

Tesis de Posgrado

Rendimiento de pares isoméricos en la fisión de uranio natural con deuterones (Nb 95m/95 y Cd 115m/115)

Garzón, Oro Lucy

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:

Garzón, Oro Lucy. (1963). Rendimiento de pares isoméricos en la fisión de uranio natural con deuterones (Nb 95m/95 y Cd 115m/115). Facultad de Ciencias Exactas y Naturales. Universidad de Buenos Aires. http://digital.bl.fcen.uba.ar/Download/Tesis/Tesis_1212_Garzon.pdf

Cita tipo Chicago:

Garzón, Oro Lucy. "Rendimiento de pares isoméricos en la fisión de uranio natural con deuterones (Nb 95m/95 y Cd 115m/115)". Tesis de Doctor. Facultad de Ciencias Exactas y Naturales. Universidad de Buenos Aires. 1963.

http://digital.bl.fcen.uba.ar/Download/Tesis/Tesis_1212_Garzon.pdf

EXACTAS UBA

Facultad de Ciencias Exactas y Naturales



UBA

Universidad de Buenos Aires

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

($\text{Nb}^{95\text{m}/95}$ y $\text{Cd}^{115\text{m}/115}$)

TESIS: 1212

Oro Lucy Garzón

Tesis presentada para optar al

Título de Doctor en Química

AÑO 1963

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

(Nb^{95m/95} y Cd^{115m/115})

R. de Tesis: 1222

Oro Lucy Garzón

Resumen de la Tesis presentada para optar al

Título de Doctor en Química

AÑO 1963

En este trabajo el estudio radioquímico experimental sobre fisión fue realizado determinando los rendimientos independientes del par $\text{Nb}^{95\text{m}/95}$ y $\text{Cd}^{115\text{m}/115}$.

Como existen teorías que relacionan el spin (momento angular intrínseco) del núcleo compuesto con el de los productos formados, pareció de interés intentar una sistemática de relaciones de rendimientos independientes de isómeros nucleares (nucleídos de igual número de masa, número de carga y diferente spin) producidos en fisión a energías moderadas.

El plan de trabajo seguido ha sido el siguiente:

- a) Preparación de los blancos a irradiar.
- b) Selección y puesta a punto de los métodos químicos clásicos utilizados para la separación de los nucleídos estudiados de los productos de fisión.
- c) Irradiaciones de prueba para calcular el tiempo adecuado de las mismas, asegurar la pureza radioquímica y estudiar la forma adecuada de medición de la velocidad de contaje de los radioelementos separados.
- d) Estudio de las ecuaciones matemáticas a utilizar para calcular la velocidad de desintegración, análisis de las curvas de desintegración y rendimientos independientes de los nucleídos mencionados.
- e) Medición de los preparados radioactivos y determinación de su velocidad de desintegración.
- f) Cálculos finales para la obtención de los rendimientos independientes.
- g) Análisis y conclusiones.

En el Capítulo I se da brevemente una introducción del proceso de fisión y una idea general sobre el estado actual de las teorías que tratan de explicar este fenómeno.

En el Capítulo II se describen los métodos experimentales, incluyendo: técnicas de irradiación, ecuaciones utilizadas para calcular los rendimientos de los elementos producidos en fisión técnicas de precipitación, descontaminación, etc., montaje de las fuentes radioquímicas; control del método de separación y breve descripción de los métodos químicos utilizados para la preparación

y valorización de los portadores; métodos químicos especiales para la separación de cadmio y niobio de los productos de fisión; descripción del contador Geiger Müller y su equipo auxiliar utilizado para la determinación de la velocidad de contaje; factores de medición utilizados y ecuaciones implicadas en el análisis de las curvas de desintegración.

En el Capítulo III se incluyen los datos de desintegración de $Cd^{115m/115}$ y $Nb^{95m/95}$; el tratamiento de los datos obtenidos experimentalmente para el cálculo de los rendimientos independientes y un comentario sobre los resultados obtenidos.

La relación de rendimientos hallada para el $Cd^{115m/115}$ representa la relación entre el rendimiento independiente del Cd^{115m} y el rendimiento acumulativo del Cd^{115} . Este último es el rendimiento de un producto de larga vida al final de la cadena parcial de productos de fisión Pd^{115} , Ag^{115m} ; de manera que la actividad observada de Cd^{115} proviene fundamentalmente de sus antecesores, lo cual está apoyado por el hecho de que en varios trabajos, se ha encontrado que la distribución de carga primaria a la energía moderada utilizada, favorece los precursores beta inestables más alejados de la estabilidad. Con los datos experimentales correspondientes a dos irradiaciones finales se halló el valor $0,25 \pm 0,06$ (rendimiento aproximado).

Para el par $Nb^{95m/95}$, con los datos experimentales obtenidos de cuatro irradiaciones finales se calculó para la relación de rendimientos independientes el valor $1,37 \pm 0,54$. Considerando la cadena aproximada $Nb^{95m} \rightarrow Nb^{95}$ se obtuvo un conjunto de valores e los que, tal como era de esperar, se observa una disminución regular de las relaciones de rendimientos (aproximados) cuando decrecen los tiempos de corte de cadena (intervalo transcurrido desde el fin de irradiación hasta la separación del niobio del circonio).

En resumen, los resultados obtenidos para los dos pares estudiados concuerdan con una teoría que supone que el proceso de fisión a energías moderadas favorece principalmente la formación del producto de bajo spin.

R. M. ...

... [Signature]

<u>Capítulo I</u>	El proceso de fisión.....	1
	1.-Descripción del proceso de fisión.....	1
	a) Secciones eficaces y umbrales de fisión.....	2
	b) Distribución de masas de los fragmentos de fisión.....	2
	c) Distribución de energías.....	5
	d) Distribución de carga.....	5
	e) Distribución angular.....	6
	f) Emisión de neutrones y radiación gamma.....	7
	2.- Modelos nucleares.....	9
	a) Modelo de capas.....	9
	b) Modelo de la gota.....	10
	c) Modelo estadístico.....	11
	d) Modelo colectivo unificado.....	11
	3.- Teorías de fisión.....	12
	4.- Introducción y finalidad del presente trabajo..	26
 <u>Capítulo II</u>	 Métodos experimentales.....	 27
	A.-Técnicas de irradiación.....	27
	1.-Energía del haz de deuterones.....	27
	2.-Blancos.....	27
	3.-Irradiaciones.....	28
	B.-Ecuaciones utilizadas para calcular los rendi- mientos en fisión.....	29
	1.-Rendimiento independiente de un nucleído miembro inicial de la cadena.....	29

2.-Rendimiento independiente de un nucleído 2º miembro de la cadena.....	30
3.-Rendimiento independiente de un nucleído cuyo antecesor decae por dos caminos (desintegra- ción ramificada).....	30
4.-Rendimiento independiente de un nucleído for- mado por dos precursores relacionados genéti- camente.....	31
C.-Radioquímica de los elementos producidos en fisión.....	34
1.-Técnicas de precipitación, descontaminación, filtración y secado.....	35
2.-Extracción con solventes.....	36
3.-Montaje de la fuente radioactiva.....	36
4.-Control del método de separación.....	37
5.-Preparación y valoración de portadores.....	37
a) Preparación	
Niobio.....	37
Cadmio.....	37
b) Valoración	
Niobio.....	37
Cadmio.....	38
6.-Rendimientos químicos.....	38
a) Niobio.....	38
b) Cadmio.....	38
D.- Métodos especiales para la separación de los productos de fisión.....	40
1.-Separación del Niobio.....	40
a) Generalidades.....	40
b) Procedimiento.....	42

2.-Separación del Cadmio	43
a) Generalidades.....	43
b) Procedimiento.....	44
E.- Equipos para medición.....	46
1.- Descripción	46
2.- Control.....	47
F.- Determinación de las velocidades de desinte- gración	49
1.-Pasaje de velocidad de contaje a velocidad de desintegración	49
a) Emisión beta pura	49
b) Emisión beta acompañada de radiación gamma	49
c) Emisión de beta acompañada de radiación gam- ma y electrones de conversión	50
d) Transición isomérica pura	51
2.- Factores de corrección para partículas beta y electrones de conversión	52
a) Factor ventana	53
b) Factor de dispersión en el aire	53
c) Factor de retrodispersión	53
d) Factor de dispersión en la caja soporte	54
e) Factor de dispersión en el material que cubre la fuente radioactiva	54
G.- Análisis de curvas de desintegración	55
1.- Análisis de una curva de desintegración ha- biendo relación genética	55
2.- Análisis de una curva de desintegración ha- biendo equilibrio radioactivo en presencia de un nucleído independiente	56

<u>Capítulo III</u> Resultados experimentales	58
A.- Datos de desintegración de los nucleídos investigados	58
1.- Cd ^{115m} /115	58
2.- Nb ^{95m} /95	58
B.- Determinación de las velocidades de desinte- gración	60
1.- Cd ^{115m} /115	60
2.- Nb ^{95m} /95	60
3.- Factores de conversión de velocidad de conta- je a velocidad de desintegración	61
C.- Relación de rendimientos independientes	61
1.- Cd ^{115m} /115	61
a) Cadena completa	61
b) Cadena aproximada	62
c) Resultados experimentales	63
2.- Nb ^{95m} /95	64
a) Cadena completa	64
b) Cadena aproximada	65
c) Resultados experimentales	66
D.- Análisis y Conclusiones	68

C A P I T U L O I

El proceso de fisión

En 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 fisión nuclear 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 de algunos 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 fisión binaria. 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 α , 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 β^- , lo que permite su identificación. Entre ellos se presenta con frecuencia el fenómeno de isomerismo nuclear. Los isómeros nucleares 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 γ y de neutrones, algunos de los cuales parecen estar directamente asociados con él y otros ligados a las subsiguientes transformaciones β^- 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 umbral de fisión 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 da una medida cuantitativa de la probabilidad de una dada reacción nuclear) la que conduce a la determinación del umbral. Por 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 fisioan contienen exceso de neutrones con respecto a protones, los fragmentos de fisión inicia-

les son inestables y desintegran por una serie de emisiones β^- , (donde el A permanece constante); cada serie de nucleídos que comienza con un fragmento primario se denomina cadena de fisión. Por lo tanto para encontrar el rendimiento de un dado número de masa se mide la abundancia de un nucleído de período de semidesintegración 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 U^{235} 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 aproximadamente simétricas con respecto al valor $\frac{A+1-\nu}{2}$, siendo A el número de masa del núcleo fisionante y ν el número de neutrones emitidos acompañando el proceso. Los picos que representan los productos pesados están casi exactamente superpuestos, mientras que los picos de los productos livianos están algo separados. La proporción en que los nucleídos se dividen en fragmentos 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

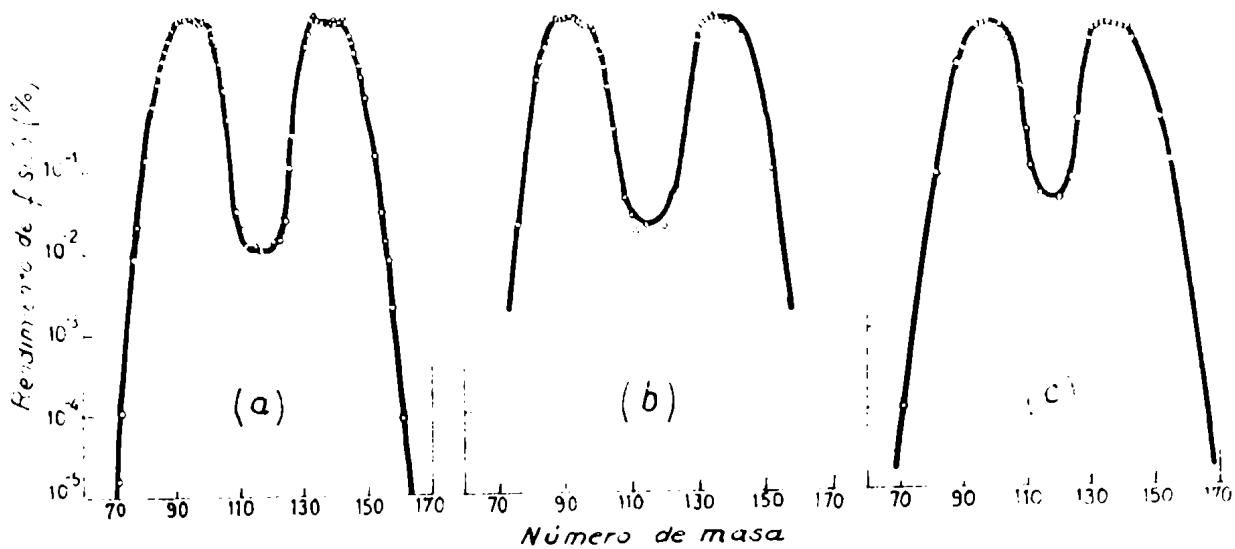


Fig. I.1 - Curvas de distribución de masas de los fragmentos producidas en la fisión de U^{235} (a) U^{233} (b) y Pu^{239} (c) con neutrones térmicos (9S55)

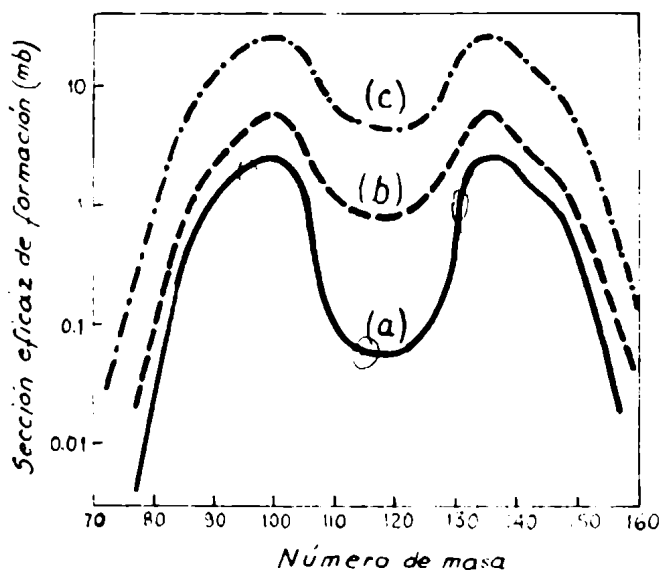


Fig. I.2 - Distribuciones de masas en la fisión de uranio natural inducida con deuterones de 5,2 Mev (a) 9,9 Mev (b) y 13,6 Mev (c) (8S57)

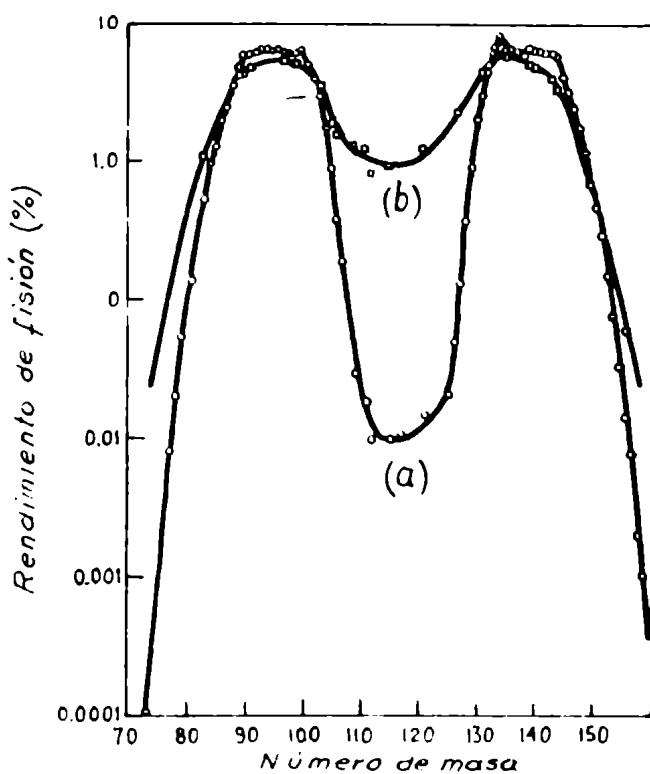


Fig. I.3 - Distribución de masas en la fisión del U^{235} con neutrones térmicos y con neutrones de 14 Mev (1Kv2)

que le son propias. Jungerman y Wright (1 J 49) estudiaron la fisión de U^{238} , U^{235} , Th^{232} y B^{209} , inducida con neutrones de 90 Mev 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 halla lleno, 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 β son todas cortas y se forman muchos isótopos estables como productos primarios. Además los fragmentos livianos tienden a emitir β^+ mientras que los más pesados pueden ser deficientes en neutrones y desintegrar por emisión β^+ o por captura electrónica. La figura I.3 permite comparar las curvas de distribución de masas en la fisión de U^{235} inducida con neutrones térmicos y con neutrones de 14 Mev.

