.
- $\lambda_{\rm B}$ = constante de desintegración del nucleído B.
- y_{B}^{i} = rendimiento independiente del nucleído B. en fisión.
- Combinando (II.B.1) y (II.B.2) es posible obtener la relación y_A / y_B^i mediante la expresión:

$$\frac{y_{A}}{y_{B}^{1}} = \frac{(1-e^{-\lambda_{B}t})e^{-\lambda_{B}x}}{(1-e^{-\lambda_{A}t})e^{-\lambda_{A}x}} \left\{ \frac{1}{\frac{(D_{B})_{x}}{(D_{A})_{x}} + \frac{1}{\lambda_{A} - \lambda_{B}}} \left(\lambda_{B} - \lambda_{A} \frac{(1-e^{-\lambda_{B}t})e^{-\lambda_{B}x}}{(1-e^{-\lambda_{A}t})e^{-\lambda_{A}x}} \right) \right\}$$

c) <u>Actividad de un nucleído con dos precursores independientes</u> entre sí.



Con la expresión (II.B.4) y expresiones análogas **a (II.B.1)** para la velocidad de desintegración de B y de otro nucleído N, primer miembro de otra cadena, se plantea el siguiente sistema de ecuaciones homogéneas:

$$y_{B} \left((1-e^{-\lambda_{B}t})e^{-\lambda_{B}x} \right) + y_{N} \left(-\frac{(D_{B})_{X}}{(D_{N})_{X}}(1-e^{-\lambda_{N}t})e^{-\lambda_{N}x} \right) = 0$$

$$y_{B} \left(\frac{\lambda_{C}}{\lambda_{C}-\lambda_{B}} (1-e^{-\lambda_{B}t})e^{-\lambda_{B}x} + \frac{\lambda_{B}}{\lambda_{B}-\lambda_{C}} (1-e^{-\lambda_{C}t})e^{-\lambda_{C}x} \right) + y_{\Lambda} \left(\frac{\lambda_{C}}{\lambda_{C}-\lambda_{\Lambda}} (1-e^{-\lambda_{A}t})e^{-\lambda_{\Lambda}x} + \frac{\lambda_{A}}{\lambda_{\Lambda-\lambda_{C}}} (1-e^{-\lambda_{C}t})e^{-\lambda_{C}x} \right) + y_{R} \left(\frac{(D_{C})_{X}}{(D_{N})_{X}} (1-e^{-\lambda_{N}t})e^{-\lambda_{N}x} \right) = 0$$

En estas expresiones, los términos encerrados entre corchetes son calculados a partir de datos obtenidos experimentalmente y desempeñan el papel de coeficientes en el sistema en el cual los rendimientos en fisión son las incógnitas.

Con otro par de ecuaciones análogas correspondientes a otros valores de x y de t (otra irradiación) se plantea un sistema de cuatro ecuaciones homogéneas con cuatro incógnitas, cuya solución por los métodos matemáticos comunes permite obtener las relaciones entre los rendimientos b**a**scados. d) <u>Actividad de un nucleído con dos precursores relacionados ge-</u> néticamente



- r_C^A : fracción de las desintegraciones de A que conducen <u>directa-</u><u>mente</u> a la formación de C
- r_{B}^{A} : fracción de las desintegraciones de A que conducen a la formación de B

$$(D_{C})_{x} = Ry_{A} \left\{ \left(\frac{\lambda_{C} r_{C}^{A}}{\lambda_{C} - \lambda_{A}} + \frac{\lambda_{B} \lambda_{C} r_{B}^{A}}{(\lambda_{B} - \lambda_{A})(\lambda_{C} - \lambda_{A})} \right) (1 - e^{-\lambda_{A}t}) e^{-\lambda_{A}t} + \frac{\lambda_{A} \lambda_{C} r_{B}^{A}}{(\lambda_{A} - \lambda_{B})(\lambda_{C} - \lambda_{B})} (1 - e^{-\lambda_{B}t}) e^{-\lambda_{B}t} + \frac{\lambda_{A} r_{C}^{A}}{\lambda_{A} - \lambda_{C}} + \frac{\lambda_{A} \lambda_{B} r_{B}^{A}}{(\lambda_{B} - \lambda_{C})(\lambda_{A} - \lambda_{C})} \right) (1 - e^{-\lambda_{C}t}) e^{-\lambda_{C}t} + Ry_{B}^{i} \left\{ \frac{\lambda_{C}}{\lambda_{C} - \lambda_{B}} (1 - e^{-\lambda_{B}t}) e^{-\lambda_{B}t} + \frac{\lambda_{B}}{\lambda_{B} - \lambda_{C}} (1 - e^{-\lambda_{C}t}) e^{-\lambda_{C}t} + \frac{\lambda_{B}}{\lambda_{B} - \lambda_{C}} (1 - e^{-\lambda_{C}t}) e^{-\lambda_{C}t} + Ry_{C}^{i} (1 - e^{-\lambda_{C}t}) e^{-\lambda_{C}t} + \frac{\lambda_{B}}{\lambda_{B} - \lambda_{C}} + \frac{\lambda_{B}}{\lambda_{B} - \lambda_{C}} (1 - e^{-\lambda_{C}t}) e^{-\lambda_{C}t} + \frac{\lambda_{B}}{\lambda_{B} - \lambda_{C}} + \frac{\lambda_{B}}{\lambda_{C} - \lambda_{C}} + \frac{\lambda_{B}}{\lambda_{C}$$

Utilizando esta expresión junto con una análoga a(II.B.2)para la actividad de B y la correspondiente para un nucleído N,primer miembro de otra cadena, se forma el sistema de ecuaciones homogéneas:

$$y_{A}\left(\frac{\lambda_{B} \mathbf{r}_{B}^{A}}{\lambda_{B} - \lambda_{A}}(1 - e^{-\lambda_{A}t})e^{-\lambda_{A}x} + \frac{\lambda_{A} \mathbf{r}_{B}^{A}}{\lambda_{A} - \lambda_{B}}(1 - e^{-\lambda_{B}t})e^{-\lambda_{B}x}\right) +$$

$$+ y_{B}^{1}\left((1 - e^{-\lambda_{B}t})e^{-\lambda_{B}x}\right) + y_{N}\left(-\frac{(D_{B})_{X}}{(D_{N})_{X}}(1 - e^{-\lambda_{N}t})e^{-\lambda_{R}x}\right) +$$

$$+ y_{B}^{1}\left(\frac{\lambda_{C} \mathbf{r}_{C}^{A}}{\lambda_{C} - \lambda_{A}} + \frac{\lambda_{B} \lambda_{C} \mathbf{r}_{B}^{A}}{(\lambda_{B} - \lambda_{A})(\lambda_{C} - \lambda_{A})}\right) (1 - e^{-\lambda_{A}t})e^{-\lambda_{A}x} +$$

$$+ \frac{\lambda_{A} \lambda_{C} \mathbf{r}_{C}^{A}}{(\lambda_{A} - \lambda_{B})(\lambda_{C} - \lambda_{B})}(1 - e^{-\lambda_{B}t})e^{-\lambda_{B}x} + \left(\frac{\lambda_{A} \mathbf{r}_{C}^{A}}{\lambda_{A} - \lambda_{C}} + \frac{\lambda_{A} \lambda_{B} \mathbf{r}_{C}^{A}}{(\lambda_{A} - \lambda_{C})(\mathbf{A}_{B} - \lambda_{C})}\right)(1 - e^{-\lambda_{C}t})e^{-\lambda_{C}x}\right) +$$

$$+ y_{B}^{1}\left(\frac{\lambda_{C}}{\lambda_{C} - \lambda_{B}}(1 - e^{-\lambda_{B}t})e^{-\lambda_{B}x} + \frac{\lambda_{B}}{\lambda_{B} - \lambda_{W}}(1 - e^{-\lambda_{C}t})e^{-\lambda_{C}x}\right) +$$

$$+ y_{C}^{1}\left((1 - e^{-\lambda_{C}t})e^{-\lambda_{C}x}\right) + y_{N}\left(-\frac{(D_{C})_{X}}{(D_{N})_{X}}(1 - e^{-\lambda_{N}t})e^{-\lambda_{N}x}\right) = 0$$

$$(11 - B - 7)$$

El sistema **fi**nal de ecuaciones se plantea como se indicó para el caso (c).

C.- Separación de nucleídos producidos en fisión

1.-Técnicas comunes

Producida la fisión, los fragmentos primarios resultantes del proceso forman una mezcla compleja de productos cada uno de los cuales desintegra, según sus características, dando origen a una cadena de desintegración. En la fisión del U²³⁵ con neutrones térmicos, por ejemplo, las cadenas de desintegración cubren un intervalo de números de masa comprendido entre A = 72 y A = 160. Teniendo en cuenta que la longitud máxima de tales cadenas es del orden de 6, se calcula en aproximadamente 500 el número de especies diferentes presentes en la mezcla de productos de fisión, de los cuales 90 son estables.

Las cantidades de estos nucleídos varían según el rendimiento con que han sido formados, pero siempre son cantidades ínfimas imponderables, en comparación con las cantidades con las que se trabaja en química analítica común. Un microcurie de un nucleído de peso atómico 100 y período de semidesintegración de un día corresponde a 7,6 x 10^{-13} gramos de sustancia, y su separación de cantidades similares de un número elevado de otros elementos (mezola de productos de fisión) representa un problema químico complejo.

Los métodos químicos comunmente utilizados para separar procuetos de fisión son, bajo algunos aspectos, parecidos a los procedimientos generales de química analítica. Algunas diferencias de importancia entre los métodos radioquímicos y los químicos comunes provienen del factor tiempo a considerar, especialmente cuando se trabaja con nucleídos de períodos de semidesintegración cortos.

En la práctica analítica general es común que se requieran altos rendimientos de separación y pureza química. El rendimiento de separación en el trabajo radioquímico no es tan importante con tal de que pueda ser evaluado si es necesario.

El requerimiento de <u>pureza química</u> es reemplazado por el de <u>pureza radioquímica</u>, es decir ausencia de impurezas radioquímicas no isotópicas. Debido a que es posible detectar cantidades muy pequeñas de elementos radioactivos, un material químicamente puro desde el punto de vista macroscópico puede ser radioquímica-

- 33 -

mente impuro. Por lo tanto, la efectividad de un método de separación o purificación no es necesariamente la misma para fines radioquímicos que para fines químicos generales.

A menudo se expresa la efectividad de un método de separación en términos del cambio de concentración de una sustancia particular, cambio que suele indicarse en relación al material no separado. El grado de separación de dos sustancias A y B alcanzado por el método se expresa mediante el <u>factor de separación</u> definido por:

F.S.
$$\frac{C_{A}^{\prime}}{C_{A}^{\prime}} \frac{C_{B}^{\prime}}{B}$$

 $C_A^{,} y C_B^{,}$ son las concentraciones de las sustancias A y B en la muestra antes de la separación, $C_A^{,} y C_B^{,}$ son las concentraciones en el material separado. Puede ser entonces A el elemento contaminante y B el elemento que se desea purificar. El grado de purificación se expresa generalmente, en términos radioquímicos, mediante el <u>factor de descontaminación</u>:

$$F.D.=\frac{(cpmA) \cdot / (cpmB)}{(cpmA) \cdot \cdot / (cpmB)},$$

cpmA=cuentas por minuto del elemento A; cpmB=cuentas por minuto del elemento B. El numerador de esta expresión se refiere al material antes de la separación y el denominador, al material después de la separación. Un factor de separación o de descontaminación puede referirse a un proceso con un único paso o a un proceso con varias etapas o a una secuencia de procesos diferentes. Para obtener una buena pureza radioquímica es necesario llegar a un factor de descontaminación alto, el que depende a su vez de las características de desintegración y del rendimiento de formación del nucleído a separar. Factores de descontaminación del orden de 10^2 a 10^5 son generalmente suficientes en las separaciones de los productos de fisión. El control de que la actividad deseada es realmente debida al nucleído buscado se lleva a cabo mediante repetidas separaciones y purificaciones después de las cuales deben mantenerse inalteradas las características de absorción, desintegración (períodos de semidesintegración, etc) y actividad específica (actividad por unidad de masa del elemento portador).

En la práctica radioquímica las cantidades de los elementos

- 34 -

a aislar son a menudo demasiado pequeñas como para permitir su separación sin el empleo de técnicas con portadores. Tales técnicas consisten en el agregado de isótopos estables del elemento a separar en cantidades apreciables (generalmente del orden de miligramos) en comparación con la cantidad total de elementos presentes.

En la separación de productos de fisión se agrega entonces a la mezcla de productos el mismo elemento (portador isotópico) o un elemento de propiedades químicas similares a las del nucleído radioactivo que se desea aislar (portador no isotópico), aplicándose luego el procedimiento químico elegido para la separación. Los átomos del nucleído de interés acompañan a los átomos del portador durante todo el proceso químico.

Para la determinación cuantitativa del nucleído aislado se determina el rendimiento de la separación. Cuando se ha alcanzado un intercambio total entre el elemento radioactivo y el portador utilizado (es decir, cuanto los átomos radioactivos participan de todas las reacciones químicas en igual proporción que los átomos del elemento portador estable), el rendimiento radioquímico está representado por la fracción del portador agregado que ha sido separada en la fuente a medir. Por lo tanto, debe concoerse exactamente la cantidad de portador agregado inicialmente, y la forma final del elemento debe ser de composición estequiométrica estable.

Los métodos usualmente aplicados en la separación de productos de fisión incluyen reacciones de precipitación, volatilización de compuestos gaseosos, extracción con solventes, reacciones de intercambio iónico, etc.

En el presente trabajo se llevé a cabo la separación de los isótopos del Xenón formados en fisión, de manera que se tratarán solamente, y en forma breve, los métodos generales de separación de gases nobles de la mezcla de productos de fisión.

De los seis gases raros que componen el grupo O de la tabla periódica, helio, neón, argón, kriptón, xenón y radón, solamente se producen en la fisión de elementos pesados los isótopos de dos de ellos: xenón y kriptón.

- 35 -

Es conocida la inercia química de los gases raros. Existen hidratos de Ar, Kr, Xe y Rn y especies tales como HeH⁺ y He⁺₂. Se han preparado también clatratos de Ar, Kr y Xe cristalizando quinel en atmósfera de gases raros a alta presión (1P50, 2P54), utilizándose clatratos de Kr producido en fisión como fuentes de Kr⁸⁵ (2059).

Otros métodos utilizados en la separación de Xe y Kr de corrientes gaseosas se basan en su solubilidad en distintos solventes; uno de octos métodos consiste en la absorción de Xe y Kr en un flujo a contracorriente de un líquido orgánico (kerosene) (4859).

Las operaciones químicas implicadas en la separación y purificación de gases raros son realizadas sobre elementos o compuestos que no son los mismos gases raros.