También se observa fisión principalmente simétrica a energías más bajas en el Bi^{209} 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 Ra^{226} con p de 11 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 estructura fina y consisten en un pequeño pico bien definido, superpuesto al pico pesado, para $A \approx 134$, 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 U^{235} con neutrones térmicos.

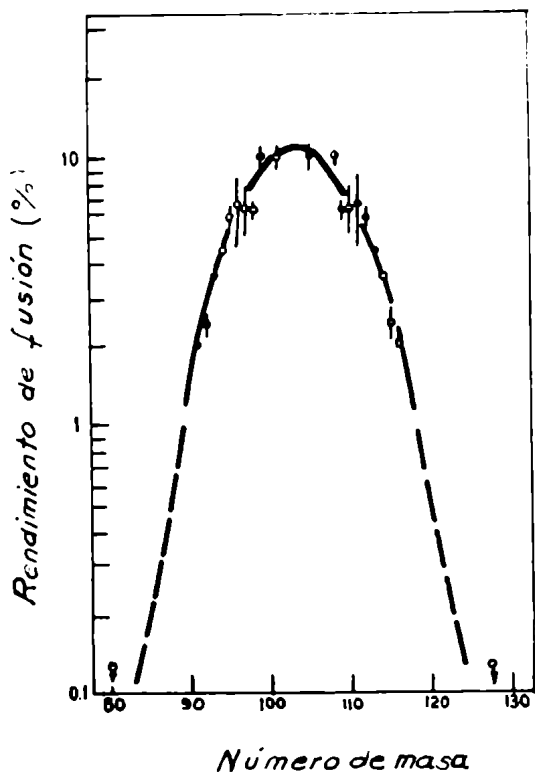


Fig. I.4 - Distribución de masas en la fisión del Bi^{209} con deuterones de 22 Mev (11F56)

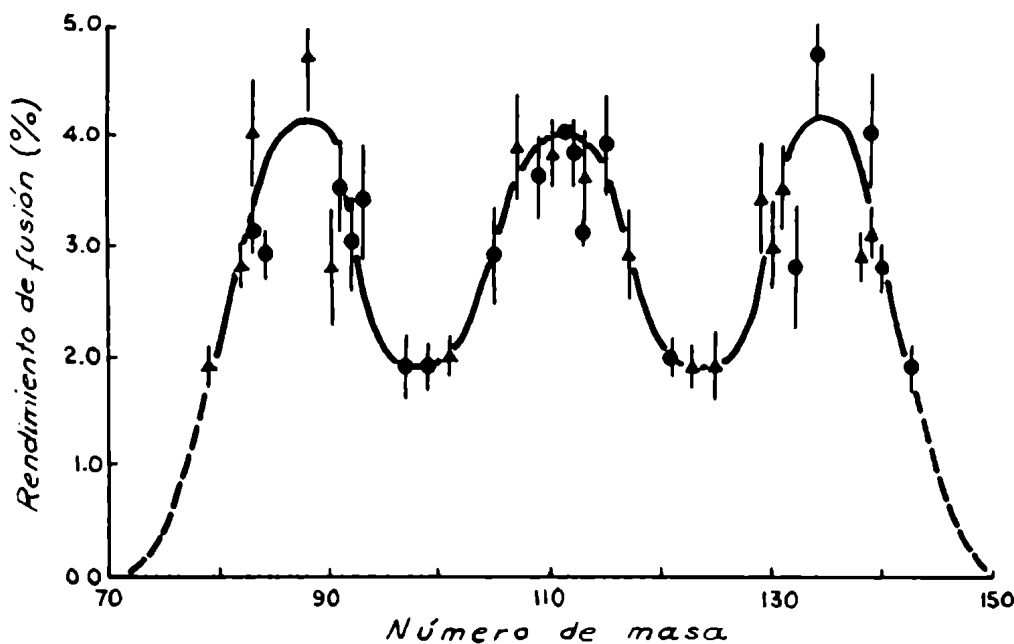


Fig. I.5 - Curvas de distribución de masas en la fisión del Ra^{226} inducida por protones de 11 Mev (1L58)

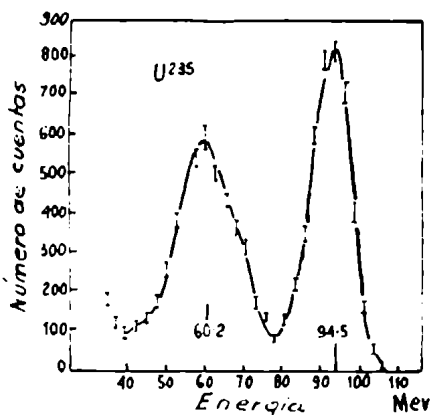


Fig. I.6 - Curva de distribución de energías cinéticas de los fragmentos producidos en la fisión del U^{235} con neutrones (10B50)

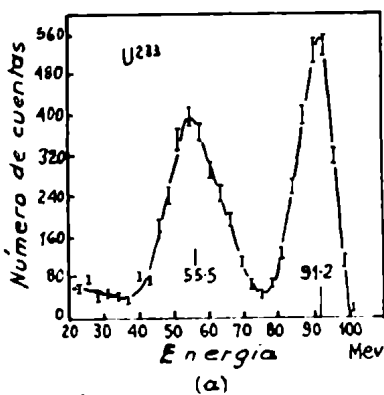
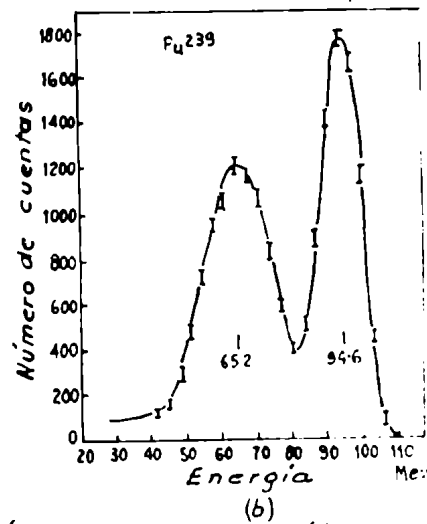


Fig. I.7 - Distribución de energías cinéticas de los fragmentos producidos en la fisión del U^{238} (a) y Pu^{239} (b) inducida con neutrones lentos (9B50)



c) Distribución 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 ± 8 Mev según resultados de mediciones calorimétricas (4 H 40). Un fragmento pesado de energía cinética menor que la energía media tiende a ser emitido junto con un fragmento liviano de energía cinética también menor 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 $Z^2/A^{1/3}$ (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 rendimientos fraccionarios de cadena en función del desplazamiento de carga. El rendimiento fraccionario de cadena para un nucleído es la relación entre su rendimiento independiente y el rendimiento de todos sus isóbaros. El 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 $Z = Z_p$.

e) Distribución angular

Se observó por primera vez anisotropía angular en los fragmentos de fisión con respecto al haz incidente en la fisión inducida 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 α 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 Z^2/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 pesados 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

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 β^- 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 β^- precedente. Como ejemplo se puede citar el Br^{87} que decae a Kr^{87} el que al ser formado en un nivel de energía muy alto emite un neutrón para producir el núcleo estable de Kr^{86} .

La energía de los neutrones inmediatos varía desde 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:

$N(E) = e^{-E} \sinh \sqrt{2E}$ siendo $N(E)$ el número de neutrones de energía E .

El número medio de neutrones emitidos en la fisión del U^{235} con neutrones térmicos (ν) es de $2,47 \pm 0,03$ (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 γ 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 $5,2 \pm 0,5$ Mev por fisión para la energía total de los rayos gamma inmediatos y que aproximadamente son emitidos seis rayos γ por 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.

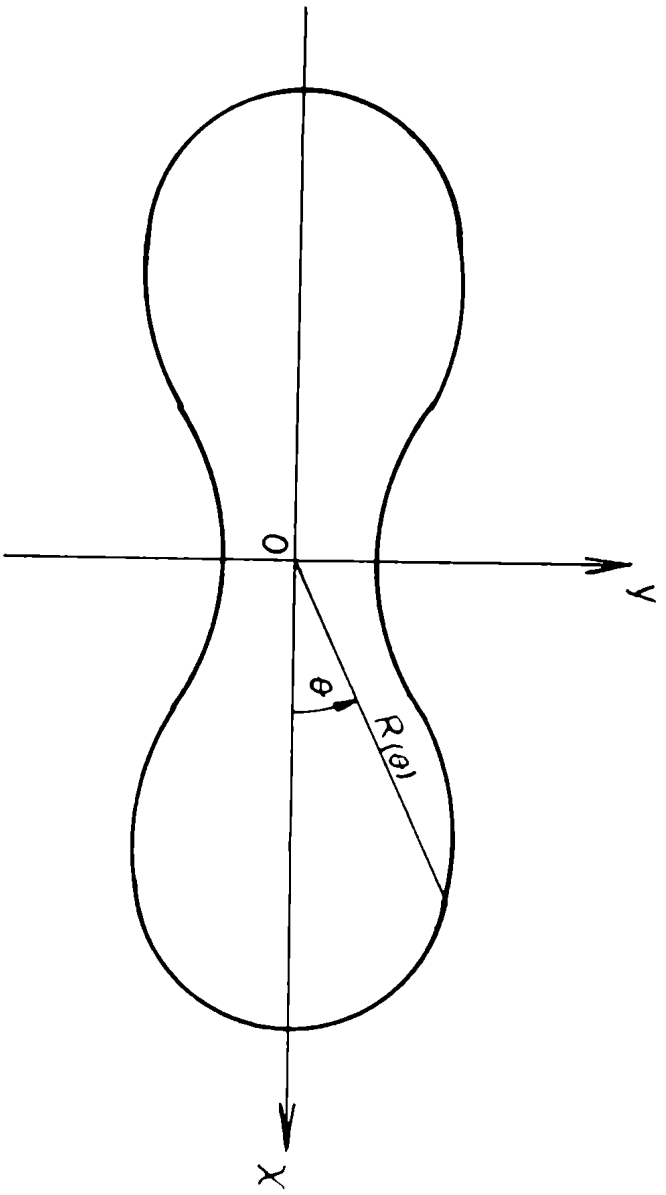
Los modelos de partículas independientes suponen que hay muy poca interacción entre los nucleones cuando el núcleo está en su estado fundamental o en uno de sus niveles menos excitados. El modelo de capas es un ejemplo de este tipo.

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

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

a) Modelo de capas

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 números mágicos.



*Fig. I.8 - Gota líquida deformada según simetría
cilíndrica sobre el eje X .*

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 también 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 modelo de la gota líquida considera al núcleo como una gota de fluido 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 (σ) 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 electrostática 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

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 modelo colectivo, 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 energía 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 frecuencias 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; 1 C 58); los estados cuánticos del núcleo fisionante en el punto de ensilladura (2 B 56); la interacción de las fuerzas 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

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 α del núcleo obtenidas del análisis armónico de esa función periódica:

$$R(\theta) = R_0 \left(1 + \sum_1 \alpha_1 P_1(\cos\theta) \right) \quad (I.1)$$

$P_1(\cos\theta)$ = polinomio de Legendre

III) La energía de deformación $V(\alpha)$ 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:

$$V(\alpha) = 4 \pi r_0^2 A^{2/3} \sigma f_s(\alpha) + \frac{3Z^2 e^2}{10 r_0 A^{1/3}} f_e(\alpha) \quad (I.2)$$

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

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

$$x = \frac{Z^2 e^2}{10 A \sigma \left(\frac{4}{3} \pi r_0^3\right)} = \frac{Z^2/A}{(Z^2/A)_{\text{crít}}} = \frac{Z^2}{45A} \quad (I.3)$$

Cuando 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:

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

La función sin dimensiones $f(x)$ ha sido calculada para distintos valores de x ; cuando la excitación del núcleo compuesto es menor que E_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 $\Gamma_f(E)$ 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).

Por otra parte, el modelo simple de la gota hace una idealización demasiado sencilla de las complicadas interacciones nucleares y no debería esperarse que diera cuenta de los detalles del proceso de fisión. Además, dificultades 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 serían 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 el 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 descrito en función de vibraciones y rotaciones nucleares colectivas acopladas al movimiento de nucleones individuales (7 B 52; 8 B 53; 1 H 53). La sugestión principal hecha por A. Bohr es que el núcleo compuesto tiene un período de vida relativamente muy largo, generalmente del orden de 10^6 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 atravesase 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).

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 energía total desprendida 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 fisio-
nante en el punto de ensilladura de la energía sobre la base de
fórmula 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 mu-
chas veces antes de que se desarrolle un estrechamiento y se pro-
duzca la fisión. Fong supone también que el proceso desde el
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 fi-
sión 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 cual-
quier momento se establece un "equilibrio estadístico instantáneo"
desde el punto de ensilladura hasta la separación. Deduce, de a-
cuerdo a esto, que cualquier probabilidad relativa de un dado mo-
do de fisión sería proporcional a la correspondiente densidad de
estados cuánticos. La probabilidad relativa observada de los mo-
dos de fisión sería así proporcional a la densidad de estados
cuánticos de la correspondiente configuración en el momento mis-
mo en que se alcanza aquel equilibrio estadístico, presumiblemen-
te el momento inmediatamente antes de la separación. Para el cálcu-
lo, Fong aproxima la configuración en este momento crítico a la
de dos fragmentos deformados en contacto, cuya densidad de nive-
les puede ser calculada y depende de la energía de excitación de
los fragmentos en ese instante. Según se deduce del modelo esta-
dístico del núcleo, la densidad de estados cuánticos variaría ex-
ponencialmente con la energía 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
el correspondiente modo de fisión. La diferencia (del orden de
5 Mev) entre la energía de excitación correspondiente a fisión

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 U^{235} 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 (γ) y las funciones 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 $E_i + dE_i$).

Esta probabilidad queda expresada en términos de γ , k , R , $F_C(R)$, $G_C(R)$ y las densidades de niveles de los fragmentos (W_i) 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 γ , 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 $R_0(m)$ de manera de reproducir la curva experimental de distribución de masas en la fisión del U^{235} con neutrones térmicos. Cuando son usados esos valores de R_0 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 Ω ni por la posterior consideración del efecto de la barrera de Coulomb (suponiendo constantes R y γ).

La suposición de que R es dependiente del canal (R_0 de Cameron)

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 R_0 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 muy 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 fisión del U^{235} 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 (\bar{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 \bar{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 hechas 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 semiempíricamente por los mismos autores a partir de \bar{E} .

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

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 Bi^{209} .

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. Estos postulados son brevemente resumidos a continuación:

I) Distribución uniforme de 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) Postulado de igual desplazamiento de carga

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:

$$(Z_A - Z_p)_L = (Z_A - Z_p)_P$$

donde:

L: fragmento liviano.

P: fragmento pesado.

Z_A : valor, no enteró de la carga estable más probable para nucleídos de número de masa A.

IV) Postulado de distribución de carga no uniforme

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 traen 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_A . Glendenin (3 G 49) usa una función continua de Z_A , mientras que Pappas (7 P 53) y otros investigadores sugieren una función de Z_A que presenta discontinuidades en los finales de capas. Esta controversia aún se mantiene.

La determinación semiempírica de Z_p ha sido encarada por varios investigadores. Wahl (9 W 58) sugiere el uso de una curva empírica 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 Z_p . 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 β^- . Estos nucleídos serían los formados con mayor probabilidad como productos primarios de fisión. Finalmente, Coryell, Kaplan y Fink consideran que los datos experimentales disponibles presentan ciertas características:

- I) Z_p es una función unívoca 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).

III) Z_p muestra estructura fina.

Walsh, Ferguson, Nethaway, Troutner y Wolfsberg (10 W 62), en un nuevo intento de explicar la distribución de carga 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 U^{235} 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 Z_p 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 Z_p 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

El estudio radioquímico experimental sobre fisión ha sido encaminado en este trabajo hacia la determinación de rendimientos independientes. Esta elección ha sido hecha debido a que investigadores cuyos aportes en este campo son de reconocido valor (por ejemplo 5 C y 2 P 53), han considerado de interés realizar trabajos con esta orientación a raíz de que los isómeros nucleares son nucleídos que teniendo igual A (número de masa) y Z (número de carga) difieren en el valor de su momento angular intrínseco (spin).

Como, por otra parte, existen teorías que relacionan el spin del núcleo compuesto con el de los productos formados, pareció de interés intentar una sistemática de relaciones de rendimientos independientes de isómeros nucleares producidos en fisión a energía moderada.

En este trabajo se estudiaron los pares $\text{Cd}^{115\text{m}/115}$ y $\text{Nb}^{95\text{m}/95}$ que juntamente con los tratados por E. A. Tenreyro (2 T 63), $\text{Xe}^{133\text{m}/133}$ y $\text{Xe}^{135\text{m}/135}$ pueden ser el comienzo de un estudio más intensivo sobre el rendimiento independiente de pares isoméricos en fisión a energías moderadas.

C A P I T U L O II

Métodos experimentales

A.-Técnicas de irradiaciones

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 μ A, correspondiente a un flujo de $6,3 \times 10^{12}$ deuterones/segundo.

El haz de deuterones, cuyo espectro de energías dentro del ciclotrón alcanza un valor máximo de $28,1 \pm 1,2$ Mev, debía atravesar una chapa de oro de $816,76 \text{ mg/cm}^2$ 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.- B l a n c o s

Los blancos irradiados estaban formados por una lámina de uranio metálico de $0,28 \text{ mg/cm}^2$ cuya composición isotópica está dada en la siguiente tabla:

Abundancia natural de los isótopos de Uranio (1 L 56)

Número de masa	Abundancia (átomos por ciento)
234	$0,0057 \pm 0,0002$
235	$0,7204 \pm 0,0007$
238	$99,2739 \pm 0,0007$
	$U^{238}/U^{234} \quad 17.325 \pm 550$
	$U^{238}/U^{235} \quad 137,80 \pm 0,14$

La lámina de uranio era cubierta en su totalidad por una de oro para degradar la energía del haz incidente, sujetas ambas entre dos chapas portablancos de cobre fijadas a una mordaza refrigerada con agua fría.

El uranio metálico fue cedido por el Instituto de Metalurgia de la C.N.E.A. en forma de láminas de 15μ de espesor. El espesor de la chapa de oro interpuesta entre el haz de deuterones y el blanco de uranio era de $816,76 \text{ mg/cm}^2$.

Una de las chapas portablancos (de cobre de 892 mg/cm² de espesor) estaba provista de un orificio rectangular de 31mm 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 fig. II A 1.

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

3.- Irradiaciones

Los tiempos de irradiación fueron de 10 minutos y 6 horas, cuando el nucleído a separar era Cd y Nb respectivamente, y el peso del 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" fue calculado aplicando la fórmula clásica de Bohr (4 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 (1 A 49) y de Rich y Madey (2 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.

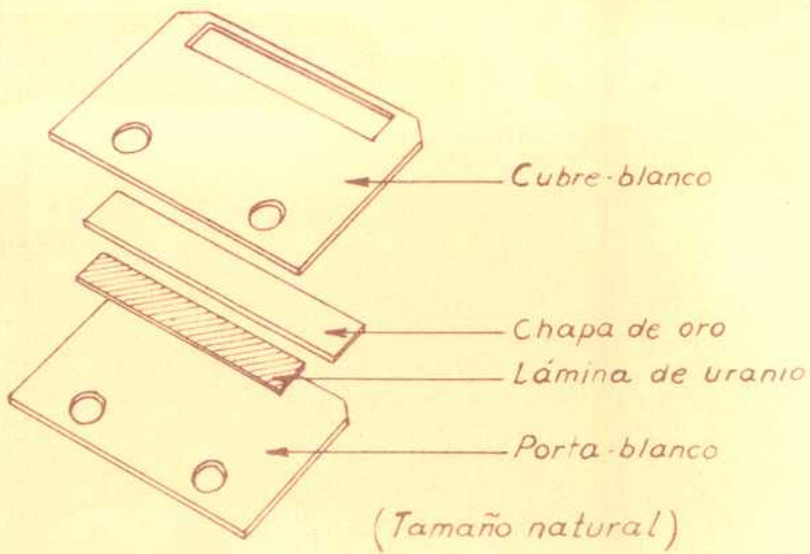


Fig. II A.1 - Disposición del blanco de uranio, la lámina de oro y las chapas porta-blanco.

B.- Ecuaciones utilizadas para calcular los rendimientos en fisión

Para calcular el rendimiento de un nucleído determinado, separado de fisión se necesita, como ya se ha dicho, el conocimiento del rendimiento químico de la separación y su velocidad absoluta de desintegración (lo cual presupone el conocimiento del esquema de desintegración). Estos valores junto con los de las constantes de desintegración, tiempo de irradiación, y tiempo de corte (desde el final de irradiación hasta el momento en que el nucleído de interés se separa químicamente de sus precursores) son los que aparecen en las ecuaciones que se darán en esta sección.

Cada proceso de fisión da lugar a dos fragmentos, para los cuales se define el rendimiento independiente: número de átomos formados directamente por unidad de tiempo sobre el número total de fisiones en la misma unidad de tiempo.

Los fragmentos primarios desintegran por emisión α produciendo nuevos nucleídos (que también se forman a partir del uranio), se define el rendimiento acumulativo como el número de átomos formados directamente y por decaimiento en la unidad de tiempo sobre el número total de fisiones en la misma unidad de tiempo.

1.- Rendimiento independiente de un nucleído (A), miembro inicial de la cadena

Para la cadena



la actividad del nucleído A (se considera primer descendiente del uranio) después de un tiempo t de irradiación y un tiempo x después de interrumpida la misma está dada por

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

Esta fórmula se deduce de las clásicas de decaimiento radioactivo y teniendo en cuenta que el número de átomos formados directamente por unidad de tiempo es igual al rendimiento independiente (y_A^i) multiplicado por el número total de fisiones por unidad de tiempo (R), de (1)

$$y_A^i = \frac{D_A}{R (1 - e^{-\lambda_A t}) e^{-\lambda_A x}} \quad (2)$$

2.- Rendimiento independiente de un nucleído 2º miembro de la cadena (B)



La actividad de B como:

- a) hija directa del uranio se puede expresar, de la misma manera que en el caso anterior como:

$$D_B^a = R y_B^i (1 - e^{-\lambda_B t}) e^{-\lambda_B x} \quad (3)$$

- b) como segunda descendiente del uranio (durante la irradiación y decaimiento de esta cantidad en el tiempo x)

$$D_B^b = R y_A^i \left[1 - \frac{\lambda_B e^{-\lambda_A t}}{\lambda_B - \lambda_A} - \frac{\lambda_A e^{-\lambda_B t}}{\lambda_A - \lambda_B} \right] e^{-\lambda_B x} \quad (4)$$

- c) como hija del primer miembro de la cadena, A. después de fin de irradiación hasta el corte de cadena

$$D_B^c = R y_A^i (1 - e^{-\lambda_A t}) \lambda_B \left(\frac{e^{-\lambda_A x}}{\lambda_B - \lambda_A} + \frac{e^{-\lambda_B x}}{\lambda_A - \lambda_B} \right) \quad (5)$$

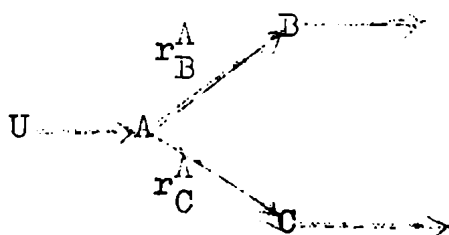
Sumando (3), (4) y (5) y simplificando los términos iguales se obtiene finalmente la expresión que da la actividad total de B

$$D_B = R y_A^i \left[\frac{\lambda_B}{\lambda_B - \lambda_A} (1 - e^{-\lambda_A t}) e^{-\lambda_A x} + \frac{\lambda_A}{\lambda_A - \lambda_B} (1 - e^{-\lambda_B t}) e^{-\lambda_B x} \right] + R y_B^i (1 - e^{-\lambda_B t}) e^{-\lambda_B x}$$

luego

$$\frac{D_B}{y_B^i} = \frac{R y_A^i \left[\frac{\lambda_B}{\lambda_B - \lambda_A} (1 - e^{-\lambda_A t}) e^{-\lambda_A x} + \frac{\lambda_A}{\lambda_A - \lambda_B} (1 - e^{-\lambda_B t}) e^{-\lambda_B x} \right]}{R (1 - e^{-\lambda_B t}) e^{-\lambda_B x}}$$

3.- Rendimiento independiente de un nucleído (B o C) cuyo antecesor decae por dos caminos (desintegración ramificada)

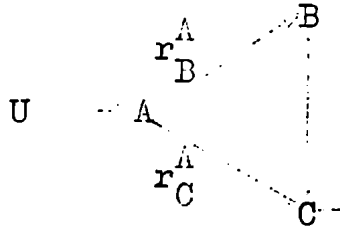


Se está en el mismo caso que en el anterior, 2), pero aquí hay que considerar la razón de ramificación (r_C^A y r_B^A), que es la fracción de las desintegraciones de A que contribuyen a la

formación de B. y de C respectivamente, de manera que para los rendimientos de B y C se obtienen expresiones análogas:

$$y_B^i = \frac{D_C - R y_A^i \left[\frac{\lambda_B r_B^A}{\lambda_B - \lambda_A} (1 - e^{-\lambda_A t}) e^{-\lambda_A x} + \frac{\lambda_A r_B^A}{\lambda_A - \lambda_B} (1 - e^{-\lambda_B t}) e^{-\lambda_B x} \right]}{R (1 - e^{-\lambda_B t}) e^{-\lambda_B x}} \quad (7)$$

4.- Rendimiento independiente de un nucleído (C) formado por dos precursores relacionados genéticamente



La actividad medida de C proviene de dos ramas:

- I) U → A → B → C
- II) U → A → C

I) Interesa conocer la actividad del tercer miembro de la cadena, para ello se sigue el mismo razonamiento que en 2) pero considerando que el primer miembro presenta una ramificación:

a) Actividad de C como hija directa del Uranio:

$$(D_C^a)_I = R y_C^i (1 - e^{-\lambda_C t}) e^{-\lambda_C x} \quad (8)$$

b) Actividad de C como segunda descendiente del uranio (durante la irradiación y decaimiento en el tiempo x)

$$(D_C^b)_I = R y_B^i \left(1 - \frac{\lambda_C e^{-\lambda_B t}}{\lambda_C - \lambda_B} - \frac{\lambda_B e^{-\lambda_C t}}{\lambda_B - \lambda_C} \right) e^{-\lambda_C x} \quad (9)$$

c) Actividad de C como tercera descendiente del Uranio (durante la irradiación y subsiguiente decaimiento en el tiempo x).

$$(D_C^c)_I = R y_A^i \left[1 - \frac{\lambda_B \lambda_C r_B^A e^{-\lambda_A t}}{(\lambda_B - \lambda_A)(\lambda_C - \lambda_A)} - \frac{\lambda_A \lambda_C r_B^A e^{-\lambda_B t}}{(\lambda_A - \lambda_B)(\lambda_C - \lambda_B)} - \frac{\lambda_A \lambda_B r_B^A e^{-\lambda_C t}}{(\lambda_A - \lambda_C)(\lambda_B - \lambda_C)} \right] e^{-\lambda_C x} \quad (10)$$

d) como hija de A después del fin de irradiación hasta el corte de cadena

$$(D_C^d)_I = R y_A^i (1 - e^{-\lambda_A t}) \lambda_B \lambda_C r_C^A \left[\frac{e^{-\lambda_A x}}{(\lambda_C - \lambda_A)(\lambda_B - \lambda_A)} + \frac{e^{-\lambda_B x}}{(\lambda_C - \lambda_B)(\lambda_A - \lambda_B)} + \frac{e^{-\lambda_C x}}{(\lambda_B - \lambda_C)(\lambda_A - \lambda_C)} \right] \quad (11)$$

e) como hija de B después del fin de irradiación hasta el corte de cadena

$$(D_C^e)_I = \left[R y_B^i (1 - e^{-\lambda_B t}) + R y_A^i \left(1 - \frac{r_B^A \lambda_B e^{-\lambda_A t}}{\lambda_B - \lambda_A} - \frac{r_B^A \lambda_A e^{-\lambda_B t}}{\lambda_A - \lambda_B} \right) \lambda_C \left(\frac{e^{-\lambda_B x}}{\lambda_C - \lambda_B} + \frac{e^{-\lambda_C x}}{\lambda_B - \lambda_C} \right) \right] \quad (12)$$