La separación de los gases raros entre sí debe llevarse a cabo sobre la base de diferencias en alguna propiedad física (presión de vapor, capacidad de adsorción, etc.) la que generalmente varía mucho y en forma regular cuando se avanza a lo largo del grupo, desde el helio hasta el radón. Sucede muy a menudo que tal separación física también elimina algunas o todas las impurezas que acompañan al gas aislado. Por este motivo generalmente no es necesario purificar los gases raros como grupo químico antes de iniciar la separación radioquímica de cada uno de ellos. Según cuáles sean las especies contaminantes y sus cantidades puede sucedor que no sea necesario realizar ninguna operación química. Las contaminaciones de los gases raros están limitadas a sustanciaz que pueden existir en concentraciones apreciables en fase gaseosa a la temperatura del experimento. Estis incluye:

- I) Gases (sustancias por encima de su temperatura crítica o con presión de vapor mayor que una atmósfera).
- II) Vapores no saturados (sustancias cuya presión de vapor es menor que una atmósfera pero que están presentes en cantidades apreciables aunque suficientemente pequeñas como para que su presión parcial sea menor que su presión de vapor).
- III) Vapores saturados en equilibrio con sólidos o líquidos que tienen presiones de vapor apreciables.

Los gases raros a menudo deben ser purificados de los constituyentes del aire, de especies volátiles desprendidas en la

- 36 -

disolución de los blancos irradiados, tales como hidrógeno, haluros de hidrógeno y óxidos de nitrógeno, y ocasionalmente de pequeñas cantidades de hidrocarburos y trazas de halógenos.

Las técnicas que ocupan el primer lugar en las separaciones de gases raros son las de destilación y adsorción.

La destilación fraccionada del aire ha sido usada ampliamente para la obtención comercial de gases nobles puros.

Métodos que combinan adsorción y destilación fraccionada se han empleado para la determinación del contenido de kriptón y xenón en la atmósfera (1656).

La mayoría de las separaciones de gases raros publicadas emplean técnicas de adsorción. El carbón activado, entre los numerosos materiales adsorbentes conocidos, es el que ha sido usado más ampliamente debido a que tiene una mayor área superficial (mayor capacidad de adsorción) por unidad de masa, y los gases nobles son adsorbidos en proporciones ampliamente diferentes.

En general las separaciones de este tipo comienzan con la adsorción total de la mezcla de gases en una trampa adsorbente, separándose luego cada uno de los componentes por desorción fraccionada variando la temperatura de la trampa y succionando con una bomba difusora adecuada. Peters y Weil (**3**P30) separaron argón, kriptón y xenón adsorbiendo la mezcla sobre carbón a -190°C y elevando luego la temperatura para separar cada uno de los gases con una bomba difusora de mercurio. Las temperaturas a las que los gases eran separados "puros", dependientes de la velocidad de separación, eran aproximadamente de -93°C para la desorción res de separación son del orden de lOO para cada paso, y pueden aumentarse realizando separaciones en varias etapas utilizando una serie de trampas de adsorción (2646).

Las separaciones de gases raros sobre carbón implican una corriente gaseosa desplazándose a lo largo de una columna sólida y pueden ser consideradas como cromatografías gas-sólido. Si las condiciones bajo las cuales se hace pasar la mezcla de gases por la columna son tales que solamente uno de ellos queda adsorbido, la separación de éste se lleva a cabo en un sólo paso. La columna misma, conteniendo el carbón con el gas adsorbido, cirve como fuente de medición de la actividad eventual del elemento separado.

Esta fue, a grandes rasgos, la técnica utilizada en el presente trabajo para separar los isótopos de Xenón producidos en fisión. La mezcla de gases se hizo pasar por granos de carbón activado (l,5 mm. de diámetro) mantenidos a una temperatura entre -12° C y -15° C (hielo y sal) utilizándose hidrógeno como gas portador no isotópico de arrastre.

En trabajos anteriores (3N56) se comprobó que en estas condiciones se separa xenón libre de kriptón; este último no es rotenido y pasa a la atmósfera junto con una cierta proporción de Xenón, que no es adsorbido en su totalidad.

El rendimiento de la separación no fue determinado por no ser necesario para los cálculos finales, por la forma en que se realizó el tratamiento de los datos.

2.- Método de separación

La figura **I**.C.l muestra el dispositivo utilizado para la separación del Xe producido en fisión.

Se comienza manteniendo los tubos C y D en agua caliente y luego en baño de hielo y sal conectados a la línea de vacío. La lámina de uranio metálico irradiada se coloca en B, teniendo cervadas las llaves a y c. A través de A se introduce NO_3^H (c) caliente para atacar el blanco. Abriendo simultáneamente a y c y luego dy ese permite el paso de una corriente lenta de H₂ para arrastrar los gases producidos en B. El pasaje de H₂ se mantiene durante 15 minutos aproximadamente, adoptándose como momento de corte de cadena el tiempo medio de este intervalo. Cerrando c se conecta el resto del sistema a la línea de vacío durante unos minutos a fin de eliminar los gases que pudieran quedar en los tubos, no adsorbidos en el carbón. Manteniendo los tubos C y D en hielo y sal se pasó su contenido a una cápsula de resina acrílica (lucite) que fue cerrada inmediatamente en forma hermética. (Sección siguiente).

3.- Montaje de las fuentes radioactivas

Para la determinación de la velocidad de contaje de los nucleídos separados de fisión, el carbón activado reteniendo el Xe

- 38 -

se encerró en cápsulas de lucite herméticas (fig. II.C.2).

Los granos llenaban completamente el espacio libre de tal manera que el ajuste de la tapa impedía cualquier desplazamiento de los mismos, asegurando así una geometría constante. El cierre hermético se logró soldando la tapa con cloroformo. Se lo verificó reteniendo en iguales condiciones Rn y siguiendo su período.

El estuche se insertó y soldó en el orificio central de una pieza rectangular de lucite, cl que ajustaba perfectamente dentro del marco de la chapa soporte, permitiendo una disposición fija de contaje. (fig. II.C.3).

4.- Control del método de separación

El análisis de los espectros de alturas de pulsos de las fuentes de Xe separadas permitió determinar la ausencia de contaminación de otras actividades, mediante la identificación de los picos presentes.

En la tabla siguiente se indican los nucleídos y las energías de los rayos 🎽 por las cuales fueron caracterizados.

El Cs¹³⁸ presente en las muestras es el producido por desintegración del Xe¹³⁸ separado de fisión.

Nucleído	Enorgías correspondientes a los fotopicos identificados (Kev)
Xe ¹³³ m	233 - 29,1
Xe ¹³³	160,5 - 80,97 - 30,27
Xe ¹³⁵ m	527,4
Xe ¹³⁵	250
Xe ¹³⁸	420 - 510 - 1780
_{Cs} 138	193 - 462.6 - 550 - 870 - 1010 - 1426 - 2210











(b) Chapa soporte

D.- Dispositivos de medición

1.-Descripción

Las actividades de los nucleídos fueron seguidas utilizando como detector un cristal de INa (activado con T1) acoplado a un tuvo fotomultiplicador y el correspondiente equipo electrónico asociado, formado por: preamplificador lineal, fuente de baja tensión estabilizada (para el amplificador) fuente de alta tensión estabilizada (para el fotomultiplicador), analizador de altura de pulsos (discriminador) y escalímetro.

A continuación se resumen las características de cada uno de los componentes del sistema de contaje.

- a) <u>Cristal detector</u>: Se utilizó un cristal cilíndrico de INa (activado con Tl) marca Harshaw, tipo 12 A 12, de 3" de diámetro y 3" de espesor. Este cristal está cubierto por una fina capa de alta eficiencia de reflexión luminosa, constituída por óxido de aluminio pulverizado, y encerrado herméticamente en una cápsula de aluminio metálico provista de una ventana transmisora de vidrio. La capa reflectora de Al_2O_3 tiene un espesor de 67 mg/cm² en la cara circular y de 100 mg/cm² en la superficie lateral. La cobertura externa es de aluminio tipo 1100, con un espesor de 219 mg/cm². El espesor de la ventana de vidrio es de 1/8" (8 H 62).
- b) <u>Tubo fotomultiplicador</u>: Marca DuMont, modelo 6364, está adosa do directamente a la ventara devidrio mediante fluído de siliconas como acoplamiento óptico.
- c) <u>Equipo electrónico</u>: El equipo electrónico asociado es de tipo convencional construído en los laboratorios de Electrónica de la Comisión Nacional de Energía Atómica (10 F 57).

En la medición de períodos cortos se utilizó un analizador de alturas de pulso de 512 canales, marca Nuclear Data, modelo N D 120, en lugar del unicanal.

2.-Disposición fuente-detector

Dado que la respuesta del detector está intimamente ligada a la magnitud del ángulo sólido subtendido desde la fuente hacia el cristal, es necesario fijar las condiciones de geometría de medición.

La figura II.D.1 indica la disposición seguida en la medi-





a) Detalle de la gradilla de lucite



Fig. I D.1 - Disposición seguida en la medición de las Actividades de Xe ción de las actividades de las fuentes montadas en la forma descripta en la sección C-3 del presente capítulo.

En estas condiciones la base, del estuche conteniendo la muestra a medir quedaba a l cm de distancia de la superficie del cristal.

3.-Principios del funcionamiento

Es necesario tener un claro conocimiento de la naturaleza de la relación entre la energía de un electrón producida en cl detector y la energía del fotón incidente, para realizar espectrometría gamma.

Los fotones gamma pierden su energía por interacción con la materia mediante tres procesos principales: efecto fotoeléctrico, dispersión Compton y producción de pares. Por lo menos un electrón está implicado con cada interacción. Cuando atraviesan la materia estos electrones pierden su energía por ionización o por excitación de los átomos entre los cuales pasan.

La propiedad del cristal centelleador de convertir en emisión luminosa parte de esta energía es la base del contador de centelleo. La luz emitida por el cristal es recibida por el fotocátodo sensible de un tube fotomultiplicador produciendo un pulso eléctrico cuyo tamaño es proporcional a la energía **ebsor**bida por el centelleador. Mediante el uso de amplificadores lineales y equipos electrónicos apropiados es posible obtener la velocidad de contaje en función de la energía gamma.

Debido a que todo sistema electrónico produce señales espúreas se hace necesario diferenciarlas de los pulsos producidos por la radiación incidente para la obtención de velocidades de contaje.

Un <u>selector integral de alturas de pulsos</u>, o discriminador, es un circuito electrónico que bloquea o descarta todas las señales por debajo de una cierta amplitud. Con un dispositivo de este tipo es posible obtener velocidades integrales de contaje, lo que permite determinar solamente actividades relativas de fuentes similares o bien mediciones cuantitativas de un radionucleído puro.

Con el uso de un discriminador inferior y otro superior cl instrumento se hace mucho más versátil y puede utilizarse

- 41 -

para mediciones cualitativas y cuantitativas.

El dispositivo compuesto por los dos discriminadores y un circuito de anticoincidencias se denomina <u>selector diferencial</u> <u>de alturas de pulsos o analizador</u>. La función del analizador es la de permitir el paso al sistema registrador solamente de los pulsos cuya altura está dentro de un intervalo elegido (canal). La separación en voltajes entre los dos discriminadores se conoce como "<u>ancho de ventana o ancho de canal</u>".

Instrumentos de este tipo permiten obtener espectros de alturas de pulsos, esto es, el número de señales que se producen dentro de cada incremento de altura. Cada par de discriminadores y su circuito de anticoincidencias asociado actúa como un analizador unicanal.

Los analizadores multicanales son instrumentos más complejos capaces de colectar simultáneamente el número de pulsos que ocurren dentro de cada uno de los canales que contienen. Cualquier pulso puede caer solamente dentro de un canal, y el total encontrado en un intervalo de tiempo indica el espectro de pulsos que se produjo.

El intervalo de tiempo requerido para la obtención de un espectro completo utilizando un analizador multicanal puede hacerse tan pequeño como la precisión de las mediciones lo permitan. La realización de un espectro análogo empleando un analizador unicanal requeriría un espacio de tiempo mucho mayor. De estas propiedades surge de inmediato la enorme ventaja del empleo de un analizador multicanal en el estudio de radionucleídos de período corto.

Los datos del sistema detector y su equipo asociado son registrados generalmente con un escalímetro o con otro tipo de instrumento de cómputo de velocidades de contaje.

4.- Respuesta del detector a la radiación

La respuesta del sistema detector está dada en la forma de un espectro de alturas de pulsos. Debido a los diferentes procesos de disipación de energía de la radiación gamma en el detector, los espectros obtenidos tienen formas relativamente complejas, aún en el caso de nucleídos emisores de un único rayo χ . Es necesario considerar aquellos modos de interacción a fin de entender el espectro final:

- a) Efecto fotoeléctrico: El resultado de este tipo de interacción es la producción de fotoelectrones con energía igual a la del fotón incidente. La mayoría de estos electrones es totalmente detenida dentro del cristal de manera que el resultado del proceso es la transferencia completa de la energía gamma (E χ) al cristal, lo que da lugar a un <u>fotopico</u> en el espectro, cuya ubicación corresponde a E χ .
- b) <u>Afecto Compton</u>: En este caso solamente una parte de E χ es transferida al electrón. Los electrones Compton son "frenados" en el cristal y el fotón dispersado puede ser ebsorbido por interacción fotoeléctrica o puede escapar del cristal.En el primer caso la energía total disipada es nuevamente E χ y el pulso cae dentro del fotopico. Si, en cambio, el fotón dispersado escapa sin interaccionar, solamente es transferida al detector **la** energía del electrón Compton (E_c), la que varía desde cero hasta un valor máximo dado por:

$$E_{c} = \frac{E_{\chi}}{1 + \frac{m c^{2}}{E_{\chi}}}$$
 (II.D.1) mc² = 0,511 Mev (energía del electrón en re-

c) <u>Producción de pares</u>: Cuando la energía de la radiación gamma es mayor que 1,02 Mev hay una cierta probabilidad para la creación de un par positrón-negatrón. El negatrón es detenido en el cristal; el positrón pierde energía hasta ser finalmente aniquilado por conversión en dos fotones de 0,511 Mev cada uno. Esta radiación de aniquilación, que está presente en el espectro de cualquier emisor de positrones, puede escapar del cristal, o bien pueden ser capturados ambos fotones. En consecuencia, la producción de pares conduce a la aparición de picos en el espectro, correspondientes a 1) la energía del negatrón, 2) esa energía más 0,511 Mev resultantes de la captura de uno de los fotones de aniquilación, y 3) la energía del negatrón más 1,02 Mev (es decir , la Extotal) que resultan de la captura de los dos fotones de la radiación de aniquilación (3 C 61).

El espectro de alturas de pulsos incluye también el efecto de la radiación dispersada dentro del cristal por el material que lo rodea; ese efecto se traduce en un pico ancho correspondiente a dispersión Compton a 180º delrayo λ , conocido como <u>pico de retrodispersión</u>, el que aparece a una energía dada por

 $E_{retrod.} \qquad \frac{E_{\chi}}{1 + \frac{2 E_{\chi}}{mc^2}} \qquad (II.D. 2)$

La magnitud de este pico depende de la distancia a la que está el material que rodea al tubo, su naturaleza y cantidad. d)<u>Resolución del detector</u>: Para un detector ideal el espectro gamma tendría que tener la forma mostrada en la figura II.D.2, mientras que el espectro medido corresponde al de la fig. II.D.3.

El ensanchamiento del fotopico es debido a muchas razones, tales como inhomogeneidades en el cristal y variaciones en la reflexión luminosa. Sin embargo, la causa principal es debida al fototubo, siendo los factores que contribuyen: falta de uniformidad en la superficie del fotocátodo, fluctuaciones en el voltaje impuesto a cada dinodo, y variaciones estadísticas en el pequeño número de electrones emitidos por el fotocátodo. El ensanchamiento es medido por el valor del ancho del fotopico a la mitad de su intensidad máxima dividido por el valor de altura de pulso (o de energía) en el que aparece aquel máximo. Este valor se denomina <u>resolución</u> (R) del detector, y usualmente se expresa en porcentajes. La figura II.D. 4 muestra la forma del cálculo.