Sumando (8), (9)(10), (11) y(12) y simplificando se obtiene:

$$(D_C)_I = R y_A^i \left[\frac{\lambda_B \lambda_C r_B^A e^{-\lambda_A x}}{(\lambda_B - \lambda_A)(\lambda_C - \lambda_A)} (1 - e^{-\lambda_A t}) + \frac{\lambda_A \lambda_C r_B^A e^{-\lambda_B x}}{(\lambda_A - \lambda_B)(\lambda_C - \lambda_B)} (1 - e^{-\lambda_B t}) + \frac{\lambda_A \lambda_B r_B^A e^{-\lambda_C x}}{(\lambda_A - \lambda_C)(\lambda_B - \lambda_C)} (1 - e^{-\lambda_C t}) \right] + R y_B^i \left[\frac{\lambda_C e^{-\lambda_B x}}{(\lambda_C - \lambda_B)} (1 - e^{-\lambda_B t}) + \frac{\lambda_B e^{-\lambda_C x}}{\lambda_C - \lambda_B} (1 - e^{-\lambda_C t}) \right] + R y_C^i (1 - e^{-\lambda_C t}) e^{-\lambda_C x} \quad (13)$$

II) La actividad de C corresponde al caso 3), fórmula (7)

$$(D_C)_{II} = R y_A^i \left[\frac{\lambda_C r_C^A}{\lambda_C - \lambda_A} (1 - e^{-\lambda_A t}) e^{-\lambda_A x} + \frac{\lambda_A r_C^A}{\lambda_A - \lambda_C} (1 - e^{-\lambda_C t}) e^{-\lambda_C x} \right] + R y_C^i (1 - e^{-\lambda_C t}) e^{-\lambda_C x} \quad (7)$$

Sumando (13) y (7) se obtiene la actividad final de C (que se saca del análisis de las curvas extrapolando al corte de cadena) expresada de la siguiente forma:

$$\begin{aligned}
 D_C = R y_A^i & \left[\frac{\lambda_C r_C^A}{\lambda_C - \lambda_A} (1 - e^{-\lambda_A t}) e^{-\lambda_A x} + \frac{\lambda_A r_C^A}{\lambda_A - \lambda_C} (1 - e^{-\lambda_C t}) e^{-\lambda_C x} + \right. \\
 & + \frac{\lambda_B \lambda_C r_B^A}{(\lambda_B - \lambda_A)(\lambda_C - \lambda_A)} (1 - e^{-\lambda_A t}) e^{-\lambda_A x} + \frac{\lambda_A \lambda_C r_B^A}{(\lambda_A - \lambda_B)(\lambda_C - \lambda_B)} (1 - e^{-\lambda_B t}) e^{-\lambda_B x} + \\
 & \left. + \frac{\lambda_A \lambda_B r_B^A}{(\lambda_A - \lambda_C)(\lambda_B - \lambda_C)} (1 - e^{-\lambda_C t}) e^{-\lambda_C x} \right] + R y_B^i \left[\frac{\lambda_C}{\lambda_C - \lambda_B} (1 - e^{-\lambda_B t}) e^{-\lambda_B x} + \right. \\
 & \left. + \frac{\lambda_B}{\lambda_B - \lambda_C} (1 - e^{-\lambda_C t}) e^{-\lambda_C x} \right] + R y_C^i (1 - e^{-\lambda_C t}) e^{-\lambda_C x} \quad (14)
 \end{aligned}$$

De la misma manera que en los casos anteriores se despeja y_C^i en función de R , y_A^i , y_B^i y las constantes correspondientes.

Este tratamiento matemático ha tenido como base el trabajo realizado por S. Abecasis y H. Bosch (2 A 59) sobre rendimientos acumulativos en la fisión de uranio.

C.- Radioquímica de los elementos producidos en fisión

Cuando se produce fisión de un elemento pesado los productos así formados constituyen una mezcla compleja. Esta contiene un número muy grande de elementos radioactivos formados directamente (con diferentes rendimientos), cada uno de los cuales, decayendo con su período de semidesintegración característico, da lugar a nuevos productos. Además la cantidad de elemento a fisiónar para las experiencias de laboratorio son del orden del mg, los productos de fisión obtenidos son cantidades imponderables. De todo lo dicho surge claramente que la caracterización y separación de los productos de fisión involucra una serie de problemas químicos. El método de separación química debe proveer una alta pureza radioquímica (ausencias de impurezas no radioactivas).

En trabajos radioquímicos el grado de purificación se expresa a menudo en términos del factor de descontaminación que puede ser definido como:

$$F D = \frac{(cpm A)' / (cpm B)'}{(cpm A)'' / (cpm B)''}$$

donde (cpm A)' son las cuentas por minuto del material A (contaminante) antes de la separación y (cpm B)'' cuentas por minuto del material B (el cual se desea obtener en forma pura) después de la separación.

La identificación del elemento separado se realiza por medio de métodos que hacen uso de las propiedades radioactivas del mismo, por ejemplo: período de semidesintegración, energía de la radiación emitida; se obtienen de este modo curvas de decaimiento y curvas de absorción y de distribución de alturas de pulsos características.

Si el nucleído a separar tiene vida media muy corta (desde segundos hasta aproximadamente 5 minutos) todo el proceso comprendido desde el fin de irradiación hasta la obtención del nucleído puro preparado para la medición debe realizarse en un intervalo de tiempo tal que considere que al cabo de aproximadamente 10 períodos de semidesintegración ha decaído casi totalmente. Si el nucleído producido en fisión se puede formar también por desintegración de un miembro de la cadena, el tiempo

desde el fin de irradiación hasta el paso en el método químico que involucra la separación del nucleído a estudiar y su antecesor conviene que sea lo más pequeño posible. Esto evitará, en el cálculo de rendimientos independientes posteriores tratamientos para descontar la actividad que proviene de la cadena.

Las operaciones químicas utilizadas en este trabajo comprendieron fundamentalmente precipitaciones y extracciones con solventes.

En los párrafos siguientes se dan las técnicas de las mismas.

1.- Técnicas de precipitación, descontaminación, filtración y secado

A semejanza con la técnica seguida para sustancias no radioactivas se consideran todos los factores que afectan la pureza del precipitado y la total formación del mismo. No obstante, como la cantidad del elemento radioactivo es pequeña, la concentración en la solución antes de la precipitación es demasiado baja como para alcanzar el producto de solubilidad, es necesario agregar cantidades ponderables de un elemento (portador) que arrastre o separe de la solución los átomos radioactivos presentes. Según que el elemento inactivo agregado sea el mismo o tenga propiedades químicas semejantes a la del nucleído radioactivo se denomina portador isotópico o portador no isotópico.

Para que la técnica de precipitación con portadores de retención sea más efectiva y rápida, el portador agregado debe estar en el mismo estado de oxidación que los átomos radioactivos. En esta forma hay un completo intercambio y los átomos radioactivos participan en la reacción química de la misma forma que los átomos inactivos.

La principal dificultad con la técnica de precipitación proviene del hecho que algunos precipitados, especialmente los gelatinosos, tienen una marcada tendencia a absorber y arrastrar parcial o completamente sustancias no isotópicas que normalmente son solubles, dando así productos contaminados o bien arrastrando elementos que se desea mantener en solución. Esto se evita agregando portador soluble (portador de retención) isotópico con la impureza

o con el elemento que se desea mantener en solución.

(Ejemplo: agregado de Nb antes de la precipitación del F_6 Zr Ba)

Antes de entrar en la última etapa del método de separación química (es decir la precipitación final del nucleído para luego ser montado) se realiza generalmente una serie de procesos de descontaminación por medio de arrastres ("scavenging"). En la solución donde está presente el nucleído de interés y otros productos de fisión que lo contaminan, se precipitan repetidas veces $(OH)_3Fe$ ("scavenger") ó $SO_4 Ba$ o $F_2 La$, de manera que cualquiera de ellos sea capaz de retener cantidades pequeñas de impurezas por coprecipitación o incorporación de las mismas.

El paso final de la separación química es en general, la precipitación del elemento de interés producido en fisión. La filtración se realiza de manera de poder asegurar, dentro de ciertos límites el área y el espesor de la muestra; estos datos son necesarios para la reproducibilidad de las experiencias y por la medición de la velocidad absoluta de contaje.

El equipo utilizado para la filtración se muestra en la figura II. C 1.

El precipitado depositado sobre el papel de filtro se coloca unos segundos debajo de una lámpara de infrarrojos para su secado parcial antes de ser cubierto con una delgada película de celulosa (folia) (El montaje de la fuente se detalla más adelante, Capítulo II, Sección C 3).

2.- Extracción con solventes

Se trabaja de igual manera que cuando se extraen elementos no radioactivos, la única diferencia estriba en el agregado de portador para el elemento de interés y sus precursores en la cadena de fisión y algunos de los miembros del grupo químico al que pertenece, cuyas condiciones de separación son similares.

3.- Montaje de la fuente radioactiva

El precipitado final, colocado sobre el papel de filtro, obtenido en las separaciones químicas, es el que se utiliza para medir la velocidad de contaje del nucleído producido en fisión. Como en las mediciones absolutas es necesario hacer mínimo el efecto producido por la reflexión de las partículas en el

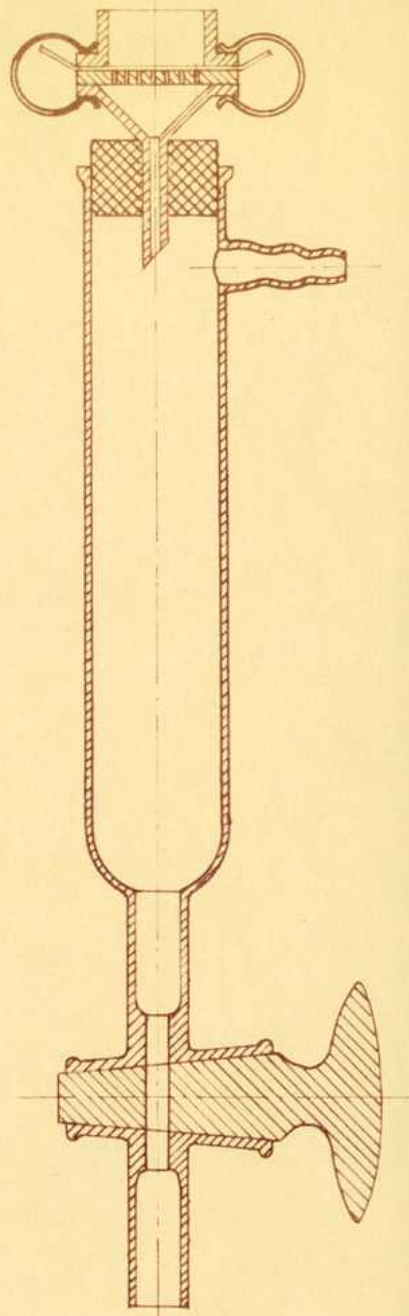


Fig. II C.1 - Esquema del equipo de filtración utilizado

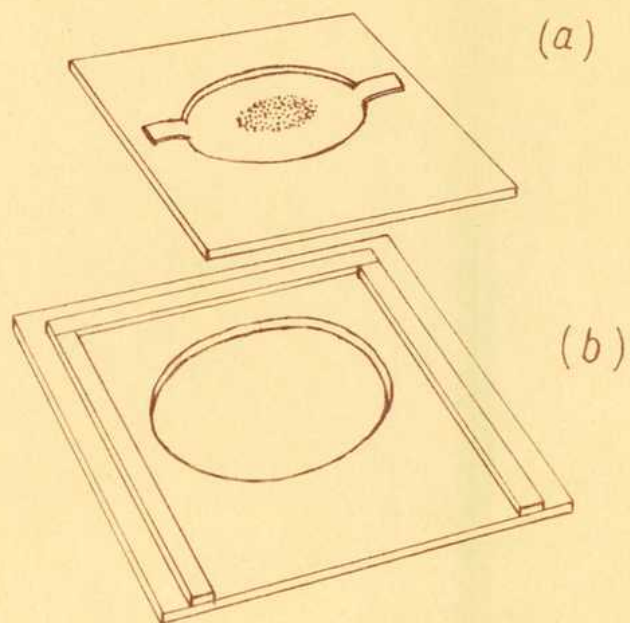


Fig. II C.2 - Disposición de la fuente radioactiva (a) y chapa soporte (b) adoptada para las mediciones.-

material que soporta la muestra radioactiva, como así también la reflexión y absorción de ellas en dicha fuente, se utilizó una película delgada de celulosa (de 50 μ g/cm² de espesor aproximadamente) para cubrir el precipitado, y como material soporte, cinta engomada de celulosa.

En la figura II C 2 se observa la disposición adoptada para la medición.

4.- Control de los métodos de separación química

Dadas las condiciones de trabajo seguidas (irradiación de pequeñas cantidades de uranio a baja energía), las actividades separadas eran demasiado reducidas para asegurar su pureza radioquímica mediante los análisis usuales. Se verificó la selectividad del método de separación de niobio, irradiando en el reactor R A 1 mayores cantidades de uranio durante largos períodos de tiempo y se separó niobio con el procedimiento ya mencionado. Las muestras obtenidas tenían actividades suficientemente altas, las que permitieron la realización de análisis por curvas de absorción en aluminio y espectros gammas.

5.- Preparación y valoración de las soluciones portadoras

a) Preparación:

Niobio

Se colocó niobio metálico espectroscópicamente puro en un crisol de platino y se lo disolvió con unas gotas de ácido fluorhídrico 27 M y ácido nítrico concentrado. En un vaso de polietileno se precipitó el hidróxido con hidróxido de amonio concentrado (éste último se agregó a fin de prevenir la peptización). Se suspendió el precipitado en unos mililitros de ácido nítrico 6M y se pasó a un vaso con solución saturada de ácido oxálico. Se llevó a ebullición continuándose el calentamiento hasta la disolución completa del óxido de niobio hidratado. Se enfrió y llevó a volumen en un matraz aforado.

Cadmio

Se disolvió el nitrato de cadmio puro (pro-análisis) en agua destilada y se llevó a volumen en matraz aforado.

b) Valoración:

Niobio

A una alícuota de la solución del portador se le agregó

ácido nítrico 6M (aproximadamente 2 ml) y clorato de potasio (aproximadamente 0,2 g). Se calentó cuidadosamente durante unos minutos para destruir el ácido oxálico. Se precipitó con hidróxido de amonio concentrado el hidróxido hidratado, se filtró y lavó con agua amoniacal. Se calcinó hasta 800° C y pesó como óxido de niobio (Nb_2O_5).

Cadmio

Se determinó la concentración de cadmio en la solución portador aplicando el método colorimétrico con ditizona (10 S 50), utilizando un espectrofotometro Beckman B.

6.- Rendimientos químicos

Debido a que las separaciones químicas de los nucleídos de interés, de los productos de fisión, no eran realizadas cuantitativamente, se determinaron los rendimientos de separación química de los elementos cadmio y niobio para cada una de las experiencias correspondientes. Con el conocimiento de la cantidad exacta del portador agregado inicialmente, y determinando la cantidad de éste presente en las muestras finales, se calcularon los rendimientos químicos de las separaciones realizadas. Este rendimiento químico de separación del portador es idéntico al rendimiento radioquímico de separación del nucleído radioactivo aislado.

Una vez finalizadas las mediciones de las velocidades de conteo de las fuentes separadas, éstas fueron desmontadas recortando la cinta adhesiva de celulosa que tenía pegado el papel de filtro con el precipitado.

Se resumen brevemente los métodos clásicos que se emplearon.

a) Niobio

Se calcinó a 800° C y pesó como óxido de niobio (Nb_2O_5). Para descontar la distribución del soporte de "dúrex", se calcinó a igual temperatura una cantidad conocida del mismo y se pesaron los residuos dejados.

Los rendimientos químicos de la separación fueron del orden del 40 %.

b) Cadmio

Las fuentes desmontadas se atacaron con mezclas de ácido sulfúrico y agua oxigenada para destruir la materia orgánica.

La solución límpida, resultante del ataque de cada una de las muestras, se llevó a volumen con agua destilada. Sobre una alícuota de cada una de ellas se determinó colorimétricamente (por el método citado anteriormente) la cantidad de cadmio presente.

El rendimiento fue en todas las experiencias del orden del 80 %.

D.- Métodos especiales para la separación
de los productos de fisión

1) Separación de niobio

a) Generalidades

Cuando se disuelve el metal de uranio irradiado, el niobio producido en fisión, así como el circonio (su antecesor en la cadena de fisión), está fundamentalmente presente en la forma de un radiocoloide que se deposita muy fácilmente sobre las superficies. Por agregado de ácido fluorhídrico o ácido fosfórico se convierte en una solución verdadera permitiendo así su intercambio con el portador.

En esta primera etapa se separa en realidad circonio de niobio, quedando éste en solución para su posterior purificación.

El método clásico de separación de circonio como fosfato (9 B 43), está basado en la precipitación de circonio y niobio con solución 0,5M de ácido fosfórico, para separarlos de otras actividades de fisión; la separación posterior de los mismos hace uso de la formación de un complejo soluble de niobio cuando se funde la mezcla de hidróxidos hidratados con carbonato de potasio. Este método es tedioso y su realización requiere demasiado tiempo. Un método más rápido es el del oxalato (9 S 43) que consiste en: formación de complejos solubles de niobio y circonio con ácido oxálico, arrastre ('scavenging') con oxalato de torio en solución ácida, precipitación específica de niobio como óxido después de la destrucción del complejo de oxalato con ácido clorhídrico. En este método interfiere la presencia de algunos iones; la eliminación de esta interferencia convierte este método en un proceso muy complejo (10 B 43).

El procedimiento del fluoruro adoptado en este trabajo (6 H 45) es igualmente aplicable para el caso de la disolución de los blancos de uranio con ácido nítrico u otros ácidos. Presenta la ventaja de que se recupera completamente el circonio prácticamente libre de niobio.

La solución de la muestra irradiada, previa adición de portadores circonio y niobio, es tratada con ácido fluorhídrico para formar complejos solubles de circonio y niobio que conducen

a un rápido y completo intercambio entre los radioisótopos y los portadores. La posterior adición de lantano elimina las actividades del grupo de las tierras raras y alcalinotérreos mediante la precipitación del fluoruro de lantanos, en el mismo paso en el que el agregado del portador bario (en exceso, dado que el fluorocirconato de bario es soluble en solución ácida) precipita el circonio como fluorocirconato de bario. El compuesto de niobio correspondiente es soluble. El control de esta separación de circonio y niobio, utilizando indicadores activos permite asegurar que este método es uno de los que conduce a la obtención de circonio en mayor grado de pureza (6 II 45). El circonio separado está contaminado con niobio aproximadamente entre 0,15 a 0,3 %, que coincide con el orden de magnitud probable de las impurezas de niobio en el portador circonio.

La separación de niobio de los restantes productos de fisión se lleva a cabo mediante la precipitación del óxido hidratado de niobio, en presencia de ácido bórico (para destruir el complejo que forma el niobio en medio fluorhídrico), con hidróxido de amonio y nitrato de amonio (para prevenir la peptización del precipitado). El uranio presente precipita entonces como diuranato de amonio, el que se disuelve en ácido nítrico uno molar, medio en el cual reprecipita el óxido hidratado de niobio.

La purificación del niobio se realiza por extracción con tribencilamina en medio clorhídrico. El niobio es finalmente precipitado y montado como óxido de niobio hidratado.

J. Y. Ellenburg y G. W. Leddicote y F. L. Moore (1 E 54) determinaron los coeficientes de partición para la extracción del niobio con medio ácido clorhídrico 11M para distintas concentraciones de tribencilamina en cloroformo, siendo la condición óptima de extracción una concentración del 8 %. El coeficiente de partición usado está dado por

$$K_{\text{Nb}} = \frac{(c/m)_{\text{Nb/ml de fase orgánica}}}{(c/m)_{\text{Nb/ml de fase acuosa}}}$$

Los coeficientes de partición, para una dada concentración de tribencilamina aumentan con la molaridad del ácido clorhídrico, alcanzando un máximo para ácido clorhídrico 11M. En este medio

se cree que el niobio es extraído en la fase orgánica bajo la forma de un oxiclорuro complejo del tipo $H(NbOCl_4)$ ó $H_2(NbOCl_5O)$ (6 W 06). Debido a que los iones complejos están en equilibrio con sus componentes simples, el incremento en la concentración de ácido clorhídrico desplazaría el equilibrio favoreciendo la formación del complejo, y por lo tanto aumentando la extractabilidad del Nb, lo que fue observado experimentalmente.

El método completo de separación de Nb de los productos de fisión utilizado en el presente trabajo ha sido desarrollado por Radicella y Abecasis (1 R 59).

b) Procedimiento

El uranio metálico irradiado se atacó con ácido nítrico concentrado caliente. Esta solución se pasó a un tubo de centrífuga de polietileno en el que previamente se habían colocado dos mililitros de ácido fluorhídrico concentrado y dos mililitros de una solución patrón de niobio (3,7 mg. de Nb^{++}/ml), agregándose a continuación un mililitro de circonio (5,9 mg/ml de Zr^{4+}), lantano (aproximadamente 3 mg) y bario (del orden de 50 mg).

El lapso transcurrido desde el fin de irradiación hasta esta primera precipitación se consideró el tiempo de corte de la cadena Zr- Nb (es decir de interrupción de la cadena de desintegración beta subsiguiente a la fisión. La solución sobrenadante fue tratada de la siguiente manera:

- a) Se agregaron los portadores lantano, bario y circonio, repitiéndose la precipitación con ácido fluorhídrico dos o tres veces más. Se desecharon los precipitados.
- b) Se eliminó el exceso de ácido fluorhídrico con lantano y bario.
- c) Al líquido sobrenadante se le agregó 4 ml de solución saturada de ácido bórico, se llevó a ebullición y se precipitaron los hidróxidos con solución 1 (hidróxido de amonio concentrado y nitrato de amonio) caliente.
- d) El precipitado se lavó con solución 2 (hidróxido de amonio 1N más nitrato de amonio) caliente.
- e) Se disolvió el precipitado con solución 3 (ácido nítrico 1N más nitrato de amonio), calentándose hasta reprecipitación del óxido de niobio hidratado.

- f) El precipitado se lavó con solución 3 y se disolvió con 10 ml de ácido clorhídrico concentrado caliente.
- g) La solución se extrajo con tribencilamina al 8% en cloroformo.
- h) La fase orgánica se lavó con 10 ml de ácido clorhídrico concentrado saturado con cloroformo y reextrajo con 10 ml de ácido clorhídrico 6 normal.
- i) El extracto acuoso se lavó con 10 ml de cloroformo, y a continuación se pasó a un vaso donde se precipitó el óxido de niobio hidratado con solución 1 caliente. Se filtró a través de papel coloidal y lavó con solución 2, se secó y montó como se describe en el Capítulo II, Sección C 3.

2.- Separación del cadmio

a) Generalidades

Un método standard para aislar el cadmio de los productos de fisión, fue utilizado originariamente por Glendenin (1 G 51) y Metcalf (6 M 51). El mismo está basado en la separación de cadmio de los otros productos por precipitación de su sulfuro con ácido sulfhídrico en medio ácido; los miembros del grupo que precipitan con sulfhídrico son retirados con varios ciclos de arrastre con acetato básico de hierro y sulfuro de paladio. Estos precipitados arrastran un gran número de elementos de fisión. El cadmio que queda en solución luego de la precipitación del sulfuro de paladio con ácido clorhídrico uno molar, se separa como fosfato de amonio y cadmio monohidratado. Glendenin observó experimentalmente (por análisis de una curva de desintegración), que esta separación, aplicada a un concentrado muy activo de productos de fisión de uranio, daba un cadmio con un 99% de pureza, representando un factor de descontaminación mayor que 10^6 .

Este método no fue utilizado, pues se prefirió el de extracción con ditizona por ser más rápido y por contar con todas las ventajas inherentes a la extracción con solventes.

La separación elegida aprovecha la propiedad del cadmio de formar quelatos orgánicos, utilizándose el compuesto así formado como base para la aislación de todos los productos de fisión (con la extracción con solventes) y para la separación final (precipitando el ditizonato de cadmio).

Una discusión general sobre el uso de la ditizona (difentiocarbazona) ha sido hecha por Sandell (3 S 39 y 10 S 50), Iwantschelf (1 I 58), Welcher (2 W 47) y en el libro de química analítica de Charlot y Berzier (6 C 57).

Del estudio de las condiciones de extractabilidad, dada por diferentes autores, de la ditizona en cloroformo (es preferible el uso de este solvente dado que la ditizona es más soluble y estable que con tetracloruro), Pappas (1 P 59) concluye que la extracción con cloroformo en medio fuertemente básico dará un ditizonato de cadmio con alta pureza radioquímica. Estudió también, para distintas condiciones, el comportamiento de los extractos de Cd, Sn, In, Ag y Pd (todos los cuales son producidos en fisión y extraíbles por la ditizona en cloroformo pero a diferentes pH). Encontró que en el Cd extraído de soluciones fuertemente básicas con muy alta eficiencia, solamente interfería la plata, cuando estaba presente el tartrato de sodio para prevenir la precipitación del hidróxido de Cd. Esto es debido, por lo menos en parte, al óxido de plata coloidal que es arrastrado por la capa orgánica. La adición de cianuro de potasio hace que la plata se mantenga en solución y no interfiera en la recuperación del Cd. Este paso se realiza en medio levemente ácido (HCl 0,25M).

A la solución de extracción se le agrega hidroxilamina para prevenir la oxidación de la ditizona.

En el método así dado por Pappas se realizaron dos ciclos de extracciones, encontrando este autor que se recuperaba más de un 95% del Cd y con un factor de descontaminación mayor de 10^4 .

En el presente trabajo se encontró experimentalmente que dos ciclos de extracción resultaban ser pocos, aumentando la actividad final cuando se realizaban cuatro.

b) Procedimiento

Se disolvió el blanco de uranio irradiado en 1 ml de ácido clorhídrico concentrado. Se agregaron los siguientes portadores: cadmio (1,3 mg/ml de Cd^{++}), estaño, indio, plata y paladio (aproximadamente 0,1 mg). Para regular el medio se usó la solución A (100 mg/ml de hidroxilamina, 100 mg/ml de tartrato de sodio y potasio y 2 milimoles/mililitro de hidróxido de potasio) y 1,5 ml de hidróxido de potasio 9,8 M equivalente al ácido clorhídrico

usado. Se extrajo en una ampolla de decantación con 30 ml de solución B (0,1 mg de ditizona/ml de cloroformo). En la fase acuosa se repitieron tres a cuatro extracciones más de manera de asegurar la completa extracción del cadmio.

El intervalo transcurrido desde el fin de irradiación hasta el tiempo medio de la última extracción se tomó como el "tiempo de corte de cadena".

Se reunieron los extractos orgánicos y se lavó con 30 ml de solución C (10 ml de A más 20 ml de agua destilada en equilibrio con 10 ml de B). Toda esta marcha llevó a obtener un extracto orgánico y un extracto acuoso. Luego de 24 horas se continuó de la siguiente manera:

Extracto orgánico: Se trató con 20 ml de ácido clorhídrico 0,25 M y se descartó la fase orgánica. A la fase acuosa obtenida se agregó: 12 ml de A, 5 gotas de cianuro de potasio 1 M y 0,1 mg de los portadores de estaño, indio, plata y paladio. Se efectuaron a continuación las extracciones con solución B de la misma manera que al principio de la separación. El nuevo extracto orgánico obtenido se trató con 25 ml de ácido clorhídrico 0,25 M. La fase acuosa formada se neutralizó con hidróxido de sodio, usando indicador rojo fenol. Se precipitó el ditizonato de cadmio con ditizona disuelta en hidróxido de sodio. Fue necesario calentar a ebullición y mantenerlo en digestión durante un tiempo para que apareciese el precipitado. Se filtró con papel S-S banda azul Nº 589³ y lavó con agua, etanol y éter. Una vez seco el precipitado se montó en la forma descripta en el Capítulo II, Sección C 3.

Extracto acuoso: Se agregó 1,3 mg de cadmio como portador, 7 ml de ácido clorhídrico concentrado y se tomó con cloroformo. Después de neutralizar el extracto acuoso obtenido con hidróxido de potasio 9,8 M (9 ml) y agregar 5 gotas de cianuro de potasio más 10 ml de solución A, se procedió en la forma indicada en Extracto Orgánico.

E.- Equipos para medición

1) Descripción

Para realizar las determinaciones de las velocidades de desintegración se utilizó como unidad de contaje, un tubo Geiger Müller marca Tracerlab, serie T. G. C. N° 2. La ventana de mica tiene un espesor de $1,9\text{mg/cm}^2$ con un diámetro efectivo de 28 mm. El contador se usó conectado a un escalímetro de tipo convencional. La disposición del tubo contador y caja soporte fue la utilizada por S. Abecasis (7 A 58).

"El tubo, con la ventana hacia abajo, fue centrado mediante dos agarraderas de bronce recubiertas exteriormente con goma, respecto del orificio de una caseta de "lucite" (resina acrílica), cuya parte superior de forma circular, está apoyada sobre tres patas de aluminio como muestra la figura II E 1. Una corona circular de aluminio que está sostenida en la parte superior de la caseta mediante una prolongación del mismo material fue colocada para mantener el tubo en la posición prefijada." En las caras internas de aquélla hay cuatro pares de ranuras horizontales separadas entre sí por 1,4 cm las que tienen por objeto sostener la chapa-soporte de lucite, fig. II C 2(b), en una posición determinada con respecto al tubo. En ella se insertan las chapas porta-preparado, de lucite, fig. II C 2 (a), en cuyo orificio central se montaron las muestras a medir.