La resolución es el factor que determina la posibilidad del sistema de diferenciar entre fotopicos de radiaciones de energías similares. Su valor decrece cuando la energía aumenta (3 C 61).

5.- Calibración en energías

El espectro de alturas de pulsos, correspondiente a una fuente radioactiva, obtenido mediante un espectrómetro de centelleo, permite la identificación de las distintas energías de radiación gamma emitidas por los nucleídos presentes en la muestra.

Para hacer posible tal identificación es necesario conocer la relación existente entre la altura de los pulsos y la energía de los fotones gamma que los producen, es decir, calibrar en energías el sistema de contaje.

- 44 -



Esta calibración se realiza construyendo los espectros de alturas de pulsos de fuentes standard de nucleídos emisores $\overset{\,\,}{}$ de energías perfectamente conocidas. Identificando en los espectros los fotopicos correspondientes y representando sus energías en función de las respectivas alturas de pulsos se obtiene la <u>recta de calibración en energías</u> del equipo de medición, para las condiciones en las que fue realizada la experiencia.

La figura II.D.5 muestra la recta de calibración y los espectros correspondientes a Hg^{203} , Cs¹³⁷ y Co⁶⁰ utilizados para su construcción.

6.- Calibración en eficiencias

Es posible utilizar los datos obtenidos con un espectrómetro de centelleo para conocer la velocidad absoluta de emisión de la fuente, conociendo la probabilidad de detección de un fotón por un detector para una dada disposición fuente-detector, denominada <u>eficiencia de detección</u> (\mathcal{L}_{m}) .

La eficiencia de detección es una cantidad que puede ser calculada a partir de la geometría de contaje y de los coeficientes de absorción lineal del cristal detector. Este cálculo ha sido hecho por Vegors, Marsden y Heath (1 V 58) para fuentes puntuales, lineales y en forma de disco para detectores cilíndricos de distintas dimensiones, por Mc.Ilhenny y Mc. Carthy (4 M 59) para fuentes cilíndricas, etc.

ŧ

Para el caso de emisores de una única energía gamma, la integración del espectro de distribución de alturas de pulsos (una vez descontada la contribución correspondiente a radiación dispersada, radiación de fondo etc.), dará el número total de fotones detectados por el sistema de medición en un dado espacio de tiempo. Cuando el analizador utilizado es un analizador diferencial multicanal la integración se lleva a cabo por simple adición de las velocidades de contaje en cada canal.

La forma del espectro de alturas de pulsos es muy afectada por una serie de factores, entre ellos la presencia de material próximo al cristal, blindaje, etc. El efecto de estos factores produce una distorsión más notable en la región de distribución Compton, alterando muy poco el fotopico.

- 45 -

Como en general no es posible trabajar en condiciones ideales, para la obtención de las velocidades absolutas de emisión se hace uso de una cantidad denominada <u>foto eficiencia</u> o <u>relación pico-espectro total</u> (P). Esta cantidad es la fracción del número total de sucesos que es registrada en el pico fotoeléctrico. El valor de P ha sido determinado experimentalmente en función de la energía gen condiciones muy cercanas a las ideales (retrodispersión despreciable) y puede ser aplicado en el análisis de datos obtenidos en condiciones no muy diferentes(12 B 55).

De acuerdo con todo lo mencionado anteriormente, la velocidad de emisión de un único rayo 🕇 está dada por la siguiente expresión:

^N
$$\chi = \frac{A_f}{\epsilon_T \cdot P \cdot a_S}$$
 (II.D.3)

Donde es:

 $N_{f} = n^{\circ}$ de fotones emitidos por unidad de tiempo por la fuente. $A_{f} =$ área bajo el fotopico, expresada en cuentas por unidad de tiempo.

- $\xi_{\rm T}$ = eficiencia absoluta de detección total para la geometría usada.
- P = relación pico-espectro total.
- $a_S = factor de corrección por absorción.$

Cuando el nucleído cuya velocidad de desintegración se desea determinar emite varios rayos 🕉 se elige para los cálculos el fotopico correspondiente a la energía 🎖 más alta, debido a que los fotopicos de encrgía menor incluyen parte de la distribución Compton proveniente de los de mayor energía.

E.-Determinación de velocidades de desintegración

La determinación de rendimientos independientes en fisión se basó en la medición de velocidades absolutas de desintegración de los nucleídos producidos en fisión separados siguiendo el procedimiento ya indicado (Cap. II, Sec.C-2).

Los espectros de rayos de emitidos por las diferentes fuentes fueron obtenidos utilizando el dispositivo de medición descripto (Cap.II, Sec. D) identificándose los fotopicos correspondientes a los nucleídos a estudiar. Se realizaron tales mediciones en función del tiempo, construyéndose con el área de cada fotopico elegido una curva de desintegración que, por análisis, condujo al conocimiento de la velocidad de contaje respectiva.

Para la conversión de estas velocidades a actividades absolutas es necesario disponer de la <u>eficiencia práctica de medición</u> y de los esquemas de desintegración implicados.

Los parágrafos siguientes están dedicados a la determinación de las eficiencias prácticas de medición.

1.- Eficiencias prácticas de medición

Las características particulares de las fuentes radioactivas preparadas (Cap.II, Sec. C-3) hizo necesaria una calibración de la unidad de contaje en eficiencias, en las mismas condiciones de medición.

Definimos <u>eficiencia</u> <u>práctica</u> (ξ_p) como el cociente entre el número de suentas por minuto en el fotopico y el número de fotones gamma correspondientes emitidos por la fuente en la misma unidad de tiempo.

La parte práctica consistió en la medición de fuentes de actividades absolutas conocidas, preparadas y medidas en condiciones idénticas a las seguidas con los nucleídos separados de fisión (Cap.II, Sec.D-2) y la obtención de las eficiencias de contaje para diferentes energías.

a) Fuentes radioactivas utilizadas

Se utilizaron soluciones acuosas de emisores **b** de actividades específicas conocidas. Dos mililitros de cada una de estas soluciones se distribuyeron uniformemente sobre carbón activado y secaron con lámpara de rayos infrarrojos. nes de geometría descriptas (Cap.II, Sec.C-3).

Los nucleídos utilizados y sus características de desintegración se detallan a continuación:

Nucleido	Energía del rayoð elegido	Coeficiente de conversión total	Nºde fotones emitidos por desintegración	Referen cias
	Ey (Kev)	©√.	D (X)	
a 137	661,6	برد د (5 M 52 1 D 60
Cs		0,1137	0,8531	1 y 58 4 P 49
203	279,12			1 E 58
		0,2247	0,8165	4 N 58
57	325			1056
$Cr^{2\perp}$		0,0016		14 B 55.
			0,0899	2 0 57
95	768			4 C 53
Nb ⁹⁹		0,0021	0,9879	2 10 55
.™ n ⁵⁴	834,9			6 W 61
		0,0000	1,0000	1 V 58
	1273,6			7 S 59
Na ²²		0,0000	1,0000	3 L 54
	898,8	<u> </u>		3 P 59
88	19 1 19 1 19 1 19 19 19 19 19 19 19 19 1	0,0003	0,9150	6 M 52 4 L 56
▲	1840	0.0000		5 P 59
		0,0002	0,9948	4 L 56

 (#) D= Número de fotones (de la energía considerada) sin convertir emitidos por unidad de desintegración. Se obtiene, por cálculo, a partir del esquema de desintegración. Se midieron también los rayos X de las fuentes de Hg²⁰³ y Cs¹³⁷. Para los cálculos corvespondientes se aplicaron los valores de rendimientos de fluorescencia para la capa K (w_K) obtenidos con la fórmula semiempírica de Burhop (13 B 52):

$$\begin{pmatrix} W \\ K \\ \hline 1 - W_K \end{pmatrix} = -0,217 + 0,0332 Z - 1,14x10^{-6} Z^6$$
(II.E.1)
Z = n° de carga del elemento emisor del rayo X.

Fuente	EX (Kev)	[₩] K	≪ _K	A T	Referen- cias
H_g^{203} (X _{TI})	70,2	0 , 95	0,162	0,2247	7 W 59 calculado 4 N 58
c _s 137 (X _{Ba})	32,88	0,873	0,093	0 , 113 7	7 W 59 2 E 61 1 Y 58 1 D 60

El número de fotones X_K emitidos por la fuente en la unidad de tiempo $(N_{\overline{X}_K})$ está relacionado con el número de desintegraciones del nucleído emisor en la misma unidad de tiempo (N_0) mediante la expresión:

 $N_{X_K} = N_0. D. (II.E.2)$

Siendo:

- D = N° de fotones sin convertir emitidos por unidad de desintegración, para el rayo 🗴 considerado.
- K= coeficiente de conversión en la capa K.
- ^WK= rendimiento de fluorescencia en la capa K.
- b) Calibración de soluciones

La calibración absoluta de las soluciones utilizadas se realizó en la siguiente forma: 2ml de cada una de ellas se colocaron en recipientes de poliestireno, (fig.II.E.l) y se midiaron a una distancia de l2,1 cm de la superficie del cristal detector como indica la figura II.E.2.

Se comprobó experimentalmente que las volocidades de contaje determinadas con esta geometría no diferían de las obtenidas en condiciones iguales a las indicadas por Heath (9 H 57).

Integrando las áreas bajo los fotopicos elegidos y utilizando los datos de relaciones pico-espectro total de



Fig. II E.1 - Recipiente de poliestireno utilizado en la calibración de las soluciones.-



Fig.II-E.2 - Disposición fuente - contador empleada en la calibración de las soluciones (1 V 58), de coeficientes de absorción por interpolación gráfica de las tablas de Siegbahn (6 S 55) y de eficiencias de medición de Heath (9 H 57) se hallaron las correspondientes velocidades absolutas de desintegración aplicando:

$$N_{o} = \frac{A_{f}}{E_{T} P.D.a_{s}} \qquad (II.E.3)$$

siendo:

 N_0 = número de desintegraciones por minuto.

- D = número de fotones sin convertir emitidos por unidad de desintegración para el rayo δ considerado.
- A_{f} = área del fotopico en cuentas/minuto.
- \mathcal{E}_{T} = eficiencia de medición (9 H 47)

P = relación pico-espectro total (1 V 58)

 $a_s = factor de absorción; a_s = e^{\sum_{i=1}^{n} X_i}$, Micoeficiente másico de absorción del absorbedor i (en cm²/mg), X_i = espesor del absorbedor (en mg/cm²).

Los absorbedores interpuestos entre el emisor y el cristal incluyen: base del recipiente (136,5 mg/cm² de poliestireno), soporte (9,03 mg/cm² cinta adhesiva de celulosa), cobertura del cristal (219 mg/cm² de aluminio) y reflector del cristal (67 mg/cm² de Al₂O₃).

En ciertos casos se interpuso además un absorbedor de Al para eliminar el fondo /3 :54 mg/cm² de Al para las fuentes de Na²² y Cs¹³⁷ y 18 mg/cm² de Al para las de Nb⁹⁵ y Hg²⁰³.

Nucleído	E (Kev)	٤.	P	a _s
Hg ²⁰³	279,12	0,0189	0,853	0,9464
Cr51	325	0,0182	0,811	0,9529
Csl37	661,6	0,0146	0,538	0,9613
Nb95	768	0,0140	0 , 49 8	0,9663
Mn 54	834,9	0,0137	0,474	0,9687
Na ²²	1273,6	0,0122	0 , 357	0,9717
¥ ⁸⁸	1840	0,0113	0,277	0,9792

Los valores de \mathcal{E}_{T} , P y a_s utilizados en los cálculos se indican en la tabla:

c) <u>Cálculo de las eficiencias prácticas de medición de los</u> <u>nucleídos patrón</u>

Las fuentes preparadas como se indicó en la sección E-l(a) del presente capítulo, se midieron en condiciones idénticas a las seguidas con las muestras de nucleídos separados de fisión (Cap.II, Sec. D-2).

Se determinaron en la forma usual las áreas bajo los fotopicos correspondientes a los rayos δ elegidos (A_f). Las eficiencias prácticas de medición ($\boldsymbol{\xi}_p$) se obtuvieron aplicando:

$$\xi_{\rm p} = \frac{\Lambda_{\rm f}}{N_{\rm X}} \qquad (\text{II.E.4})$$

donde es:

 A_{f} = área bajo el fotopico en c/min.

- Ny = número de rayos y sin convertir (de la energía correspondiente) emitidos por minuto.
- $N_X = N_0 D$; N_0 es el número de desintegraciones del emisor por minuto, y D es el número de fotones sin convertir por unidad de desintegración, para el rayo X considerado.

Para rayos X:

$$\boldsymbol{\xi}_{p} = \frac{A_{f}}{N_{\boldsymbol{K}_{K}}} \qquad (II.E.5)$$

analogamente es,

 $N_{X_{K}}$ = número de rayos X_{K} emitidos por la fuente por minuto d) <u>Trazado de la curva de eficiencias prácticas</u>

Se representaron los valores experimentales de eficiencias prácticas de medición en función de las correspondientes energías. Se esperaba obtener de esta manera una curva que no difiriera apreciablemente de las que dan eficiencias intrínsecas, excepto en la zona de bajas energías donde la diferencia en las condiciones de trabajo se hace más notable (4 M 59). En particular, la presencia de absorbedores tendería a disminuir la eficiencia en aquella zona.

Para el trazado de la curva (fig.II.E.3) se aplicó el método de regresión múltiple probando distintos tipos de funciones que dieran la forma buscada. Esta parte del trabajo se realizó con la colaboración del Instituto de Cálculo de la Facultad de Ciencias Exactas, utilizándose la Computadora Mercury de dicho Instituto.



I

La forma de la curva trazada concordó con lo previsto según las consideraciones anteriores.

2.-Pasaje de velocidad de contaje a velocidad de desintegración

La eficiencia práctica de medición obtenida para una dada energía 🕉 a partir de la curva que muestra la figura II.E.3 permite calcular la velocidad de emisión gamma a partir del área bajo el fotopico correspondiente.

La conversión de velocidad de emisión δ en velocidad de desintegración requiere el conocimiento del esquema completo que describe el modelo de desintegración para el nucleído particular, el que incluye la razón de ramificación y el coeficiente de conversión para el rayo δ considerado.

Cuando se determina la actividad absoluta del nucleído mediante la velocidad de emisión de rayos X, es necesario hallar también el rendimiento de fluorescencia correspondiente.

La velocidad de desintegración puede ser finalmente obtenida mediante la expresión:

$$N_{0} = \frac{A_{f}}{\ell_{p} D} \qquad (II.E.6)$$

Siendo:

- N_0 = velocidad de desintegración expresada en cuentas por unidad de tiempo.
- A_{f} = área bajo el fotopico expresada en cuentas por unidad de tiempo.
- $\mathbf{\xi}_{p}$ = eficiencia práctica de medición para la energía $\mathbf{\chi}$ considerada.