Para disminuir la entrada de radiaciones espúreas al contador se utilizó un "castillete de plomo". Este es un armazón cilíndrico de 27 mm de espesor, 12,7 cm de diámetro interno, 22 cm de altura interior, enchapado interiormente con 5 mm de aluminio con objeto de minimizar la dispersión de las partículas beta en las paredes de plomo y absorber los electrones secundarios arrancados de las paredes por radiaciones electromagnéticas.

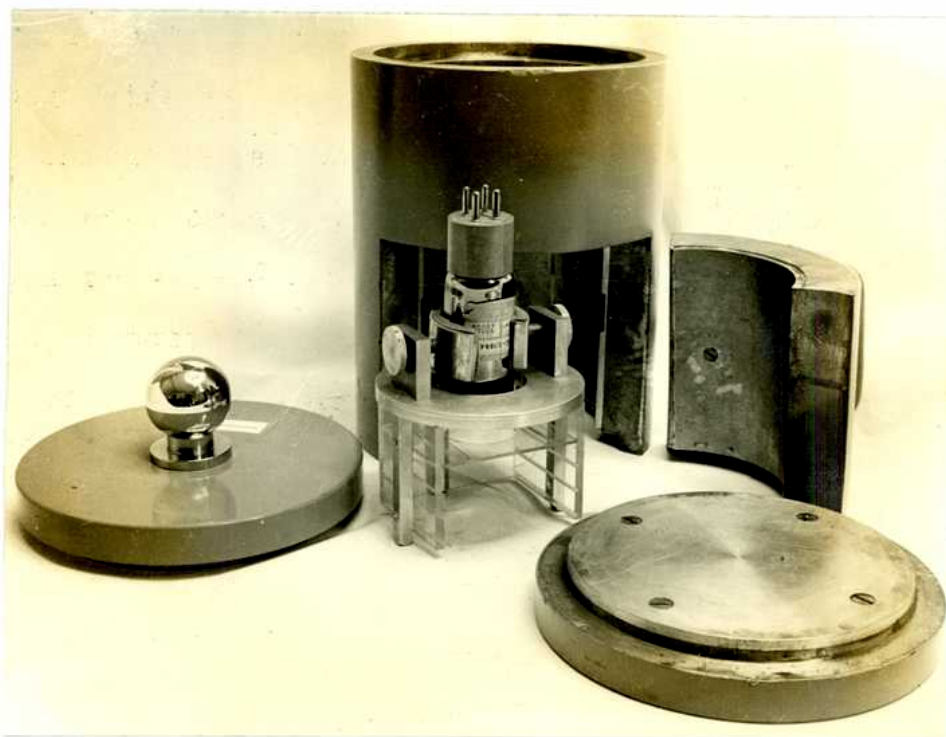


Fig.II E 1: Tubo contador colocado en la caja-soporte y piezas que componen el castillo de plomo.

2.- Control

Se controló el equipo de contaje observando la actividad de una fuente "standard", antes y después de cada experiencia, verificándose la reproducibilidad de las lecturas realizadas.

Otro método realizado fue el llamado "test del χ cuadrado" (2 C 52). Este permite establecer si las variaciones observadas en una serie de mediciones son razonablemente concordantes dentro de lo esperado para las leyes estadísticas seguidas por los fenómenos de desintegración radioactiva.

La parte práctica de esta prueba consiste en la medición repetida de la velocidad de contaje de una fuente patrón, manteniendo constantes las condiciones experimentales. Esto permite calcular:

\bar{x} : valor medio de la velocidad de contaje, $\bar{x} = \frac{1}{n} \sum_{i=1}^n x_i$

Δ_i : desviación algebraica de cada medición del valor medio,
 $\Delta_i = x_i - \bar{x}$

σ : desviación standard, $\sigma = \sqrt{\frac{1}{n-1} \sum_{i=1}^n \Delta_i^2}$

f_j : frecuencia de aparición de desviaciones dentro de seis intervalos iguales a la desviación standard.

f_j^t : frecuencia predicha por la teoría dentro de los mismos intervalos

$$\chi^2 = \sum_{j=1}^6 \left(\frac{f_j - f_j^t}{f_j^t} \right)^2$$

Con el χ^2 obtenido se interpola de la curva de distribución de χ^2 el valor de P. Suponiendo que la ley seguida por la desintegración radioactiva sea una distribución de Poisson, P es la probabilidad de que un conjunto similar de observaciones, dé un valor de χ^2 mayor o igual que el obtenido a partir del conjunto usado.

En la práctica, valores de P entre 5 y 95% indican una concordancia entre la distribución observada y la teórica. Fuera de estos límites es de sospechar fallas en la unidad de contaje.

F.-Determinación de las velocidades de desintegración

1) Pasaje de la velocidad de contaje a velocidad de desintegración

Con el equipo para contaje previamente descrito se determina la actividad de los nucleídos en estudio. Graficando estas actividades o velocidades de contaje en función del tiempo se obtiene una curva bruta de desintegración; un posterior análisis de la misma permite calcular las actividades de cada uno de los nucleídos presentes en la muestra. Para la determinación de los rendimientos de fisión es necesario conocer las velocidades absolutas de desintegración.

El problema de las mediciones betas absolutas es simplemente el de calcular la eficiencia del dispositivo utilizado para contar las partículas betas emitidas por un nucleído conociendo su esquema de desintegración. La emisión beta suele estar acompañada por radiación electromagnética y electrones de conversión, los que también son registrados.

Considerando las características de emisión de los nucleídos estudiados, se discutirán, solamente los siguientes casos:

a) Emisión beta pura

$$\text{La velocidad de contaje registrada } (c/m)_{\beta} = (d/m)F_{\beta} \quad (1)$$

F_{β} : factor de proporcionalidad denominado eficiencia del dispositivo de medición.

b) Emisión beta acompañada de radiación gamma

En este caso es necesario determinar la contribución de la radiación gamma a la velocidad de contaje total.

llamando:

$(c/m)_{\gamma}$: velocidad de contaje debido a la radiación γ

$(c/m)_{\beta}$: velocidad de contaje debido a la radiación β

$(c/m)_{T}$: velocidad de contaje debido a la radiación $\beta + \gamma$

\bar{E}_{γ} : energía γ ponderada (en Mev)

se define R_{γ} ,

$$R_{\gamma} = \frac{(c/m)_{\gamma}}{[(c/m)_{T} - (c/m)_{\beta}]} \bar{E}_{\gamma}$$

La experiencia ha demostrado que en general, para tubos de

ventana del tipo usado en el presente trabajo, R_γ es aproximadamente constante e igual a 0,01, lo cual fue confirmado, para la instalación usada experimentalmente (2 A 59) de la expresión de R_γ :

$$(c/m)_\gamma = 0,01 \bar{E}_\gamma (c/m)_T \left(\frac{1}{1 + 0,01 \bar{E}_\gamma} \right) \quad (2)$$

Teniendo en cuenta que $0,01 \bar{E}_\gamma \ll 1$

$$\text{es: } (c/m)_\gamma = 0,01 \bar{E}_\gamma (c/m)_T = f_\gamma (c/m)_T \quad (3)$$

Siendo $f_\gamma = 0,01 \bar{E}_\gamma$; f_γ se calculó en cada caso de acuerdo al esquema de desintegración del nucleído en consideración.

Por lo tanto

$$(c/m)_{\beta_2} = (c/m)_T - (c/m)_\gamma = (c/m)_T - f_\gamma (c/m)_T = (1 - f_\gamma) (c/m)_T$$

$$(c/m)_{\beta_2} = (1 - f_\gamma) (c/m)_T \quad (4)$$

Considerando (1) se tiene:

$$(c/m)_{\beta_2} = (d/m) F_{\beta_2} = (1 - f_\gamma) (c/m)_T$$

Finalmente se obtiene:

$$(c/m)_T = \frac{(d/m) F_{\beta_2}}{(1 - f_\gamma)} \quad (5)$$

c) Emisión beta acompañada de radiación gamma y electrones de conversión

La velocidad de conteo registrada puede expresarse como:

$$(c/m)_T = (c/m)_{\beta_2} + (c/m)_\gamma + (c/m)_e \quad (6)$$

$$(c/m)_\gamma = f_\gamma \left[(c/m)_{\beta_2} + (c/m)_\gamma \right] = f_\gamma \left[(c/m)_T - (c/m)_e \right]$$

Reemplazando esta última expresión en (6) y operando se obtiene:

$$(c/m)_T (1 - f_\gamma) = (c/m)_{\beta_2} + (c/m)_e (1 - f_\gamma)$$

$$\begin{aligned} (c/m)_{\beta_2} &= (d/m) a_{\beta_2} F_{\beta_2} \\ (c/m)_e &= (d/m) a_e F_e \end{aligned}$$

Siendo:

a_{β_2} : Nro de partículas β_2 emitido por desintegración

a_e : Nro de electrones emitido por desintegración $= a_{TI} \left(\frac{\alpha}{1+d} \right)$

a_{TI} : Nro de transiciones isoméricas por desintegración

α : coeficiente de conversión interna

Finalmente

$$(c/m)_T = (d/m) \left[\frac{a_\beta F_\beta}{(1-f_\gamma)} + a_e F_e \right] \quad (7)$$

d) Transición isomérica pura

En forma análoga a los casos anteriores se puede expresar la velocidad de contaje total como:

$$(c/m)_T = (d/m) \left[a_e F_e + a_\gamma F_\gamma \right] \quad (8)$$

siendo

$$a_e = \frac{\alpha}{1 + \alpha}$$

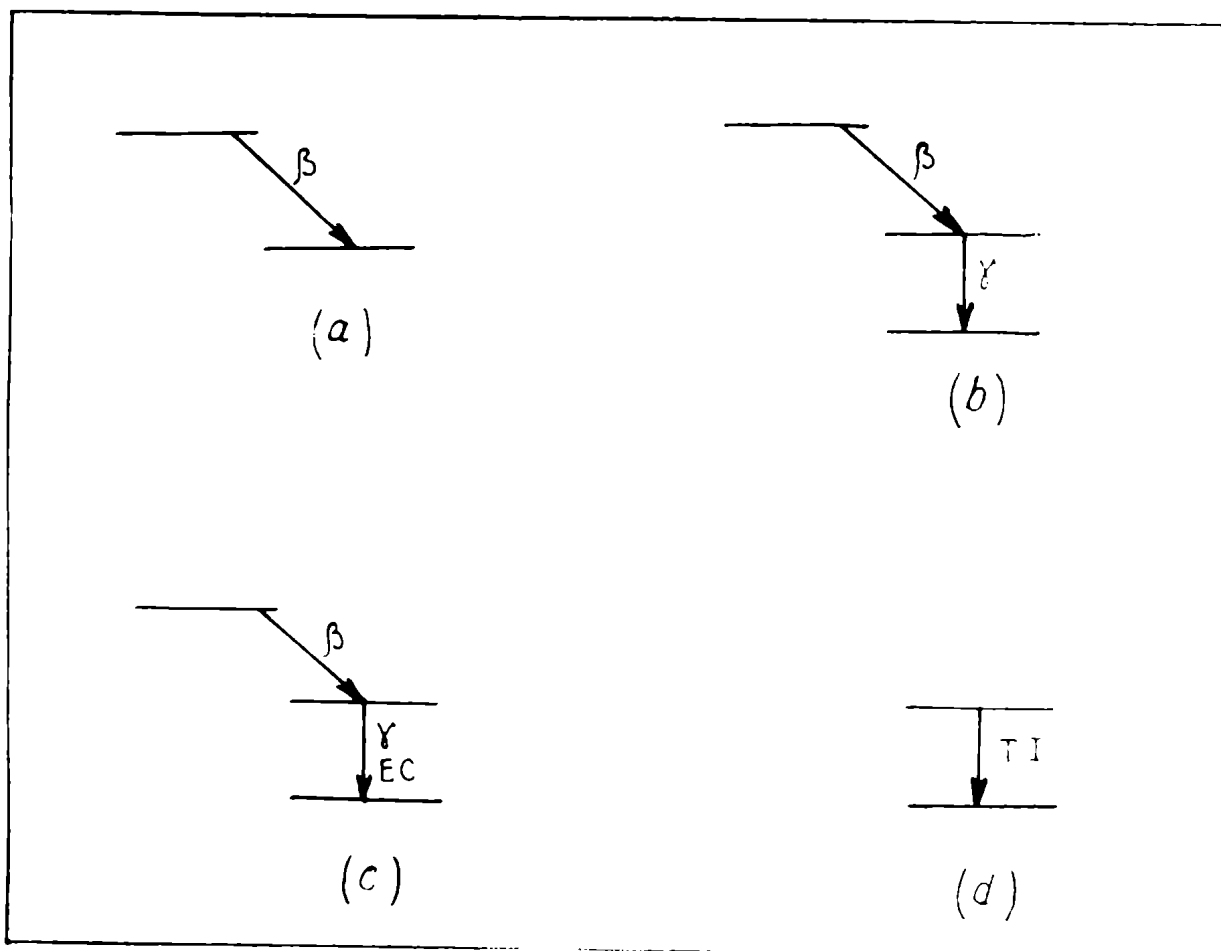
$$a_\gamma = \frac{1}{1 + \alpha}$$

Como la eficiencia de medición de radiación gamma con tubos Geiger ventana es siempre mucho menor que la de los electrones de conversión, para valores del coeficiente de conversión interna grandes el segundo término de (8) se ha despreciable frente al primero quedando:

$$(c/m)_T = (d/m) a_e F_e \quad (9)$$

En resumen, en todos estos casos la determinación de la velocidad de desintegración absoluta se reduce al cálculo de la eficiencia de medición F_β .

La figura II F 1 dá los esquemas de los casos mencionados.



- a) Emisión beta pura
- b) Emisión beta acompañada de radiación gamma
- c) Emisión beta acompañada de radiación gamma y electrones de conversión.
- d) Transición isomérica pura

2) Factores de corrección para partículas β y electrones de conversión

En un caso ideal, en ausencia de dispersión y absorción de electrones, la eficiencia del contador descrito en el capítulo II, E I, estaría determinada casi enteramente por la relación geométrica entre la fuente y el volumen sensitivo del tubo (1 Z 50).

Zumwalt define el volumen sensitivo de un tubo Geiger Müller como la región dentro del contador donde se produce una descarga toda vez que llega a ella una partícula. Cada elemento de superficie de una fuente delgada actuará como una fuente puntual que emite radiación isotrópicamente distribuida. De las partículas, la fracción que entra al volumen sensitivo del tubo será igual a la fracción promedio del ángulo sólido alrededor de la fuente que es subtendido por el volumen sensitivo del tubo (el promedio se toma sobre los elementos de superficie de la fuente). Esta fracción se definió como el factor geométrico (G)

Por lo tanto, en el caso ideal $F_{\beta} = G$

En la práctica, las partículas son contadas por el tubo Geiger Muller de ventana delgada, la presencia de materia entre y alrededor de la fuente y el tubo producirá dispersión y absorción de los electrones, de manera que el número de partículas que entran al contador ya no será una función simple de la geometría. Zumwalt adopta la siguiente fórmula para expresar los efectos de absorción y dispersión sobre la velocidad de contaje neto:

$$F_{\beta} = G f_v f_A f_r f_{S,B} f_E f_C$$

Zumwalt aclara que estos factores no son siempre separables, pero manteniéndolos en la medida que sea posible cercanos a uno son generalmente separables.