D - número de fotones sin convertir emitidos por desintegración.
Para rayos X:

$$N_{o} = \frac{A_{f}}{\mathbf{E}_{p} D \mathbf{A}_{K} W_{K}} \qquad (II.E.7)$$

donde es:

 \mathbf{A}_{K} = coeficiente de conversión del rayo \mathbf{X} en la capa K. \mathbf{W}_{K} = rendimiento de fluorescencia en la capa K. \mathbf{S}_{p} = eficiencia práctica para la energía del rayo X.

F.-Resolución de curvas de desintegración

En esta sección se desarrollan las ecuaciones generales utilizadas en el análisis de las curvas de desintegración para calcular las actividades de cada uno de los nucleídos aislados de la mezcla de productos de fisión.

Se tratan las expresiones analíticas correspondientes a los diferentes casos que se presentaron durante el curso del trabajo. 1.- <u>Medición de la velocidad de contaje total de un par de nucleídos relacionados genéticamente</u> (madre A e hija B)

La actividad debida a la desintegración de la madre está dada por:

$$C_A = C_A^{\circ} e^{-\lambda_A t}$$
 (II.F.1)

siendo C_A^o velocidad de contaje de la madre para t = 0

 λ_{A} = constante de desintegración de la madre.

$$C_{B} = C_{A}^{\circ} \frac{f_{B}}{f_{A}} \frac{\lambda_{B}}{\lambda_{A} - \lambda_{B}} \quad (e^{-\lambda_{B}t} - e^{-\lambda_{A}t}) + C_{B}^{\circ} e^{-\lambda_{B}t}$$
(II.F.2)

Siendo:

$$\begin{split} C_B^o &= \text{velocidad de contaje de la hija para t = 0} \\ \lambda_B &= \text{constante de desintegración de la hija} \\ f_A &= \text{factor de conversión de velocidad de contaje (C_A) en veloci-dad de desintegración (D_A) para la madre, dado por: <math>\begin{array}{c} C_A \\ D_A \end{array} \\ f_B &= \text{idem para la hija} \\ La velocidad de contaje total es: \end{split}$$

$$C_{t} = (C_{A}^{\circ} \frac{f_{B}}{f_{A}} \frac{\lambda_{B}}{\lambda_{A} - \lambda_{B}} + C_{B}^{\circ}) e^{-\lambda_{B} t} + C_{A}^{\circ} (1 - \frac{f_{B}}{f_{A}} \frac{\lambda_{B}}{\lambda_{A} - \lambda_{B}})e^{-\lambda_{A} t}$$
(II.F.3)

Graficando en papel semilogarítmico la velocidad de contaje total medida (escala logarítmica) en función del tiempo (escala lineal) se obtiene una curva (fig.ILF.l.)que obedece a la expresión (II.F.3) y puede ser resuelta en dos componentes en la siguiente forma: se continúa la representación hasta alcanzar la zona en que la curva se hace exponencial pura (recta en el dibujo). Extrapolando esta parte hasta t=0 y restando de los valores
de la actividad total los valores de esta "recta" para tiempos correspondientes, se obtiene una serie de puntos por los que se puede trazar una nueva "recta".

El par de rectas obedece a las expresiones analíticas:

$$C_{A} = C_{A}^{\circ} \left(1 - \frac{f_{B}}{f_{A}} - \frac{\lambda_{B}}{\lambda_{A} - \lambda_{B}}\right) e^{-\lambda_{A}t}$$
(II.F.4)
$$C_{A} = \left(C_{A}^{\circ} - \frac{f_{B}}{f_{A}} - \frac{\lambda_{B}}{\lambda_{A} - \lambda_{B}} + C_{B}^{\circ}\right)e^{-\lambda_{B}t}$$
(II.F.5)

Los valores en ordenadas para t=0 de ambas rectas, que se obtienen del gráfico, están dados por las ecuaciones:

$$\boldsymbol{\boldsymbol{\alpha}} = C_{A}^{o} \left(1 - \frac{f_{B}}{f_{A}} + \frac{\lambda_{B}}{\lambda_{A-} \lambda_{B}}\right) \qquad (II.F.6)$$

$$\mathbf{A} = C_{A}^{\circ} \frac{f_{B}}{f_{A}} \frac{\lambda_{B}}{\lambda_{A-} \lambda_{B}} + C_{B}^{\circ} \qquad (II.F.7)$$
Fillog poweritor colouilon $C_{B}^{\circ} = C_{B}^{\circ}$

Ellas permiten calcular C_A° y C_B°

- 2.- <u>Medición de la velocidad de contaje de un nucleído (hija)pro-</u> <u>ducido por desintegración de otro (madre) también presente</u> <u>en la fuente</u>.
 - a) Caso en que el nucleído hija no está presente inicialmente, es decir: $C_B^0 = 0$

La expresión analítica de la curva experimental es:

$$C_{t} = C_{B} = C_{A}^{0} \frac{f_{B}}{f_{A}} \frac{\lambda_{B}}{\lambda_{A} - \lambda_{B}} (e^{-\lambda_{B}t} - e^{-\lambda_{A}t}) \quad (II.F.8)$$

Cuando es A, B, (fig.II.F.2) la extrapolación de la porción recta del final de la curva de desintegración (cola) para t=0 esta dada por:

$$\boldsymbol{\swarrow} = C_{A}^{o} \frac{f_{B}}{f_{A}} \frac{\lambda_{B}}{\lambda_{A-} \lambda_{B}} \quad (II.F.9)$$

Del valor de \checkmark obtenido en ordenadas se calcula C^{o}_{A} .

b) <u>Caso en que el nucleído hija está presente en la muestra</u> <u>desde un principio</u>, es decir $C_{B}^{0} \neq 0$

La velocidad de contaje medida cumple la ecuación:

$$C_{t}=C_{B}=(C_{A}^{\circ}\frac{f_{B}}{f_{A}}\frac{\lambda_{B}}{\lambda_{A}-\lambda_{B}}+C_{B}^{\circ})e^{-\lambda_{B}t}-C_{A}^{\circ}\frac{f_{B}}{f_{A}}\frac{\lambda_{B}}{\lambda_{A}-\lambda_{B}}e^{-\lambda_{A}t}$$
(II.F.10)









Cuando es λ_A , λ_B , (fig.II.F.3) el valor obtenido en ordenadas para t=0 por extrapolación de la parte recta de la curva es:

$$\checkmark = C_A^{\circ} \frac{f_B}{f_A} \frac{\lambda_B}{\lambda_{A-} \lambda_B} + C_B^{\circ} \qquad (II.F.11)$$

Restando de los puntos de la recta extrapolada los valores correspondientes de la parte curva, se construye una nueva "recta" El valor obtenido de esta última para t=0 es:

$$\beta = C_{A}^{0} \frac{f_{B}}{f_{A}} \frac{\lambda_{B}}{\lambda_{A-} \lambda_{B}}$$
(II.F.12)

Con los valores de \checkmark y /3 y aplicando las ecuaciones (II.F.11) y (II.F.12) se calculan C_A^o y C_B^o .

Cuando las mediciones se inician una vez que la madre ha decaído totalmente sólo se puede obtener en forma experimental el valor \checkmark , y, por lo tanto, el valor de la velocidad de contaje de la madre para t=0 como una función de la actividad de la hija en ese momento(o viceversa).

3.-Medición de la velocidad de contaje total de un par de nucleídos relacionados genéticamente (madre A e hija B) y un nucleído independiente (C) siendo $C_B^0 = 0$.

La expresión a la que obedece la curva obtenida experimentalmente es: $C_t = C_c^{\circ} e^{-\lambda_C t} + C_A^{\circ} \frac{f_B}{f_A} \frac{\lambda_B}{\lambda_{A-\lambda B}} e^{-\lambda_B t} + C_A^{\circ} (1 - \frac{f_B}{f_A} \frac{\lambda_B}{\lambda_{A-\lambda B}}) e^{-\lambda_A t} (II.F.13)$

Se discutirá el caso en el que es: $\lambda_A > \lambda_B$

 $\begin{array}{c} \lambda_{A} > \lambda_{B} \\ \lambda_{B} \simeq \lambda_{C} \end{array} (II.F.14)$

Extrapolando la cola de la curva de desintegración(fig.II. F.4), el valor de la ordenada para t=0 es

$$\boldsymbol{\boldsymbol{\times}} = C_{A}^{o} \quad \frac{f_{B}}{f_{A}} \quad \frac{\boldsymbol{\lambda}_{B}}{\boldsymbol{\lambda}_{A} - \boldsymbol{\lambda}_{B}} \quad (\text{II.F.15})$$

el que permite calcular C_A^{O} .

A partir de la recta extrapolada es posible construir punto a punto la curva que representa el crecimiento de la actividad del nucleído hija (C_B). Restando esa curva de crecimiento a la curva experimental, se obtienen los puntos que corresponden a

- 55 -

la velocidad de contaje que es suma de la actividad del nucleído madre (C_A) más la del nucleído independiente (C_C). La curva trazada por ellos no puede ser resuelta en la forma usual dado que sus componentes tienen constantes de desintegración prácticamente iguales. Su extrapolación hasta t=0 da un valor /3 que cumple:

$$3 = C_A^{\circ} + C_C^{\circ}$$
 (II.F.16)

Con (II.F.15) y (II.F.16) se pueden calcular C_A^o y C_C^o , con los valores de \checkmark y /3 obtenidos mediante el análisis descripto.



Fig. I. F.3 - Curva. de desintegración de un nucleído (hijaB) producido por desintegración de otra (madre A) también preseiz te en la muestra, siendo $C_B^o \neq 0$ y $\lambda_A > \lambda_B$



Fig. I. F.4 - Curva. de desintegración de un para nucleidos revacionadas geneticamente (madre A e hija B) y un nucleido independiente (C), siendo C^o_B=0; $\lambda_A > \lambda_B$ y $\lambda_A \simeq \lambda_C$ -

<u>CAPITULO</u> III

Mediciones y resultados experimentales

A.-Datos de desintegración de los nucleídos investigadoes

Como ya ha sido mencionado, el cálculo de rentimientos independientes requiere el conocimiento de las características de desintegración de los nucleídos investigados.

En la separación de Xenón de la mezcla de productos de fisión los nucleídos a investi $_{G}$ ar están acompañados por todos sus isótopos producidos en fisión.

En la tabla se da una lista deisótopos de Xenón con números de masa desde 133 hasta 144 (región de productos de fisión), en la que se incluyen sus períodos de semidesintegración y relaciones genéticas.

Nucleído	Período de semi- desinte- gración	Cadena de f isió n corr espo ndiente	Referen- cias
Xe ^{133m}	2,35 d	$0.92^{7} \frac{\text{Te}^{\text{m}}}{53} 0.96 $	15 B 52 7 P 53
⊼e ¹³³	5,27 d	$4,1$ $0,08$ 1 $20,9h \sim h Xe \sim Cs$	7 A 57 Q E 61
		21	
Xe ^{135m}	15,8min.	0,27 ^{Xe^m}	8 A 60
		Sb Te I	10 H 61
		24" 1,4'6,75h	11 W 55
Ze ¹³⁵	9 , 13h	0,73 Xe $2x106a$ Ba	16 B 53
		O of Bam	10 W 60
xe 137	3.9 min		10 5 49
AC .	J ,	24" 3,9' 30a	10 D 49 8 P 59
		0,05 <u>Ba</u>	12 F 61
			8 P 59
Xe ^{⊥38}	17 min.	$I \xrightarrow{Xe} Xe \xrightarrow{Cs} Ba$	4 G 40
			12 W 60

Isótopos radioactivos del Xe con 133 \leq A \leq 144

	Daniala		
Nucleído	de semi-	Cadena de fisi ó n	Referen-
	desinte- gración	correspondiente	cias
Xe ¹³⁹	41 seg.	I Xe Cs # Ba Ia 2" 41" 9,5' 85'	8 P 59 3 D 50 11 S 50
			T5 11 00
⊼el40	l6 seg.	Xe Cs La Ce 16" 66" 40h	3 D 50
Xel41	l,7 seg	Xe	3 0 50
Xe ¹⁴²	1,5 seg	Xe Cs Ba Ba Ia Ce 1,5" 1" 11' 85'	8 C 61
X el43	l seg.	Xe \rightarrow Cs \rightarrow Ba \rightarrow La \rightarrow Ce \rightarrow Pr \rightarrow Nd 1" corto 12" 14' 33h 13,8d	3 D 50
Xel44	l seg.	Xe -> Cs> Ba> La -> Ce> Pr > Nd 1" corto corto corto 289d 17' 5x10	3 D 50

Se realizaron las separaciones de Xe de los productos de fisión una vez transcurridos intervalos de tiempo tales que las actividades de los nucleídos de períodos de semidesintegración más cortos (\leq 1 min.) habían decaído totalmente. La figura III.A.l muestra los esquemas de desintegración de los nucleídos presentes en las muestras radioactivas separadas en las condiciones mencionadas.

No se indica el esquema de desintegración del Xel37 (3,9 minutos) porque, debido a su corto período y a la energía de sus rayos gamma (260 kev y 450 kev), no interfería en las mediciones.

Se discute a continuación la medición de las actividades de los nucleídos separados de fisión.



Fig. II. A. 1 (a) Esquema de desintegración del par Xe^{133m/133}



(kev)	relativas de rayos y
250	~ 1
360	~ 9 x 10 ⁻⁴
604	~ 3 x 10 ⁻²

Referencias: Esquema según (5NG1)

Fig. II A. 1 (b) - Esquema de desintegración del par Xe^{135m/135}



(estable)

Nucleído	Energía del rayo Y (Kev)	Intensidad relativa del rayo y
	420	1
Хе' ³⁸	510	≈ 20
	1780	≈ 20
	2010	_

Nucleído	Energia del rayo y seguido	Intensidad absoluta
(138	550	0,08
00	1426	0,73

Referencias Esquemas según (5N61)

Fig. II A.1 (c) Esquema de desintegración de la cadena Xe¹³⁸ - Cs¹³⁸ B.-Medición de las actividades 1.-Par isomérico Xel35m/135

El esquema de desintegración correspondiente se muestra en la figura III.A.1 (b).

Las actividades de Xe^{135m} (15,8 minutos) y Xe¹³⁵(9,13 horas) se determinaron siguiendo la desintegración de los fotopicos coprespondientes a los rayos gamma de 527,4 Kev y 250 Kev respectivamente. La actividad del Xe¹³⁸ (17 min.) se obtuvo por estudio de los fotopicos debidos a los rayos X de 1426 Kev y 510 Kev.

1) Medidión del rayo de 527,4 Kev

Una vez descontada la distribución Compton de los rayos de mayor energía que contribuían a la velocidad de contaje en la zona correspondiente, el fotopico restante estaba formado por la superposición de los fotopicos debidos a los rayos d de 527,4 Kev (Xe^{135m}, 15,8 min.), 510 Kev (Xe¹³⁸ 17 min.) y 550 Kev (Cs¹³⁸, 32,5 min.)

La representación del área del fotopico compuesto en función del tiempo dió una curva de desintegración que fue resuelta en sus componentes aplicando el método descripto en el Capítulo II, Sección \mathbb{P} -3, para: A=Xel38; B= Cs¹³⁸; C = Xe¹³⁵m.

Los valores obtenidos con este análisis, con las consideraciones mencionadas en aquella sección, permitió obtener las velocidades de contaje del Xe¹³⁸ y Xe^{135m} extrapoladas al corte de cadema

Otra determinación de la actividad del Xel38 se realizó por conflicis de la curva de desintegración obtenida siguiendo el decalmiento del rayo de 1426 Kev, según se indica a continuación.

II) Medición del rayo de 1426 Kev

Este rayo corresponde al Cs¹³⁸. El análisis de la curva de desintegración obtenida se llevó a cabo siguiendo el procedimiento indicado en el Capítulo II, Sección F-2 (a), para: $A = Xe^{138}; B = Cs^{138}.$

Esta determinación de la velocidad de contaje del Xe¹³⁸ (al corte de cadena) coincidió, dentro del error experimental, con la obtenida mediante el análisis de la curva de desintegración correspondiente al rayo de 510 Kev.

III) Medición del rayo 🗴 de 250 Kev

El análisis del fotopico correspondiente se inició una vez que habían decaído las actividades debidas a nucleídos de períodos de semidesintegración más cortos (Xe¹³⁷ de 3,9 min. y Xe^{135m} de 15,8 min.). La resolución de la curva de desintegración se effectuó según el método descripto en el Capítulo II, Sección F-2 (b), para: $\Lambda = Xe^{135m}$; $B = Xe^{135}$. Como ya se ha mencionado, habiendo decaído totalmente la actividad de la madre al iniciarse el análisis el valor obtenido da una relación entre las actividades de madre e hija extrapoladas al momento de corte de cadena:

$$c_{Xe^{135}}^{\circ} = \mathbf{\mathcal{Q}} - c_{Xe^{135m}}^{\circ} \frac{\mathbf{f}_{B}}{\mathbf{f}_{A}} \frac{\lambda_{B}}{\lambda_{A^{-}} \lambda_{B}}$$

siendo:

 $C_{Xe}^{0}_{135}$ = velocidad de contaje del Xe¹³⁵ al corte de cadena $C_{Xe}^{0}_{135m}$ = Velocidad de contaje del Xe^{135m} al corte de cadena

- C_{+} = valor obtenido en ordenadas, para t = 0, por extrapolación de la parte recta de la curva de desintegración.
- $f_B = factor de conversión de velocidad de contaje en velocidad de desintegración para el Xe¹³⁵.$
- $f_1 =$ idem para el Xe¹³⁵m
- λ unstante de desintegración del Xe^{135m}
- h_{AB} = constante de desintegración del Xe¹³⁵

Reemplazando $C_{Xe}^{0}_{135m}$ por su valor obtenido en (I) se calculó $C_{Ze}^{0}_{135}$

2.-Par isomérico Xel33m/133

El estudio del esquema de desintegración (figura III.A.1(a)) indic. : mogibilidad de medición de los rayos **%** de 80,97 Kev (Ze¹³³) y de 233 Kev (Xe^{133m}). Sus coeficientes de conversión y rendimientos de fluorescencia sugirieron la observación de los

mespectivamente. Lespondientes rayos X_{K} , de 30,27 Kev (X_{Cs}) y 29,10 Kev (X_{Xe}) respectivamente. Para eliminar la interferencia del rayo o de 250 Kev (C_S135) proveniente del Xe¹³⁵ (9,13 horas) en la medición del rayo o de 233 Kev y las contribuciones de todos los nucleídos de períodos de semidesintegración menores que los del par Xc^{133m/133}, en la zona de bajas energías (de 20 a 90 Kev) el cotudio de este último se inició después de transcurridos cinco días desde el corte de cadena. Recién entonces había decaído convenientemente la actividad correspondiente al Xe¹³⁵, que se produce abundantemente en fisión, según se comprobó experimentalmente. En estas condiciones el rayo de 233 Kev (Xe^{133m}) no se distinguía satisfactoriamente debido a su baja intensidad.

Por lo tanto, las actividades de los isómeros Xe^{133m} y Xe¹³³ se obtuvieron de las mediciones de los fotopicos correspondientes al rayo de 80,97 Kev y a los rayos X de 30,27 Kev y 29,10 Kev. Estos dos últimos de observaron como un único pico en los espectros obtenidos.

I) Medición del rayo 🔏 de 80,97 Kev

El análisis de la curva de desintegración correspondiente no fue satisfactorio debido a que se dispuso de pocos datos para su cometrupción a causa de inconvenientes en las mediciones.

II) Medición de los rayos X de 30,27 Kev y 29,10 Kev

La curva de desintegración construída fue resuelta en sus componentes aplicando el procedimiento descripto en el Capítulo II, Sección F-1, para: A=Xe^{133m} y B=Xe¹³³, obteniéndose así las velocidades de contaje correspondientes a Xe^{133m} y Xe¹³³, extrapoladas al corte de cadena.

3.- <u>Términos implicados en la resolución</u> de las curvas de desintegración

Se tabulan a continuación todos los términos que intervienen en los cálculos de velocidades de contaje realizados mediante el análisis de las curvas de desintegración.

MEDICION	DE	RAYOS	GAMMA

Muoloí- co	E (Inorgia del rayo seguido) (Kev)	D (Nº de foto- nes sin con- vertir emiti- dos por desin- tegración)	Ep (Eficien cia prác- tica de medi- ción)	t 1/2 (período de semidesin- tegra- ción)	f (Factor de conversión de veloc.de contaje a veloc.de desintegr.)	Referen- cias
Cs-38	1420	0 ,7 3	0,013	32.5 min.	0,0095	17 B 56
ite antesan an sa falaite antes a sa sa sa	550	0,08	0,055		0,0044	17 B 56
Xc ¹³⁸	510	0 ,2 0	c,049	17 min.	0,0099	l T 55
_{Xe} 135m	527,4	0,826	0,057	15,8 min.	0,0472	8 🛦 60
Xe ¹³⁵	250	0,913	0,117	9,13 h.	0,1068	1 5 в 52 16 в 53

MEDICION DE RAYOS X

Mucleí- ão	ÈX (Kev)	a (Abundan- cia pa- ra el rayo en cuestión	Ę	t ½	×ĸ	~ _T	₩к	f
 	29,10	0,136	0,112	2 , 35 d	4 ,4 0	6,36	0 ,865	0 ,058 0
	30,27	0,375	0,112	5,27 d	1,39	1,67	0,872	0,0501
Refe- ron- cias	7 1 59	Calculada con los esquemas de desin- tegración	Saca- das de Fig.II. E.3	15 3 52 4 E 61	18 B 54 4 E 61	18 B 54 15 B 52	Calculados como se indica en el Cap.II, Sec. 1-a	Calcu- lado

En esta sección se detallará el tratamiento seguido para el cálculo de las relaciones de rendimientos independientes de los pares isoméricos Xe^{135m/135} y Xe^{133m/133}.

1.-Par isomérico Xe^{135m/135}

La cadena de productos de fisión correspondiente al número de masa 135 se esquematiza a continuación:



a) <u>Cadena</u> completa

Como ya se ha mencionado (Cap.II, Sección B-2), se consideró a cadena como iniciada por el I^{135} debido a que los primeros miembros poseen períodos de semidesintegración mucho menores.

De esta manera la cadena en cuestión puede ser representada por:



El cálculo de la relación de rendimientos independientes se llevó a cabo siguiendo el procedimiento descripto en el Capítulo -- Socción B-2(d), para: A=I¹³⁵, B=Xe¹³⁵m y C=Xe¹³⁵. Como nucleído independiente (N) se utilizó el Xe¹³⁸, considerado primer miembro de la cadena de número de masa 138.

Los datos experimentales obtenidos con dos irradiaciones permitieron plantear un único sistema de ecuaciones cuya resolución condujo, por lo tanto, a un único valor de la relación de rendimientos independientes del par isomérico Xe^{135m/135}.

Este valor está afectado de las imprecisiones propias del trabajo experimental, las que serán discutidas más adelante; entre ellas ocupan un lugar importante los errores que implican la determinación de las velocidades de desintegración de Xe^{135m}, Xe¹³⁵ y Xe¹³⁸. Se trató de reducir estos errores en lo posible modificando el cálculo de la relación de rendimientos de manera que pudiera omitirse el empleo de los datos experimentales referentes al Xe¹³⁸. Con tal fin se adoptó la "cadena aproximada" siguiente:

b) Cadena aproximada

Xe¹³⁵ Xe¹³⁵

Los valores de rendimientos independientes calculados con esta aproximación darían una cota superior del valor real, debido a que en ella no se corrigen las actividades medidas de Xe^{135m} y Xe¹³⁵ por la contribución de la fracción formada por desintegración del I¹³⁵ durante la irradiación y desde el fin de irradiación hasta el corte de cadena.

En la sección D del presente Capítulo se resume la deducción de que los valores aproximados dan una cota superior del valor real.

El cálculo de la relación de rendimientos independientes según la cadena aproximada se realizó utilizando el método indicado en el Capítulo II, Sección B-2 (b), para A= Xe^{135m} y B=Xe¹³⁵.

La aplicación de la ecuación II.B. 3 para los conjuntos de valores correspondientes a cada una de las experiencias realizadas permitió obtener dos valores de la relación de rendimientos, los que aparecen en la tabla de resultados experimentales finales bajo la denominación de <u>relación de rendimientos independien-</u> tes para cadena aproximada.



a) Cadena completa

En forma análoga a la seguida en el tratamiento anterior $(Xe^{135m/135})$ la cadena en cuestión puede ser representada por:



Según las últimas publicaciones disponibles sobre el esquema de desintegración del I¹³³, la probabilidad de transición de éste al isómero Xe^{133m} es mucho menor que la probabilidad de transición al isómero Xe¹³³. Además, los correspondientes valores no se conocen hasta el presente (3 B 60).

Por lo tanto se consideró la cadena: Xe^{133} Xe^{133} Xe^{133}

La relación de rendimientos independientes se calculó siguiendo el procedimiento indicado en el Capítulo II, Sección B-2 (c). El nucleído independiente considerado fue nuevamente el Xe¹³⁸.

La resolución del sistema de ecuaciones planteado con los datos experimentales correspondientes a dos irradiaciones condujo a la obtención de un único valor de la relación buscada.

Como en el estudio del Xe^{135m/135}, también para el Xe^{133m/133} se consideró una cadena simplificada análoga.

b) <u>Cadena</u> <u>aproximada</u>

Xe^{133m} Xe¹³³

Era de esperar que esta aproximación permitiera obtener valores de la relación de rendimientos que no se apartaran apreciablemente del valor hallado considerando la cadena completa, teniendo en cuenta que los períodos de semidesintegración implicados (I¹³³ 20,9h y Xe¹³³ 5,27 días) son tales que durante las irradiaciones (16 min.) y desde el fin de las mismas hasta los cortes de cadena (11,5 min. y 37 min.) sería muy poqueña lacontribución de Xe producida por desintegración del I¹³³. Los valores aproximados dan, como en el caso del Xe^{135m/135} una cota superior del valor real; esto se dedujo a partir de las ecuaciones utilizadas y se discute en la sección siguiente.

En el cálculo de la relación de rendimientos con esta cadena aproximada se siguió el tratamiento descripto en el Capítulo II, Sección B-2 (b). La aplicación de la ecuación II.B. 3 condujo a la obtención de un par de valores de la relación buscada, una para cada irradiación. Como se esperaba, los valores aproximados diferían muy poco del calculado considerando la cadena completa, siendo, además, una cota superior de este último. - 67 -

entre los valores de relaciones de rendimientos independientes obtenidos considerando las cadenas completas y las cadenas aproximadas de productos de fisión



Con las expresiones analíticas correspondientes a las velocidades de desintegración <u>medidas</u> (cadena completa) se dedujo la ecuación que da la relación de rendimientos independientes:



D^o = velocidades de desintegración <u>medidas</u> extrapoladas al corte de cadena.

El valor obtenido con esta ecuación sería el correspondiente a la cadena completa de productos de fisión.

La expresión correspondiente a la cadena aproximada es:



Las ecuaciones que dan $\left(\frac{y_{m}^{i}}{y_{g}^{i}}\right) y_{comp} \left(\frac{y_{m}^{i}}{y_{g}^{i}}\right)$ difieren únicamente en el factor: $\left(\frac{1-Ry_{I}}{D_{g}^{O}}\right) \frac{1-Ry_{I}}{\left(\frac{M}{D_{m}^{O}}\right)}$

Por lo tanto, la comparación entre las relaciones de rendimientos independientes obtenidos considerando la cadena completa y la cadena aproximada se puede llevar a cabo comparando ese factor con la unidad.

Los valores de G, M, D_m^0 y D_g^0 obtenidos a partir de datos experimentales cumplían la relación

$$\frac{C}{D_g^o}$$
 < $\frac{M}{D_m^o}$

y, por consiguiente:

$$\frac{1 - \operatorname{Ry}_{I} \left(\frac{G}{D_{g}^{\circ}}\right)}{\frac{g}{1 - \operatorname{Ry}_{I} \left(\frac{M}{D_{m}^{\circ}}\right)}} > 1$$

La observación de las ecuaciones correspondientes condujo a la conclusión de que los valores aproximados serían una cota superior de los valores reales, dado que se cumple:

$$\begin{pmatrix} y_{m}^{i} \\ \hline y_{g}^{i} \end{pmatrix}_{ap} \begin{pmatrix} y_{m}^{i} \\ \hline y_{g}^{i} \end{pmatrix}_{comp.}$$

E.- Resultados experimentales

La tabla siguiente resume los datos experimentales utilizados en los cálculos de las relaciones de rendimientos y los resultados obtenidos con dos experiencies. Estas fueron elegidas por considerárselas las mejores entre las varias experiencias realizadas.

	and the state of the local data of the state	
EXPERIENCIA	I	II
Tiempo de irradiación (min.)	16	16
Intervalo transcurrido desde el fin de irradiación hasta el corte de cadena(min.)	37	11,5
D _{Xe} 135m Velocidad de desintegración del Xe ^{135m} , extrapolada al corte de cadena (desint./min.)	3,19x10 ⁶	1,32x10 ⁶
D _{Xe} 135g Velocidad de desintegración del Xe ¹³⁵ , extrapolada al corte de cadena (desint./min.)	1,26x10 ⁶	0,34x10 ⁶
<pre>D^OXe¹38 Velocidad de desintegración del Xe¹³⁸, extrapolada al corte de cadena (desint./min.)</pre>	1.06x107	1,12x10 ⁷
D ^O _{Xe} 133m Velocidad de desintegración del Xe ^{133m} , extrapolada al corte de cadena (desint./min.)	8,85x10 ³	5,74x10 ³
D _{Xe} 1335 Velocidad de desintegración del Xe ¹³³ , extrapolada al corte de cadena (desint./min.)	8,91x10 ³	5,31x10 ³

Experiencia	ľI.	II
$ \begin{pmatrix} y_{11}^{i} \\ y_{11}^{i} \\ y_{i1}^{i} \\ g \end{pmatrix} _{ap.}^{135} $ Relación de rendimientos independientes para Xel35m/135 ap. (cadena aproximada)	0,86	0,30
Promedio de los valores aproximados, para Xe ^{135m/135}	0,58 -	0,28
$ \begin{pmatrix} y_{m}^{i} \\ y_{g}^{i} \end{pmatrix}_{comp.}^{135} Relación de rendimientosindependientes para Xe135m/135(cadena completa)$		0,50
$ \begin{pmatrix} y_{m}^{i} \\ y_{g}^{i} \end{pmatrix}^{133} $ Relación de rendimientos inde- pendientos para Xe ^{133m/133} ap. (cadena aproximada)	0,4 5	0,48
Promedio de los valores aproximados, _{para Xe} l33m/133	0,47	• 0,02
$ \begin{pmatrix} y_{m}^{i} \\ y_{g}^{i} \end{pmatrix}_{g}^{133} $ Relación de rendimientos in- dependientes para Xe ^{133m/133} (cadena completa)		0,40

F.- Errores y reproducibilidad

Hay numerosas fuentes de errores implicadas en las determinaciones experimentales. Una enumeración parcial de posibles errores debería incluir diferentes puntos tales como: 1) uniformidad en los blancos y reproducibilidad en su disposición y condiciones de irradiación, fundamentalmente en la energía del haz de deuterones (la intensidad del haz quedaría eliminada debido al tratamiento matemático aplicado a los valores experimentales); 2) pureza radioquímica de los radioisótopos separados; 3) reproducibilidad de las muestras radioactivas utilizadas en la medición de las actividades; 4) eficiencia de contaje; 5) exactitud en la resolución de los complejos datos de desintegración; 6)el uso de esquemas nucleares y períodos de semidesintegración; 7)correcciones por rendimientos en cadena.