Los factores que se detallan en los párrafos siguientes fueron obtenidos del trabajo de S. Abecasis (7 A 58).

Para emisores β la energía utilizada en los cálculos es la energía beta máxima ponderada (\bar{E}_β).

Para electrones de conversión de energía E se utilizaron los factores de corrección correspondientes a partículas β de energía máxima 3E, dado que la energía media en el espectro β es alrededor de 1/3 de la E máxima. Esta aproximación fue justificada para el efecto de retrodispersión por Balfour (11 B 54).

a) Factor ventana f_v : es debido a la absorción de las partículas β en la ventana del contador y la capa de aire existente entre aquella y la fuente radioactiva. Esta absorción es función del medio absorbente y de la energía β máxima del nucleído.

Para calcularlo se utiliza la relación

$$f_v = e^{-\bar{d}/d \cdot \frac{1}{2}} \ln 2 \quad (1)$$

siendo:

\bar{d} : espesor promedio en mg/cm² de la ventana y de la capa de aire existente entre ésta y la fuente.

$d1/2$: es un factor que es función de la energía ponderada de la radiación.

b) Factor de dispersión en el aire f_A : con este factor se efectúa la corrección del conteo debida a la dispersión de las radiaciones en la capa de aire que existe entre la fuente emisora y la ventana del contador.

Para las condiciones utilizadas, en todos los casos este factor es igual a la unidad.

c) Factor de retrodispersión: f_R : es debido al aumento en el conteo producido por la dispersión de las partículas en el material soporte de la muestra. Como el espesor del material sobre el que se colocaron los preparados no alcanza el valor necesario para obtener retrodispersión a saturación, el factor f_R se calculó con la siguiente expresión dada por Pappas (2 P 53)

$$f_R = \left[(f_{R(S)} - 1)P \right] + 1 \quad (2)$$

donde:

$f_R (S)$: factor de retrodispersión a saturación

P : porcentaje de retrodispersión a saturación correspondiente al espesor utilizado.

Se utilizó el valor de 6,5 dado por Pappas para el número atómico efectivo del papel de filtro;

$$Z_{ef} = \frac{\sum_i n_i A_i Z_i}{\sum_i n_i A_i}$$

- d) Factor de dispersión en la caja soporte $f_{S,B}$: da cuenta del aumento del contaje originado por la dispersión de las partículas en la caja de lucite que actúa como soporte de las chapas portapreparado y en el blindaje de plomo. Para la geometría utilizada este factor en todos los casos es igual a uno.
- e) Factor de dispersión en el material que cubre la fuente radioactiva f_C : cuando una fuente radioactiva se cubre con un material dado, éste produce dispersión de la radiación hacia el contador y actúa también como absorbedor de la radiación. Del balance entre ambos fenómenos se origina un aumento en el contaje respecto del obtenido con la fuente emisora libre de cubierta. Para cubiertas de poco espesor y energías no muy bajas el factor difiere poco de uno, que es el valor asumido en este trabajo.

G.- Análisis de curvas de desintegración

Representando las actividades de las fuentes en función del tiempo, previo descuento del fondo radioactivo natural del sistema de contaje, se obtienen curvas de desintegración cuyo análisis permite determinar la contribución de los nucleídos presentes.

En la práctica se representan en papel semilogarítmico la actividad medida en la ordenada (escala logarítmica) y el tiempo en la abscisa (escala lineal). La forma de la curva que se obtiene es función de las características de desintegración y medición de los nucleídos presentes y de la existencia o no de relaciones genéticas entre los mismos.

Se detallan los casos presentados en el trabajo.

1) Análisis de una curva de desintegración habiendo relación genética

La velocidad de contaje total para una mezcla de dos sustancias radioactivas A y B, siendo A la madre y B la hija, está dada en función del tiempo por la siguiente expresión:

$$C_T = C_A^0 \left(\frac{f_B}{f_A} \frac{\lambda_B}{\lambda_B - \lambda_A} + 1 \right) e^{-\lambda_A t} + \left(C_B^0 - C_A^0 \frac{f_B}{f_A} \frac{\lambda_B}{\lambda_B - \lambda_A} \right) e^{-\lambda_B t} \quad (1)$$

siendo:

C_A^0 : velocidad de contaje para el nucleído A para $t = 0$

C_B^0 : ídem para el nucleído B

f_A : factor de conversión de velocidad de contaje (C_A) a velocidad de desintegración (D_A) para el nucleído A.

f_B : ídem para el nucleído B

λ_A : constante de desintegración del nucleído A

λ_B : ídem para el nucleído B

Representando la actividad medida en función del tiempo se obtiene una curva de desintegración que obedece a la expresión (1). La representación se continúa hasta que la curva se haga claramente recta en el gráfico semilogarítmico, se extrapola esta recta a tiempo cero ($t=0$) y se la descuenta de la curva total, obteniéndose así una segunda recta; ^(x) las expresiones analíticas de ambas son:

$$C_A = \left(C_A^0 \frac{f_B}{f_A} \frac{\lambda_B}{\lambda_B - \lambda_A} + 1 \right) e^{-\lambda_A t} \quad (2)$$

$$C_B = \left(C_B^0 - C_A^0 \frac{f_B}{f_A} \frac{\lambda_B}{\lambda_B - \lambda_A} \right) e^{-\lambda_B t} \quad (3)$$

La extrapolación de ambas rectas a tiempo $t=0$ permite obtener los valores

$$\alpha = C_A^0 \frac{f}{f_A} \frac{\lambda_B}{\lambda_B - \lambda_A} + 1 \quad (4)$$

$$\beta = C_B^0 - C_A^0 \frac{f_B}{f_A} \frac{\lambda_B}{\lambda_B - \lambda_A} \quad (5)$$

y con ellos C_A^0 y C_B^0 buscados.

(*) Si junto con las actividades C_A y C_B se mide la correspondiente (C_C) a un nucleído independiente C de período de semidesintegración menor que los de A y B, en lugar de una segunda recta se obtiene una segunda curva. La expresión analítica de la parte recta al final de esta curva es también la dada en (3).

2) Análisis de una curva de desintegración habiendo equilibrio radioactivo en presencia de un nucleído independiente

Quando en una muestra radioactiva están presentes dos nucleídos relacionados genéticamente ($A \rightarrow B$; $\lambda_A < \lambda_B$) y un tercero independiente de aquéllos ($C \xrightarrow{\lambda_C}$), si los tres son registrados por el equipo contador, la contribución de cada uno de ellos a la velocidad de contaje total puede expresarse por

a) Actividad del nucleído independiente (C)

$$C_C = C_C^0 e^{-\lambda_C t} \quad (6)$$

b) Actividad del nucleído madre (A)

$$C_A = C_A^0 e^{-\lambda_A t} \quad (7)$$

c) Actividad del nucleído hijo (B)

$$C_B = C_A^0 \frac{f_B}{f_A} \frac{\lambda_B}{\lambda_B - \lambda_A} (e^{-\lambda_A t} - e^{-\lambda_B t}) + C_B^0 e^{-\lambda_B t} \quad (8)$$

Considerando que inicialmente el nucleído hijo no está presente es para $t=0$, $C_B^0 = 0$

La velocidad de conteaje total (C_T) medida, queda expresada en función del tiempo por la suma de $C_C + C_A + C_B$

$$C_T = C_C^0 e^{-\lambda_C t} + C_A^0 \left(1 + \frac{f_B}{f_A} \frac{\lambda_B}{\lambda_B - \lambda_A} \right) e^{-\lambda_A t} - C_A^0 \frac{f_B}{f_A} \frac{\lambda_B}{\lambda_B - \lambda_A} e^{-\lambda_B t} \quad (9)$$

Si la madre tiene una constante de desintegración menor que la hija se alcanza un estado llamado pseudo equilibrio o equilibrio transitorio; pasado un cierto tiempo la relación entre las velocidades de desintegración de madre e hija se hace constante. Por lo tanto en la ecuación (9) $e^{-\lambda_B t}$ es mucho menor que $e^{-\lambda_A t}$ y el último término de la expresión se hace despreciable frente al resto. Una vez alcanzado el equilibrio radioactivo la velocidad de conteaje resulta ser:

$$C_T = C_C^0 e^{-\lambda_C t} + C_A^0 \left(1 + \frac{f_B}{f_A} \frac{\lambda_B}{\lambda_B - \lambda_A} \right) e^{-\lambda_A t} \quad (10)$$

Si se registra la velocidad de conteaje en función del tiempo a partir de este momento, la curva obtenida obedece a la ecuación (10), el análisis del gráfico obtenido conduce a dos rectas, que por extrapolación al tiempo $t = 0$ permiten establecer los valores

$$\alpha = C_A^0 \left(1 + \frac{f_B}{f_A} \frac{\lambda_B}{\lambda_B - \lambda_A} \right)$$

$$\beta = C_C^0$$

Con los que se calculan C_A^0 y C_C^0 buscados.

La figura II G 1 muestra las curvas de desintegración correspondientes a los dos casos generales tratados.

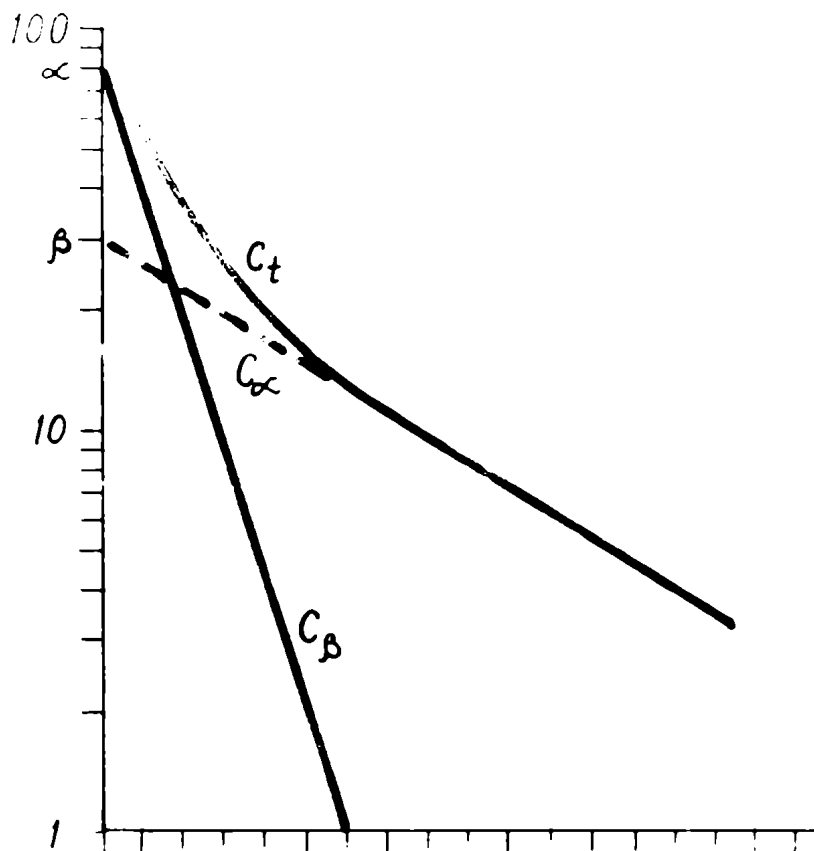


Fig. II.G.1(1) - Análisis de una curva de desintegración habiendo relación genética.--

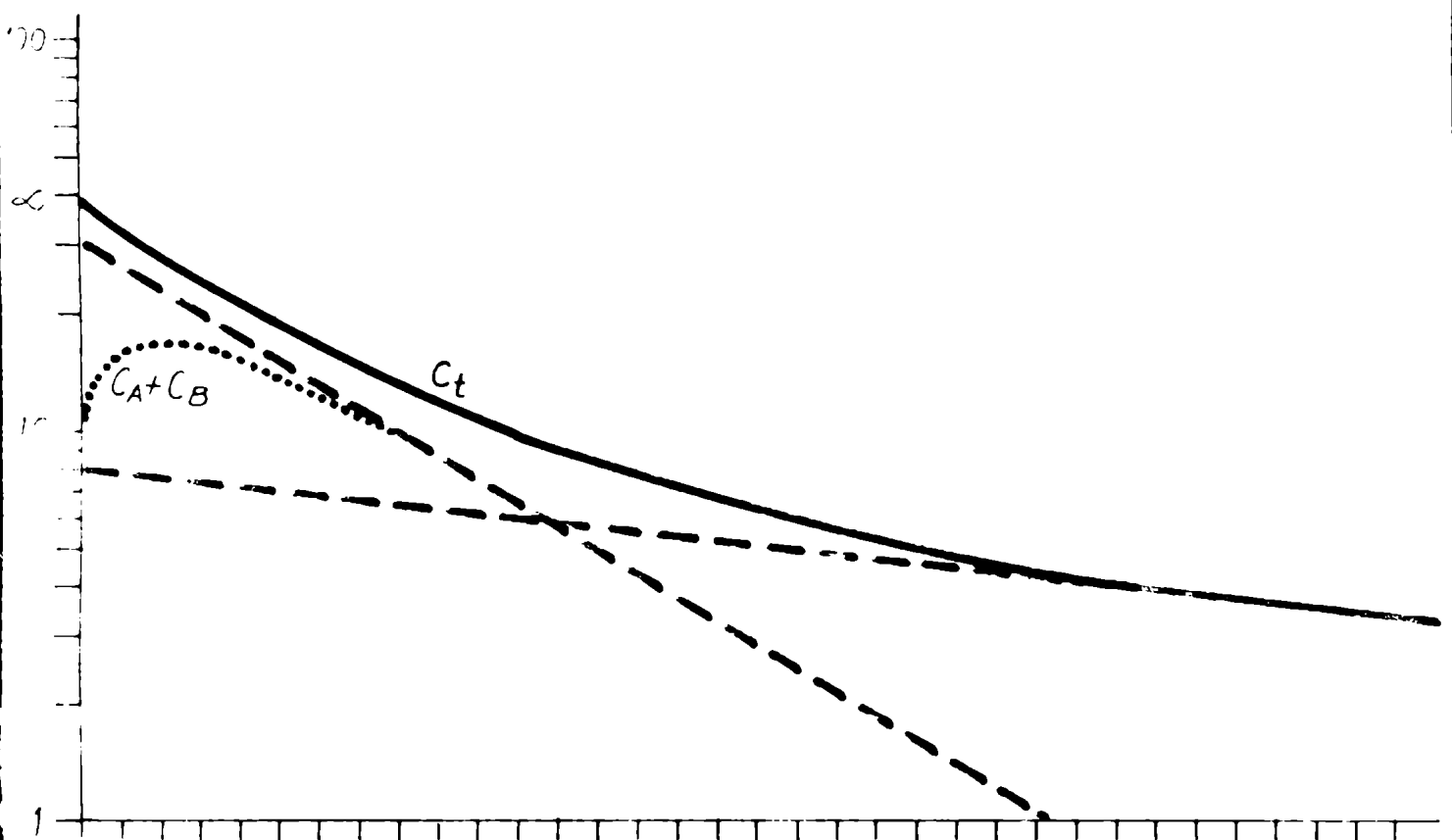


Fig. II.G.1(2) - Análisis de una curva de desintegración habiendo equilibrio radioactivo en presencia de un nucleído independiente

C A P I T U L O III

Resultados experimentales

A.- Datos de desintegración

Para el cálculo de los rendimientos independientes es necesario la determinación de las velocidades absolutas de desintegración de los nucleídos de interés; esto implica el conocimiento de las energías de las radiaciones emitidas, períodos de semidesintegración, etc. La literatura provee reunidos estos datos, por ejemplo en el Nuclear Data Sheets, los que se incluyen en los esquemas de desintegración.