Los errores en los promedios de valores aproximados que figuran en la tabla de resultados experimentales (Sección \mathbb{E} del presente Capítulo) son simplemente las desviaciones medias de los valores promediados y no intentan representar los errores experimentales.

G.- Análisis y conclusiones

En las publicaciones sobre rendimientos independientes en fisión consultadas hasta el momento de publicación de este trabajo no se suministran datos de relaciones de rendimientos independientes para los isómeros estudiados: Xel33m/133 y Xel35m/135. Tampoco se hallaron valores de rendimientos independientes de cada uno de los componentes de los pares isoméricos mencionados, los que hubieran permitido hallar relaciones entre los mismos a a fin de compararlas con los resultados obtenidos.

Coryell et al (9 C 62) hallaron rendimientos fraccionarios independientes de Xe¹³³ y Xe¹³⁵ en la fisión de U²³⁵, U²³⁸ y Th²³² con neutrones térmicos, partículas ***** de 25 Mev y deuterones de 14 Mev. Los valores determinados por estos autores concuerdan con los obtenidos por Katcoff y Rubinson (3 K 53) para los rendimientos fraccionarios independientes de Xe¹³³ y Xe¹³⁵ en la fisión del U²³⁵ con neutrones térmicos.

En la tabla se dan los valores determinados por Coryell y por Katcoff en estas últimas condiciones, junto con los rendimientos independientes de ambos nucleídos hallados considerando que el rendimiento total de las cadenas de número de masa 133 y 135 son 6,40 y 6,62 respectivamente.

Nucleído	Xel33	Xel35
Rendimiento frac- cionario (3 K 53)	€ 0,01	0,035
Rendimiento frac- cionario (9 C 62)		0,031
y ⁱ (3 K 53)	₹0,066	0,224
y i (9 C 62)		0,198

No se han encontrado datos de rendimientos independientes de ninguno de los cuatro isómeros (Xel33m/l33 y Xel35m/l35) en las condiciones seguidas en el presente trabajo. La observación de las relaciones de rendimientos independientes obtenidas sugiere que en el proceso de fisión a la energía moderada utilizada habría una tendencia a favorecer la producción de isómeros de menor spin. Garzón L. (6 G 63), con quien se trabajó paralelamente con el objeto de realizar una sistemática de relaciones de rendimientos independientes de isómeros nucleares, halló para los isómeros $Cd^{115m/115}$ y Nb $^{95m/95}$ los valores de relaciones de rendimientos indicados en la tabla siguiente, junto con los del presente trabajo:

Par isomérico	Relación de spines <u>Sm</u> Sg	Relación de ren- dimientos inde- pendientes ym ym yg
_{ND} 95m/95	0,11	1,37 ± 0,54
Cd ^{115m/115}	11	0,25 ± 0,04
Xel33m/133	3,66	0 , 4 <i>¢</i> ,
Xel35m/135	3,66	0,54

En los resultados obtenidos por Garzón L. se mantiene el predominio del isómero de menor spin con respecto al de mayor spin. Las relaciones de rendimientos determinadas por Pappas y Sharp (9 P 52), Bailey (19 B 5**9**), Alexander et al (9 A 57), Gunnink y Cobble (5 G 59) en condiciones análogas, también indican un mayor rendimiento del isómero de menor spin.

La discusión seguida por Pappas y Sharp en su trabajo (9 P 52) para explicar este hecho hace uso de la teoría clásica de reacciones nucleares (20 B 52). A energías moderadas (menores que 30 Mev) se considera que la reacción nuclear está precedida por la formación de un núcleo compuesto. En estas condiciones los spines del núcleo compuesto y de los isómeros producidos son los factores predominantes en la determinación de la relación de rendimientos (12 S 47; 13 S 49). Se favorecerá aquel isómero cuyo spin sea más próximo al del núcleo compuesto.En este trabajo se bombardeó Uranio natural con deuterones. Teniendo en cuenta la abundancia natural de los isótopos del Uranio (Capítulo II, Sección A-2), se podría considerar a los blancos utilizados como formados únicamente por U²³⁸. La contribución de la fisión de U²³⁴ y U²³⁵ a los resultados experimentales sería mucho menor, estimando comparables las secciones eficaces de fisión para los tres isótopos. Considerando, de acuerdo con Pappas y Sharp (9 P 52), el valor 1 para el spin del núcleo compuesto formado al bombardear U²³⁸ con deuterones, en todos los nucleídos estudiados los isómeros cuyos spines son más próximos al del núcleo compuesto son los isómeros de menor spin. Por lo tanto, los resultados experimentales concuerdan con la teoría antes mencionada.

Además, es interesante hacer notar que se comprueba un decrecimiento regular de y_m^i al aumentar $\frac{Sm}{Sg}$.

<u>NOTA</u>: En el momento de edición de esta Tesis se encontró, en una publicación reciente, un par de valores de rendimientos fraccionarios independientes de Xe^{133} y Xe^{135} en la fisión de U²³⁸ y U²³⁵ con deuterones de 13,7 Mev (6 L 62). Por considerárselos de interés se los tabula a continuación:

Nucleído	Xe ¹³³	Xe ¹³⁵	
Rendimiento fraccio- nario en U ²³⁸ (d,f)	0,038±0,009	0,21± 0,03	
Condimiento frac- cionario en U ²³⁵ (d,f)	0,23 ± 0,06	0,42±0,09	

pht room

June John Werkind

Apéndice

- 75 -

Desarrollo de las ecuaciones utilizadas en el cálculo de rendimientos independientes. El significado de los símbolos y letras utilizadas es el indicado en el Capítulo II, Sección B-1.

a) <u>Actividad de un nucleído que ocupa el primer lugar de la cadena</u>

La actividad formada al cabo de un tiempo t de irradiación es:

$$(D_A)_t = R_{y_A} (1 - e^{-\lambda_A t})$$

La actividad presente después de transcurrido un intervalo de tiempo x desde el fin de irradiación serái

$$(D_A)_x = (D_A)_t e^{-\lambda_A x}$$

- $(D_A)_{\mathbf{x}} = R y_A (1 e^{-\lambda_A t}) e^{-\lambda_A t}$ (II.B.1)
- b) <u>Actividad de un nucleído que ocupa el segundo lugar en la</u> cadena

$$A \longrightarrow B \longrightarrow \cdots$$

La actividad de B formada independientemente de la cadena, es decir, como hija directa del uranio, después de un tiempo t de irradiación es:

$$(D_{\rm B}^{\rm i})_{\rm t} = R y_{\rm B}^{\rm i} \quad (1 - e^{-\lambda_{\rm B} t})$$

La actividad de B formada por desintegración de A durante la irradiación es:

$$\left(\mathbf{D}_{\mathbf{B}}^{\mathbf{A}}\right)_{\mathbf{t}} = \mathbf{R} \mathbf{y}_{\mathbf{A}} \left[\mathbf{1} - \frac{\lambda_{\mathbf{B}}}{\lambda_{\mathbf{B}-}\lambda_{\mathbf{A}}} e^{-\lambda_{\mathbf{A}}\mathbf{t}} - \frac{\lambda_{\mathbf{A}}}{\lambda_{\mathbf{A}-}\lambda_{\mathbf{B}}} e^{-\lambda_{\mathbf{B}}\mathbf{t}}\right]$$

La actividad total de B al corte de irradiación $(D_B)_t$ está dada por la suma $(D_B^i)_t + (D_B^A)_t$:

$$(D_{B})_{t} = R y_{A} \left[1 - \frac{\lambda_{B}}{\lambda_{B} - \lambda_{A}} e^{-\lambda_{A}t} - \frac{\lambda_{A}}{\lambda_{B} - \lambda_{A}} e^{-\lambda_{B}t} \right] + R y_{B}^{i} (1 - e^{-\lambda_{B}t})$$

Después de un intervalo x desde el fin de irradiación, la actividad de B resultante de la desintegración de A es:

$$(D_{B}^{\hat{\Lambda}})_{x} = (D_{A})_{t} \frac{\lambda_{B}}{\lambda_{B-}\lambda_{A}} (e^{-\lambda_{A}x} - e^{-\lambda_{B}x})$$
siendo $(D_{A})_{t} = R y_{A} (1 - e^{-\lambda_{A}t}), \text{ resulta:}$
 $(D_{B}^{\hat{\Lambda}})_{x} = R y_{A} \frac{\lambda_{B}}{\lambda_{B-}\lambda_{A}} (1 - e^{-\lambda_{A}t}) (e^{-\lambda_{A}x} - e^{-\lambda_{B}x})$

La actividad de B que resta de $(D_B)_t$ es:

$$\left(\mathbf{D}_{\mathrm{B}}^{\mathrm{B}}\right)_{\mathrm{X}} = e^{-\lambda_{\mathrm{B}}\mathbf{x}} \left\{ \mathbf{R} \ \mathbf{y}_{\mathrm{A}} \left\{ 1 - \frac{\lambda_{\mathrm{B}}}{\lambda_{\mathrm{B}-}\lambda_{\mathrm{A}}} e^{-\lambda_{\mathrm{A}}\mathbf{t}} - \frac{\lambda_{\mathrm{A}}}{\lambda_{\mathrm{B}-}\lambda_{\mathrm{A}}} e^{-\lambda_{\mathrm{B}}\mathbf{t}} \right\} + \mathbf{R} \ \mathbf{y}_{\mathrm{B}}^{\mathbf{i}}(1 - e^{-\lambda_{\mathrm{B}}\mathbf{t}}) \right\}$$

La actividad total de B después de un tiempo x desde el fin de irradiación $(D_B)_x$ está dada por la suma: $(D_B^A)_x + (D_B^B)_x$. De las expresiones anteriores, simplificando términos análogos, se obtiene:

$$(D_{B})_{x} = R y_{A} \left(\frac{\lambda_{B}}{\lambda_{B} - \lambda_{A}} (1 - e^{-\lambda_{A}t}) e^{-\lambda_{A}t} + \frac{\lambda_{A}}{\lambda_{A} - \lambda_{B}} (1 - e^{-\lambda_{B}t}) e^{-\lambda_{B}x} \right) + R y_{B}^{i} (1 - e^{-\lambda_{B}t}) e^{-\lambda_{B}x}$$
(II.B.2)

c) <u>Actividad de un nucleído con dos precursores independientes</u> entre sí.



La actividad de C al corte de irradiación proviene de tres caminos: desintegración de A $(D_C^{A})_t$, desintegración de B $(D_C^{B})_t$ y formación independiente de C durante la irradiación $(D_C^{i})_t$, cuyas expresiones son:

$$(D_{C}^{\hat{A}})_{t} = R y_{\hat{A}} (1 - \frac{\lambda_{\hat{C}}}{\lambda_{Q-}\lambda_{A}} e^{-\lambda_{A}t} - \frac{\lambda_{\hat{A}}}{\lambda_{A-}\lambda_{C}} e^{-\lambda_{C}t})$$

$$(D_{C}^{B})_{t} = R y_{B} (1 - \frac{\lambda_{C}}{\lambda_{C-}\lambda_{B}} e^{-\lambda_{B}t} - \frac{\lambda_{B}}{\lambda_{B-}\lambda_{C}} e^{-\lambda_{C}t})$$

$$(D_{C}^{i})_{t} = R y_{C}^{i} (1 - e^{-\lambda_{C}t})$$

La actividad total de C al corte de irradiación $(D_C)_t$ está dada por la suma $(D_C^A)_t + (D_C^B)_t + (D_C^1)_t$. Al cabo de un tiempo x desde el fin de irradiación, la actividad de C formada por desintegración de A y de B será:

$$(D_{C}^{A})_{x} = R y_{A} \frac{\lambda_{C}}{\lambda_{C} - \lambda_{A}} (1 - e^{-\lambda_{A}t}) (e^{-\lambda_{A}x} - e^{-\lambda_{C}x})$$

$$(D_{C}^{B})_{x} = R y_{B} \frac{\lambda_{C}}{\lambda_{C} - \lambda_{B}} (1 - e^{-\lambda_{B}t}) (e^{-\lambda_{B}x} - e^{-\lambda_{C}x})$$

$$\lambda_{C} x = \frac{\lambda_{C}}{\lambda_{C} - \lambda_{B}} (1 - e^{-\lambda_{B}t}) (e^{-\lambda_{B}x} - e^{-\lambda_{C}x})$$

La actividad restante de $(D_C)_t$ será $(D_C)_t$ e°

La actividad total de C después de un intervalo x desde el fin de irradiación será:

$$(\mathbf{D}_{\mathbf{C}})_{\mathbf{x}} = (\mathbf{D}_{\mathbf{C}}^{\mathbf{A}})_{\mathbf{x}} + (\mathbf{D}_{\mathbf{C}}^{\mathbf{B}})_{\mathbf{x}} + \left((\mathbf{D}_{\mathbf{C}}^{\mathbf{A}})_{\mathbf{t}} + (\mathbf{D}_{\mathbf{C}}^{\mathbf{B}})_{\mathbf{t}} + (\mathbf{D}_{\mathbf{C}}^{\mathbf{t}})_{\mathbf{t}} \right) \mathbf{e}^{-\lambda_{\mathbf{C}}\mathbf{x}}$$

Reemplazando en esta ecuación las expresiones anteriores y operando, se obtiene finalmente:

$$(D_{C})_{x} = R y_{A} \left\{ \frac{\lambda_{C}}{\lambda_{C-} \lambda_{A}} (1 - e^{-\lambda_{A}t}) e^{-\lambda_{A}x} + \frac{\lambda_{A}}{\lambda_{A-} \lambda_{C}} (1 - e^{-\lambda_{C}t}) e^{-\lambda_{C}x} + R y_{B} \left\{ \frac{\lambda_{C}}{\lambda_{C-} \lambda_{B}} (1 - e^{-\lambda_{B}t}) e^{-\lambda_{B}x} + \frac{\lambda_{B}}{\lambda_{B-} \lambda_{C}} (1 - e^{-\lambda_{C}t}) e^{-\lambda_{C}x} + R y_{C}^{i} (1 - e^{-\lambda_{C}t}) e^{-\lambda_{C}x} (11 \cdot B \cdot 4) \right\}$$

d) <u>Actividad de un nucleído con dos precursores relacionados</u> genéticamente.



La actividad de C al corte de irradiación proviene de cuatro caminos: formación independiente como hija directa del Uranio $(D_C^i)_t$, desintegración de A directamente a C $(D_C^A)_t$, desintegración de la actividad de B formada independientemente $(D_C^B)_t$, y desintegración de la actividad de B proveniente de A, $(\mathbf{A}_{D_C^B})_t$, cuyas expresiones son:

 $(D_{C}^{i})_{t} = R y_{C}^{i} (1 - e^{-\lambda_{C}t})$

$$(D_{C}^{A})_{t} = R y_{A} r_{C}^{A} (1 - \frac{\lambda_{C}}{\lambda_{C} - \lambda_{A}} e^{-\lambda_{A}t} - \frac{\lambda_{A}}{\lambda_{A} - \lambda_{C}} e^{-\lambda_{C}t})$$

$$(D_{C}^{B})_{t} = R y_{B}^{i} (1 - \frac{\lambda_{C}}{\lambda_{C} - \lambda_{B}} e^{-\lambda_{B}t} - \frac{\lambda_{B}}{\lambda_{B} - \lambda_{C}} e^{-\lambda_{C}t})$$

$$(\stackrel{A}{}_{D}_{C}^{B})_{t} = R y_{A} r_{B}^{A} \left(1 - \frac{\lambda_{B}}{\lambda_{C} - \lambda_{B}} e^{-\lambda_{A}t} - \frac{\lambda_{A}}{(\lambda_{B} - \lambda_{A})(\lambda_{C} - \lambda_{A})} e^{-\lambda_{A}t} - \frac{\lambda_{A}}{(\lambda_{A} - \lambda_{B})(\lambda_{C} - \lambda_{B})} e^{-\lambda_{B}t} - \frac{\lambda_{A}}{(\lambda_{A} - \lambda_{C})(\lambda_{B} - \lambda_{C})} e^{-\lambda_{C}t} \right)$$

La actividad total de C $(D_C)_t$ será la suma

 $(\mathbb{D}_{C}^{i})_{t} + (\mathbb{D}_{C}^{A})_{t} + (\mathbb{D}_{C}^{B})_{t} + (^{A}\mathbb{D}_{C}^{B})_{t}$

La actividad de A al corte de irradiación será:

$$(D_A)_t = R y_A (1 - e^{-\lambda_A t})$$

y la de B será:

$$(D_{B})_{t} = R y_{A} r_{B}^{A} \left(1 - \frac{\lambda_{B}}{\lambda_{B} - \lambda_{A}} e^{-\lambda_{A}t} - \frac{\lambda_{A}}{\lambda_{A} - \lambda_{B}} e^{-\lambda_{B}t} \right) + R y_{B}^{i} (1 - e^{-\lambda_{B}t})$$

Después de transcurrido un intervalo de tiempo x desde el fin de irradiación, la actividad total de C estará dada por la suma de cuatro términos: (I) la actividad formada por desintegración de A directamente a C:

$$(D_{C}^{A})_{x} = (D_{A})_{t} \frac{\lambda_{C}}{\lambda_{C} - \lambda_{A}} r_{C}^{A} (e^{-\lambda_{A}x} - e^{-\lambda_{C}x})$$

II) La actividad formada por desintegración de la cantidad de B presente al fin de irradiación:

$$(D_{C}^{B})_{x} = (D_{B})_{t} \frac{\lambda_{C}}{\lambda_{C} - \lambda_{B}} (e^{-\lambda_{B}x} - e^{-\lambda_{C}x})$$

(III) La actividad formada por la desintegración de E producido a partir de A durante ese intervalo:

$$\begin{pmatrix} {}^{A} D_{C}^{B} \end{pmatrix}_{x} = (D_{A})_{t} \lambda_{B} \lambda_{C} r_{B}^{A} \left\{ \frac{e^{-\lambda_{A} x}}{(\lambda_{B}^{-} \lambda_{A})(\lambda_{C}^{-} \lambda_{A})} + \frac{e^{-\lambda_{B} x}}{(\lambda_{A}^{-} \lambda_{B})(\lambda_{C}^{-} \lambda_{B})} + \frac{e^{-\lambda_{B} x}}{(\lambda_{A}^{-} \lambda_{C})(\lambda_{B}^{-} \lambda_{C})} \right\}$$

(IV)La actividad restante de la desintegración de (D_C)_t:

$$(\mathbf{D}_{\mathbf{C}}^{\mathbf{C}})_{\mathbf{x}} = (\mathbf{D}_{\mathbf{C}})_{\mathbf{t}} \quad e^{-\boldsymbol{\lambda}_{\mathbf{C}}\mathbf{x}} = \left[(\mathbf{D}_{\mathbf{C}}^{\mathbf{i}})_{\mathbf{t}} + (\mathbf{D}_{\mathbf{C}}^{\mathbf{A}})_{\mathbf{t}} + (\mathbf{D}_{\mathbf{C}}^{\mathbf{B}})_{\mathbf{t}} + (^{\mathbf{A}}\mathbf{D}_{\mathbf{C}}^{\mathbf{B}})_{\mathbf{t}} \right] e^{-\boldsymbol{\lambda}_{\mathbf{C}}\mathbf{x}}$$

Sumando estas cuatro ecuaciones, reemplazando $(D_A)_t, (D_B)_t, (D_C)_t, (D_C)_t, (D_C)_t, (D_C)_t, y (^A D_C^B)_t$ por sus expresiones anteriores, simplificando y agrupando convenientemente términos análogos, se obtiene la actividad total de C después de transcurrido un intervalo de tiempo x desde el fin de irradiación:

$$(D_{C})_{x} = R y_{A} \left\{ \left(\frac{\lambda_{C}}{\lambda_{C}} \frac{r_{C}^{A}}{\lambda_{A}} + \frac{\lambda_{B}\lambda_{C}}{(\lambda_{B}-\lambda_{A})(\lambda_{C}-\lambda_{A})} \right) \left(1 - e^{-\lambda_{A}t} \right) e^{-\lambda_{A}x} + \frac{\lambda_{A}\lambda_{C}}{(\lambda_{A}-\lambda_{B})(\lambda_{C}-\lambda_{B})} \right\} + \frac{\lambda_{A}\lambda_{C}}{(\lambda_{A}-\lambda_{B})(\lambda_{C}-\lambda_{B})} (1 - e^{-\lambda_{B}t}) e^{-\lambda_{B}x} + \frac{\lambda_{A}\lambda_{B}}{(\lambda_{A}-\lambda_{C})(\lambda_{A}-\lambda_{C})} \left(1 - e^{-\lambda_{C}t} \right) e^{-\lambda_{C}x} + \frac{\lambda_{B}\lambda_{C}}{(\lambda_{C}-\lambda_{B})(\lambda_{C}-\lambda_{B})} + R y_{B}^{i} \left(\frac{\lambda_{C}}{\lambda_{C}-\lambda_{B}} (1 - e^{-\lambda_{B}t})e^{-\lambda_{B}x} + \frac{\lambda_{B}}{\lambda_{B}-\lambda_{C}} (1 - e^{-\lambda_{C}t})e^{-\lambda_{C}x} \right) + R y_{C}^{i} \left(1 - e^{-\lambda_{C}t} \right) e^{-\lambda_{C}x} (11 \cdot B \cdot 6)$$

- 80 -

<u>Referencias</u>

Т	A	54	Asaro F. and Perlman I., Phys. Rev. <u>93</u> , 1423 (1954)
2	A	56	Alder K., Bohr A., Huus T., Mottelson B. and Winther A., Rev of Mod. Phys, <u>28</u> , 432, (1956)
3	Α	61	Apalin V.F., Yu P. Dobrynin, Zakharova V.P., Kutikov J.E. and Mikaélian, Soviet Journal of Atomic Energy <u>8</u> , 10 (1961)
4	A	56	Almq v ist E., Atomic Energy of Canada Limited Report CRPA 642 (AECL 329) 142 (1956)
5	A	61	Argonne National Laboratory. USAEC Rep. ANL-5800
6	A	49	Aron W.A., Hoffman B.G. and Williams F.C., Range Energy Curves, USAEC, AECU - 663 (1949)
7	A	5 7	Alvager T. and Oelsnev G., Arkiv Fysik 12, 319,(1957)
8	A	60	Alvager T., Arkiv Fysik <u>15</u> , 517 (1960)
9	A	57	Alexander J.M., Sugihara T.T., Drevinsky P.J. and Troianello E.J., Phys. Rev. <u>108</u> , 1264 (1957)
l	B	39	Bohr N. and Wheeler J.A., Phys Rev. <u>56</u> , 426, (1939)
			\cdot
2	B	56	Bohr A., Datos de la Primera Conferencia Internacional sobre la Utilización de la Energía Atómica con Fines Pacíficos, Ginebra 1955, P/911, <u>2</u> (1956)
2	B	56 60	Bohr A., Datos de la Primera Conferencia Internacional sobre la Utilización de la Energía Atómica con Fines Pacíficos, Ginebra 1955, P/911, <u>2</u> (1956) Brunner W. and Paul H., Annalen der Physik (7), <u>6</u> , Nº 5/6, 267 (1960)
2 3 4	B B B	56 60 61	Bohr A., Datos de la Primera Conferencia Internacional sobre la Utilización de la Energía Atómica con Fines Pacíficos, Ginebra 1955, P/911, <u>2</u> (1956) Brunner W. and Paul H., Annalen der Physik (7), <u>6</u> , N° 5/6, 267 (1960) Brunner W. and Paul H., Annalen der Physik (7), <u>7</u> , N° 5/6, 326 (1961)
2 3 4 5	B B B B	56 60 61 61	 Bohr A., Datos de la Primera Conferencia Internacional sobre la Utilización de la Energía Atómica con Fines Pacíficos, Ginebra 1955, P/911, <u>2</u> (1956) Brunner W. and Paul H., Annalen der Physik (7), <u>6</u>, N° 5/6, 267 (1960) Brunner W. and Paul H., Annalen der Physik (7), <u>7</u>, N° 5/6, 326 (1961) Brunner W. and Paul H., Annalen der Physik (7), <u>8</u>, N° 3/4, 146 (1961)
2 3 4 5 6	B B B B B	56 60 61 36	 Bohr A., Datos de la Primera Conferencia Internacional sobre la Utilización de la Energía Atómica con Fines Pacíficos, Ginebra 1955, P/911, <u>2</u> (1956) Brunner W. and Paul H., Annalen der Physik (7), <u>6</u>, N° 5/6, 267 (1960) Brunner W. and Paul H., Annalen der Physik (7), <u>7</u>, N° 5/6, 326 (1961) Brunner W. and Paul H., Annalen der Physik (7), <u>8</u>, N° 3/4, 146 (1961) Bohr N., Nature <u>137</u>, 344 (1936)
2 3 4 5 6 7	B B B B B B B B B	56 60 61 36 52	 Bohr A., Datos de la Primera Conferencia Internacional sobre la Utilización de la Energía Atómica con Fines Pacíficos, Ginebra 1955, P/911, <u>2</u> (1956) Brunner W. and Paul H., Annalen der Physik (7), <u>6</u>, N° 5/6, 267 (1960) Brunner W. and Paul H., Annalen der Physik (7), <u>7</u>, N° 5/6, 326 (1961) Brunner W. and Faul H., Annalen der Physik (7), <u>8</u>, N° 3/4, 146 (1961) Bohr N., Nature <u>137</u>, 344 (1936) Bohr A., Dan. Mat.Fys. Medd., <u>26</u> N° 14, (1952)

- 9 B 50 Brunton D.C. and Hanna G.C., Can.J.of Research, A 28(1950)
- 10 B 56 Bigham C.B., Atomic Energy of Canada Limited Report CRP-642 A (AECL-329) 111 (1956)

- 81 -

- 11 B 59 Bosch H. E. and Abecasis S.M., Publicaciones de la C.N.E.A. Inf. Nº 4 (Química Nuclear) (1959)
- 12 B 55 Bell P.R., Davis R.C. and Lazar N. H., ORNL Rep.1975, 72 (1955)
- 13 B 52 Burhop E.M.S., The Auger Effect, Cambridge University Press (1952)
- 14 B 55 Bunker M.E. and Starner J.W., Phys. Rev.<u>97</u>, 1272; <u>99</u>, 1906 (1955)
- 15 B 52 Bergstrom I., Arkiv Fysik 5, 191 (1952)
- 16 B 53 Brown F. and Yaffe L., Can. J. Chem. <u>31</u>, 242 (1953)
- 17 B 56 Bunker M.E., Duffield R.B., Mize J.P. and Starner J.W., Phys. Rev. <u>103</u>, 1417 (1956)
- 18 B 54 Bergstrom I., Thulin S., Wapstra A.H. and Astrom, Arkiv Fysik, 7, 255 (1954)
- 19 B 50 Bailey S.M., UCRL-8710 (1950)
- 20 B 52 Blatt J.M. and Weisskopf V.F., Theoretical Nuclear Physics. John Wiley and Sons, Inc. N.Y. (1952)
- 1 C 58 Cameron A.G.W. Proceedings of the Second United Nations International Conference on the Peaceful Uses of the Atomic Energy, Ginebra, P/192,15 (1958)
- 2 C 59 Chleck D.J. and Ziegler C.A., Nucleonics, <u>17</u>, N° 9, 130 (1959)
- 3 C 61 Choppin G., Experimental Nuclear Chemistry, Prentice Hall Inc. N.J. (1961) Cap. 7.
- 4 C 53 Cork J.M., Le Blanc J.M. Martin D.V., Nester W.H. and Brice M.K. Phys. Rev. <u>90</u>, 579 (1953)
- 5 C 61 Coryell C.D., Kaplan M. and Fink R., Can. J. of Chem. 39, Nº 3, 646 (1961)

- 6 C 57 Cameron A.G.W., Can. J.of Phys. <u>35</u>, 1021 (1957); AECL-433 (1957)
- 7 C 51 Coryell C.D. and Sugarman N., Radiochemical Studies of the Fission Products, Mc Graw - Hill (1951)
- 8 C 61 Chart of the Nuclides, 2nd ed., Institute of Radiochemistry, Nuclear Research Centre Karlsruhe, Fed.Rep. of Germany (1961)
- 9 C 62 Coryell C.D., Storms H.A. and Fink R.D. (M.I.T.) Transactions of the American Nuclear Soc., <u>5</u>, N° 1, 23 (1962)
- 1 D 60 de Vries C., Bleeker E.J. and Salomons -Grobben N., Nucl. Phys. <u>18</u>, 454 (1960)
- 2 D 55 Dabkin D.M., Orlov V.I., Rusinov L.I., Izvest.Akad. Nauk.SSSR, Ser. Fiz.<u>19</u>, 324 (1955); Columbia Technical Translation P.294 (1955)
- 3 D 50 Dillard C.R., Adams R.M., Finston H. and Turkevich A., NNES 9, 624 (1950)
- 1 E 58 Edvarson K., Siegbahn K. and Wapstra A.H., Nucl. Phys. 9, 528 (1958)
- 2 E 61 Erman P. and Sujkowski Z., Arkiv för Fysik, Bd 20, nr 15, p.237 (1961)
- E 60 Eichler E., Chase J.W., Johnson N.R. and O' Kelley G.D. Bull Southeastern Section, Am. Pys. Soc. J. 5 (1960)
- 1 F 46 Frenkel J., J. Phys. (URSS) 10, 533 (1946)
- 2 F 53 Fong P., Phys. Rev. <u>89</u>, 434 (1953)
- 3 F 53 Ford K. W., Phys. Rev. <u>90</u>, 29 (1953)
- 4 F 56 Fong P., Phys. Rev. <u>102</u>, 434 (1956)
- 5 F 47 Frankel S. and Metropolis N., Phys. Rev. <u>72</u>, 914 (1947)
- 6 F 49 Fermi E., Nucl. Physics Notes (Univ.of Chicago Press) 6 (1949)

- 82 -

- 7 F 58 Fraser and Milton J.C.D., Proceedings of the Second International Conference on the Peaceful Uses of Atomic Energy, Ginebra, <u>15</u>, P/216 (1958)
- 8 F 54 Fairhall A.W., Halpern I. and Winhold E.J., Phys. Rev. <u>94</u>, 733 (1954)
- 9 F 34 Fermi E., Nature 133, 898 (1934)
- 10 F 57 Franz K. y Pinasco S., Publicaciones de la C/N.E.A., Serie Física, <u>1</u>, Nº 13 (1957)
- 11 F 56 Fairhall A.W., Phys. Rev. <u>102</u>, 1335 (1956)
- 12 F 61 Farrar H., Dasgupta A.K. and Tomlinson R.H., Can. J. of Chemistry <u>39</u>, 681 (1961)
- 1 G 56 Gluckauf Ξ. and Kitt G.P., Proc. Roy. Soc. (London) <u>Λ 234</u> 557 (1956)
- 2 G 46 Gluckauf E.; Proc. Roy. Soc. (London) <u>A 185</u>, 98 (1946)
- 3 G 49 Glendenin L.E., Coryell C.D. and Edwards R.R., Phys. Rev. <u>75</u>, 337 (1949)
- 4 G 40 Glasoe G.N. and Steigman J., Phys. Rev. <u>58</u>, 1 (1940)
- 5 G 59 Gunnink R. and Cobble J.W., Phys. Rev. 115, 1247(1959)
- 6 G 63 Garzón L., comunicación personal
- 1 H 53 Hill D.L. y Wheeler J.A., Phys.Rev. 89, 1102 (1953)
- 2 H 58 Hill D.L., Proceedings of the Second United Nations International Conference of the Peaceful Uses of Atomic Energy, Ginebra, P/660, <u>15</u>, (1958)
- 3 H 55 Hill R.D., Phys Rev. <u>98</u>, 1272 (1955)
- 4 H 40 Henderson M.C., Phys. Rev. <u>58</u>. 774 (1940)
- 5 H 50 Hill D.L., Phys. Rev. 79, 197 (1950)
- 6 H 39 Hahn O. and Strassman, Naturwiss 27,11 (1939)
- 7 H 58 Hoffman T.A., Proceedings of the Second United Nations International Conference of the Peaceful Uses of Atomic Energy, Ginebra, P/2031, <u>15</u> (1958)

8	Н	62	Harshaw Scintillation Phosfors, 2nd ed., The Harshaw Chemical Co Cleveland, Ohio (1962)
9	H	57	Heath R.L., A. B. C. Rep. I D O -16.408 (1957)
10	Н	61	Heath R.L. and Alley N.P., Nuclear Data Sheet (1961)
l	J	49	Jungerman J. and Wright S.C., Phys. Rev. <u>76</u> , 1112 (1949)
2	J	55	Jodra L.G. and Sugarman N., Phys. Rev. <u>99</u> , 1470 (1955)
l	K	62	Katcoff S., Nucleonics Data Sheets Nº 24, 38 (1962)
2	K	55	Kruger P. and Sugarman N., Phys. Re. <u>99</u> , 1459 (1955)
3	K	53	Katcoff S. and Rubinson W. Phys. Rev. <u>91</u> , 1458 (1953)
1	L	58	Leachman R.B., Proceedings of the Second United Nations International Conference of the Peaceful Uses of Atomic Energy, Ginebra, P/2467, <u>15</u> (1958)
2	L	56	Lounsbury M., Can. J. Chem. <u>34</u> , 259 (1956)
3	ľ	54	Leamer R.D. and Hinman G. W., Phys. Rev. <u>96</u> , 1607 (1954)
4	L	56	Lazar N.H., Eichler E. and O'Kelley G.D., Phys.Rev. <u>101</u> , 727 (1956)
5	ľ	57	Levy H.B., U C R L-4588 y U C R L-4713; Phys. Rev. <u>106</u> , 1265 (1957); A E C L-339 (1956)
6	L	62	Lab.for Nuclear Science (M.I.T.); N Y O-2669 (1962)
1	15	48	Mayer M.G., Phys. Rev. <u>74</u> , 235 (1948)
2	Μ	39	Meitner L. and Frisch O.R., Nature <u>143</u> , 239 (1939)
3	M	50	Metropolis N. y Reitweisner G., U.S.A.E.C. Rep. N P- 1980 (1950)
4	Μ	59	Mc Ilhenny R.C. and Mc Carthy J., T I D - 7591, 40 (1959)
5	Μ	52	Muller D.S., Hoyt H.C., Klein D.J. and Du Mond J.W. Phys. Rev. <u>88</u> , 775 (1952)
6	Μ	52	Metzer P.R. and Amacher H.C. Phys. Rev. <u>88</u> 147 (1952)
- 1 N 56 Newton T.D., Chalk River Report 642 A (AECL-329) 307 (1956)
- 2 N 55 Newton J.O., Progr. in Nuclear Phys.4, 234 (1955)
- 3 N 56 Nassiff S.J. y Seelmann-Eggebert W., Pub. de la C.N.E.A., Serie Química, <u>1</u>, Nº 6 (1956)
- 4 N 58 Nijgh G.J., Wapstra A.H., Ornstein L.T., Salomons-Grobben N., Huizenga J.R. and Almen O., Nucl. Phys. 9, 528 (1958)
- 5 N 61 Nuclear Data Sheets, National Research Council, Washington, D.C., U.S.A. (1961)
- 1 0 56 O'Friel Z. and Weber A.W., Phys. Rev. 101,1076 (1956)
- 2 0 57 Ofer S. and Wienor R., Phys. Rev., <u>107</u>, 1639 (1957)
- 3 0 50 Overstreet R. and Jacobson L., N.N.E.S. 9, 621 (1950)
- 1 P 50 Powell H.M., J. Chem. Soc. London, p298, 300, 468 (1950)
- 2 P 54 Powell H.M., J. Chem. Soc. London, parte 2, 2658 (1954)
- 3 P 30 Peters K. and Weil K., Z. Physik Chem., <u>148 (A)</u> 1 (1930)
- 4 P 49 Peacock C.L. and Mitchell A.C.G., Phys. Rev. <u>75</u>, 1272 (1949)
- 5 P 59 Peelle R.W. and Love T.A., O R N L-2790 (1959)
- 6 P 47 Present R.D., Phys. Rev. <u>72</u>, 7 (1947)
- 7 P 53 Pappas A.C., A R C U 2806 (1953)
- 8 P 59 Perlow G.J. and Stehney A.F., Phys., Rev. <u>113</u>, 1269 (1959)
- 9 P 52 Pappas A.C. and Sharp R.A., Inorg. and Nucl.Chem., <u>10</u>, 1732 (1952)

- 1 R 54 Rich M. and Madey R., Range Energy Tables, U.S.A.E.C. UCRL- 2301 (1954)
- 2 R 30 Rutheford E., Chadwie J. and Ellis C.D. Radiations from Radioactive Substances, University Press, Cambridge (1930), Cap. 1.
- 1 S 51 Swiatecki W.J., Phis. Rev. 83, 178 (1951)
- 2 S 55 Swiatecki W.J., Phis. Rev. 100,937 (1955)
- 3 S 57 Stein W.E. Phis. Rev. <u>108</u>, 94 (1957)
- 4 S 59 Steinberg M. and Manowitz B., Ind. Eng. Chem. <u>51</u>, 47 (1959)
- 5 S 53 Segre E., Experimental Nuclear Physics, John Willey & Sons, Inc. N.Y., <u>1</u>, 242 (1953)
- 6 S 55 Siegbahn K., Beta and Gamma Ray Spectroscopy, Interscience Publishers Inc., N.Y., (1955)
- 7 S 59 Singh P.P., Dosso H. W. and Griffiths, Can J. Phys.<u>37</u>, 1055 (1959)
- 8 S 57 Sugihara T.T. Drevinsky P.J., Troianello D.J. and Alexander J.M. Phys. Rev. 108, 1264, (1957)
- 9 S 55 Steinberg E. and Glendenin L., First International Conference on the Peaceful Uses os Atomic Energy, P/614, Ginebra (1955)
- 10 S 49 Sugarman N, Journal Chem. Phys., <u>17</u>, 11 (1949)
- 11 S 55 Sugarman N. and Richter H., J. Chem. Phys.,<u>18</u>, 174, (1950)
- 12 S 47 Seren, Friendlander and Turkel, Phys. Rev. <u>72</u>, 888 (1947)
- 13 S 49 Segré E. and Helmolz A.C., Rev. Mod. Phys., <u>21</u>, 217 (1949)
 - 1 T 55 Thulin S. Arkiv Fysik, 9, 137 (1955)

- 86 -

- 1 V 58 Vegors S.H., Marsden L.L. and Heath R.L., AEC Report-IDO--16.370 (1958)
- 1 W 47 Weisskopff V.F., MDDC-1175 (1947)
- 2 W 53 Wilets L., Hill D.L. and Ford K.W. Phys. Rev., <u>91</u>, 1488 (1953)
- 3 W 55 Wheeler J.A., in Niels Bohr and Development of Physic, 163, Mc Graw-Hill Book Co., Inc., N.Y. (1955)
- 4 W 52 Winhold E.J., Demos P.T. and Halpern I., Phys Rev. <u>87</u>, 1139 (1952)
- 5 W 47 Wilson R.R., Phys. Rev. 72, 189 (1947)
- 6 W 61 Wilson P.R., Bartlett A.A., Kraushaar J.J., Mc Cullen J.D. and Ristinen H.A., Nucl. Sci. and Eng. <u>11</u>, 74 (1961)
- 7 W 59 Wapstra A.H., Nijgh G.J. and Van Lieshout R., Nuclear Spectroscopy Tables, North-Holland Publishing Company-Amsterdam, (1959)
- 8 W 45 Wigner E.P. and Way K., Rep. CC-3032, Jun 13 (1945)
- 9 W 58 Wahl A.C., J. Inorg. and Nucl. Cheml, 6, 236 (1958)
- 10 W 62 Wahl A.G., Ferguson R.I. Nethaway D.R. Troutner D.E. and Wolfsberg K., Phys. Rev. <u>126</u>, 1112 (1962)
- 11 W 55 Wahl A.C., Phys. Rev. <u>99</u>, 730 (1955)
- 12 W 60 Wille R.G., and Fink R.W., Phis. Rev. 118, 242 (1960)
- 13 W 56 Wolfrang, Baker, Caretto, Cuming, Friedlander and Hudis, Phis. Rev. 103, 394 (1956)
 - 1 Y 58 Yoshizawa Y., Nucl. Phys. 5, 122 (1958)

.

Aclaración

El Capítulo I de la presente Tesis coincide con el homónimo de la Tesis presentada por la Licenciada Oro Lucy Garzón, debido a que ambos trabajos se realizaron paralelamente sobre temas análogos.

Fe de errata

En las páginas 70 y 73 donde dice 0.50 y 0.40 debe

leerse 0.5 y 0.4.-



١

RENDIMIENTO DE PARES ISOMERICOS EN LA FISION DE URANIO NATURAL CON DEUTERONES

ELMA ANGELA ANTONIETA TENREYRO

Apéndice de curvas experimentales de la Tesis presentada para optar al título de Doctor en Química

IN-1

-- -- --

UNIVERSIDAD DE BUENOS AIRES Facultad de Ciencias Exactas y Naturales.

APENDICE DE CURVAS EXPERIMENTALES

El presente apéndice incluye:

- 1º. Un espectro gamma de cada una de las fuentes de Xe obtenidas a partir de oroduc tos de fisión. Los mismos fueron medidos pocos minutos después del corte de ca dena (19 min. para una experiencia y 16 min. para la otra). En ambos espectros están identificados todos los picos correspondientes a los nucleidos presentes. (Ver Cap. II Sec. C4; p. 39). -
- 2°. Las curvas de desintegración correspondiente al decaimiento de los fotopicos estudiados en la determinación de las velocidades de desintegración de los nucleidos implicados. (Ver Cap. III - Sec. B p. 59). -

Los puntos experimentales representan las áreas de los fotopicos correspondientes expresados en cuentas por minutos. Dichas áreas fueron obtenidas por integración gráfica empleando un planímetro. El error de estas áreas está dado por el error estadístico de las mediciones de velocidades de contaje y por el error provenien te de la integración.

En las curvas correspondientes a períodos de semidesintegración cor tos las velocidades de contaje fueron suficientemente altas como para que el error esta dístico resultara comprendido entre 0, 3% y 1, 6% para tiempos de medición desde 1 min. hasta 20 min.

.../...

. . . 2. . .

En las curvas correspondientes a períodos de semidesintegración largos (deacimiento del fotopico de 30 Kev.) las velocidades de contaje eran muy bajas, y el error estadístico oscilaba entre 6% y 16%.

En el cálculo de las velocidades de desintegración, a los errores estadísticos y de integración mencionados se les suman los errores correspondientes a todos los factores implicados: eficiencias de contaje, coeficientes de conversión, etc.

No fue posible la determinación precisa de los errores de todos aquellos factores, lo que hubiera permitido aplicar el método de propagación de errores para aco tar los valores finales, de manera que colo se les estimó aproximadamente,

De todos los términos implicados en el cálculo final de las relaciones de rendimientos independientes, los que determinan el orden de magnitud del error son fundamentalmente las velocidades de desintegración. Se estima (aproximadamente) en 30% el error final de las relaciones de rendimientos insdependientes calculados.

Teniendo en cuenta este error estimado, los valores de relaciones de ren dimientos para cadena aproximada (par 135m/135) pueden considerarse una cota superior del valor para dadena completa, dado que el valor obtenido en la experiencia II estaría acotado entre 0,20 y 0,40 mientras que el valor para cadena completa estaría acotado entre 0,3 y 0,6.

.....

...3...

En un intento de lograr una serie de valores de relaciones de rendimientos para cadenas aproximadas, se realizaron varias experiencias en cada una de las cua les era diferente el intervalo transcurrido desde el corte de irradiación hasta el corte de cadena. Una serie de valores de este tipo permitiría obtener el valor correspondiente a cadena completa por extrapolación a intervalo de corte cero.

Inconvenientes de trabajo (interrupciones en las irradiaciones, bajas intensidades del haz de deuterones, malos rendimientos de separación, fallas en los equipos de medición) determinaron que solamente dos de las experiencias realizadas pudieran llevarse a término. Un solo par de valores no autoriza a una extrapolación como la mencionada, y el orden de magnitud de los errores no permite aventurar ningún valor para intervalo de corte nulo.



