1.- Cd^{115m}/115

Las muestras de cadmio separado de fisión se comenzaron a medir 48 horas después del corte de cadena. De esta manera habían decaído las actividades correspondientes a los isótopos del cadmio de períodos de semidesintegración más cortos y sus hijas (tabla 1). Se dan en la figura III A 1 los esquemas de desintegración del Cd^{115m}/115 e In^{115m}/115 siendo éstos los únicos presentes en las muestras al comienzo de la medición.

2.- Nb^{95m}/95

De los isótopos del niobio producidos en fisión (tabla 2), los únicos presentes en las fuentes radioactivas al comienzo de medición (24 horas después de la separación química), fueron aquéllos cuyos esquemas se dan en la figura III A 2.

T A B L A N° 1
Isótopos del Cd e In en fisión

<u>Isótopo</u>	<u>Período de semidesintegración</u>	<u>Referencias</u>
Cd ^{115m}	43 ± 3 d	5 S 47
Cd ¹¹⁵	2.33 d	7 E 50
Cd ¹¹⁷	2,9 ± 1 h	4 A 52
Cd ¹¹⁷	50 m	3 C 53
Cd ¹¹⁸	50 m	2 G 58
Cd ¹¹⁹	11 m	4 G 58
Cd ¹¹⁹	2,7 m	

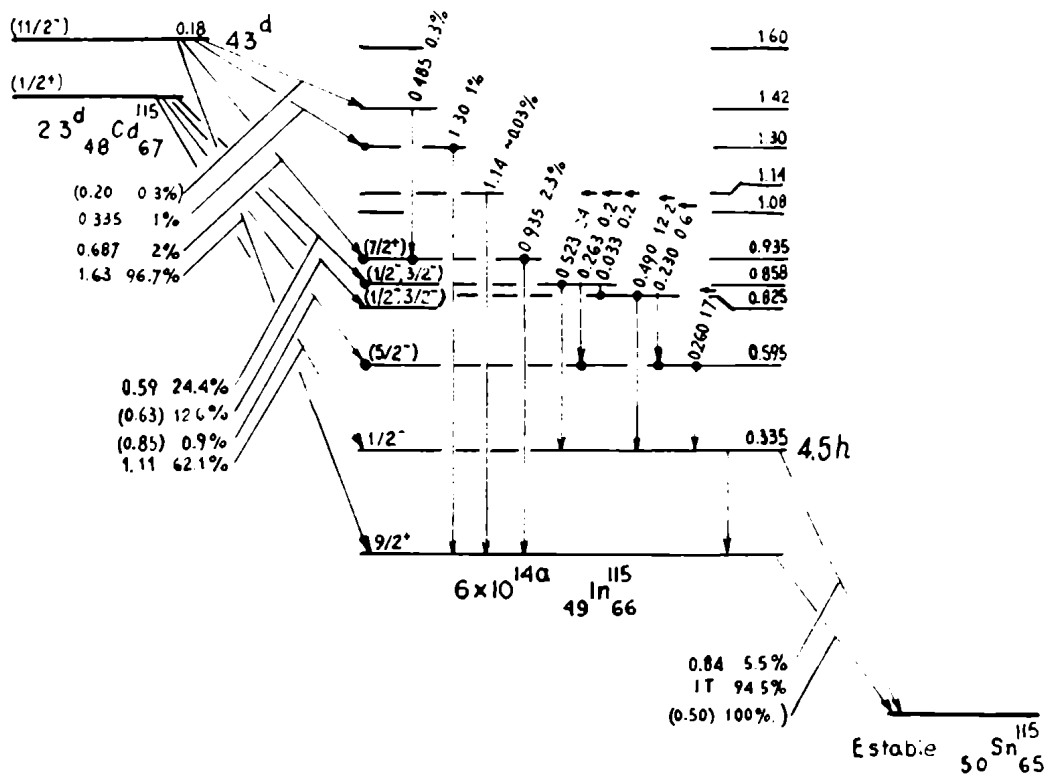


Fig. III A.1 - Esquema de desintegración del $Cd^{115m/115}$ e $In^{115m/115}$

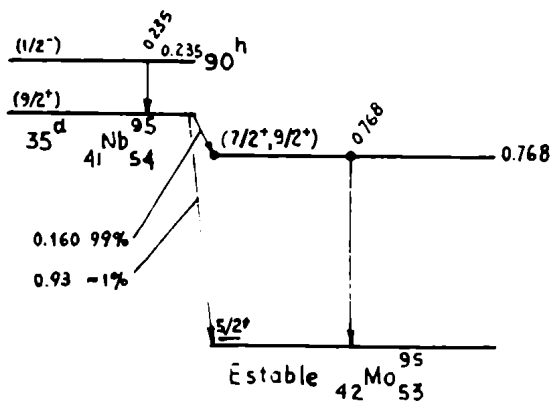


Fig. III A 2 - Esquema de desintegración del $Nb^{95m/95}$

<u>Isótopo</u>	<u>Período de semidesintegración</u>	<u>Referencias</u>
In ^{115m}	4.50 ± 0.02 h	1 D 47
In ^{117m}	1.90 ± 0.05 h	5 M 55
In ¹¹⁷	41 ± 7 m	3 N 60
In ^{118m}	4 m	1 Y 60
In ¹¹⁸	5,1 S	2 G 58
In ^{119m}	18 ± 1 m	4 G 58
In ¹¹⁹	2,3 ± 3 m	1 Y 60

T A B L A N° 2
Isótopos del Nb en fisión

<u>Isótopo</u>	<u>Período de semidesintegración</u>	<u>Referencias</u>
Nb ^{94m}	6.6 m	6 S 40
Nb ^{95m}	90 ± 2 h	2 D 55
Nb ⁹⁵	35 d	4 C 53
Nb ⁹⁶	23 h	3 P 51
Nb ⁹⁷	74 ± 2 m	12 B 50

B.- Determinación de las velocidades de desintegración

1.- Cd^{115m}/115

Con el equipo de medición utilizado se registraban las partículas betas emitidas por Cd^{115m} y las betas emitidas por el Cd¹¹⁵ y los electrones de conversión y partículas betas correspondientes a la desintegración del In^{115m} en equilibrio transitorio con el Cd¹¹⁵. Se miden también, con muy baja eficiencia, como se ha mencionado en la Capítulo II Sección F 1 (b), las radiaciones gammas que acompañan a las emisiones betas y las gammas no convertidas correspondientes a la transición isomérica In^{115m}-In¹¹⁵.

Las curvas de desintegración de las muestras de cadmio se analizaron aplicando el método descrito en el Capítulo II, Sección G 2, para A = Cd¹¹⁵, B = In^{115m} y C = Cd^{115m}, obteniéndose así las velocidades de contaje extrapoladas al corte de cadena para el Cd^{115m} y Cd¹¹⁵.

2.- Nb^{95m}/95

Las actividades de las fuentes de niobio separadas se midieron con el contador Geiger Müller. Se registraron las partículas betas del Nb⁹⁵ y los electrones de conversión correspondientes a la transición isomérica para el Nb^{95m} y la radiación emitida en la desintegración del Nb⁹⁶.

Las curvas de desintegración obtenidas se analizaron como se indica en el Capítulo II Sección G 1, donde A = Nb^{95m}, B = Nb⁹⁵ y C = Nb⁹⁶.

La tabla N° 3 indica, para los nucleídos estudiados los valores de los factores de pasaje de velocidad de contaje a velocidad de desintegración y las velocidades de desintegración obtenidas para las experiencias.

C.- Relación de rendimientos independientes

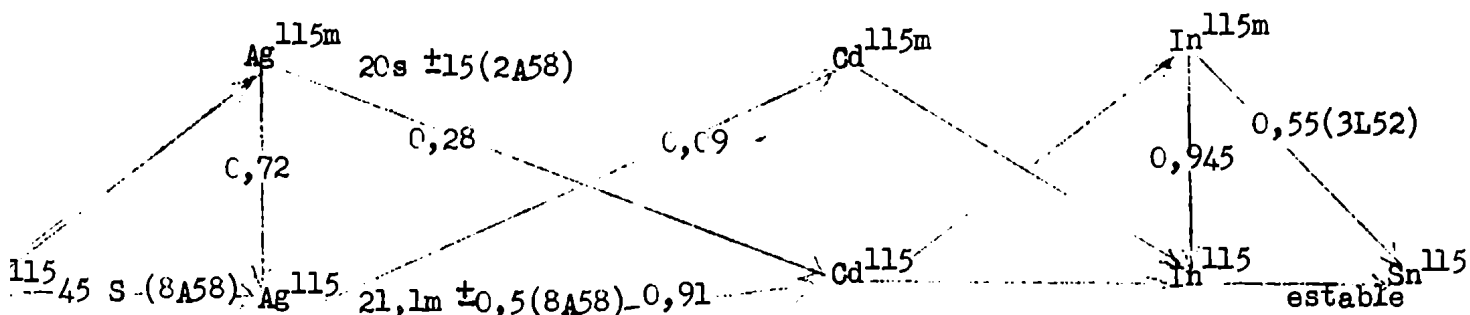
Con las velocidades de desintegración de los nucleídos separados y teniendo en cuenta las relaciones genéticas en las cadenas de desintegración beta de fisión, se calcularon los rendimientos independientes de los pares $Cd^{115m}/^{115}$ y $Nb^{95m}/^{95}$.

El estudio de los rendimientos independientes se encaró considerando la cadena completa y aproximada de productos de fisión

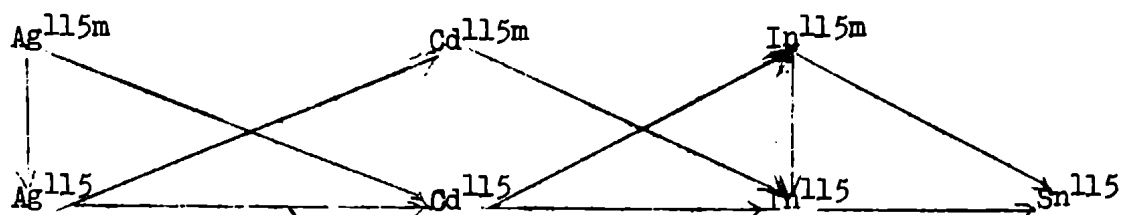
1.- $Cd^{115m}/^{115}$

a) Cadena completa

La cadena de productos de fisión de masa 115 es la siguiente:



No se tuvo en cuenta el Pd^{115} (45 segundos) como primer miembro de la cadena de productos de fisión debido a que se consideró que en el momento de la separación del Cd de la mezcla de los productos (aproximadamente 15 minutos después del fin de irradiación) ya había desintegrado totalmente. La cadena completa debería ser entonces:



Con las expresiones analíticas de las velocidades de desintegración al corte de cadena de Cd^{115m} , Cd^{115} y Ag^{115} se planteó un sistema de dos ecuaciones con cuatro incógnitas, para cada experiencia, del tipo

$$a y_A + b y_B + c y_C + d y_D = 0$$

$$a' y_A + b' y_B + c' y_C + d' y_D = 0$$

3.-Factores de conversión de velocidad de contaje a velocidad de desintegración

Tabla N° 3

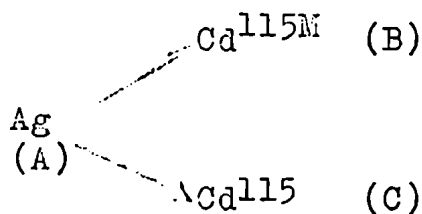
Factores de pasaje de velocidad de contaje a velocidad de desintegración y relaciones de velocidades de desintegración para el Nb^{95m/95} y Cd^{115m/115}

Par estudiado	Experiencias	Factores		Relaciones de velocidades de desintegración D_m/D_g
		f_m	f_g	
Cd ^{115m/115}	I	0,73	0,47	0,14 ± 0,01
	II			0,17 ± 0,03
Nb ^{95m/95}	I	0,66	0,49	0,08
	II			0,08
	III			0,09
	IV			0,08

En los coeficientes de estas ecuaciones figuran los datos experimentales de: 1) las velocidades de desintegración de Cd^{115m} y Cd^{115} obtenidas del análisis de las curvas de desintegración correspondientes a las fuentes de cadmio separadas directamente de los productos de fisión; 2) la velocidad de desintegración de Ag^{115} calculada mediante el análisis de las curvas de desintegración de las fuentes de cadmio producido por la plata de fisión; 3) tiempos de irradiación y corte. Con los datos correspondientes a dos irradiaciones se esperaba resolver el sistema de cuatro ecuaciones con cuatro incógnitas. Las curvas de desintegración obtenidas con las fuentes de $Cd^{115m/115}$ crecido de Ag^{115} no permitieron su resolución debido a las bajas actividades producidas.

Este sistema que hubiera permitido obtener la verdadera relación de rendimientos independientes del par $Cd^{115m/115}$ no pudo entonces ser aplicado. Se consideró de interés calcular en forma aproximada, esta relación utilizando la siguiente cadena simplificada:

b) Cadena aproximada



Se consideró esta cadena de productos de fisión para el cálculo de la relación y_{Cd^m}/y_{Cd} . Por lo tanto, según la ecuación (7) (Capítulo II, Sección B 3):

$$D_B = R y_A^i \left[\frac{B^{rA}}{B - A} (1 - e^{-At}) e^{-Ax} + \frac{A^{rB}}{A - B} (1 - e^{-Bt}) e^{-Bx} \right] + R y_B^i (1 - e^{-Bt}) e^{-Bx} \quad (1)$$

$$D_C = R y_A^i \left[\frac{A^{rC}}{C - A} (1 - e^{-At}) e^{-Ax} + \frac{C^{rA}}{C - A} (1 - e^{-Bt}) e^{-Bx} \right] + R y_C^i (1 - e^{-Ct}) e^{-Cx} \quad (2)$$

Despejando R de la ecuación (1), sustituyendo en (2) y operando, queda finalmente:

$$\begin{aligned}
 & y_C^i \frac{D_B}{D_C} e^{-\lambda_C x} (1 - e^{-\lambda_C t}) + y_A^i \left\{ \frac{D_B}{D_C} \left[\frac{\lambda_C r_C^A}{\lambda_C - \lambda_A} (1 - e^{-\lambda_A t}) e^{-\lambda_A x} + \right. \right. \\
 & \left. \left. + \frac{\lambda_A r_C^A}{\lambda_A - \lambda_C} (1 - e^{-\lambda_C t}) e^{-\lambda_C x} \right] - \left[\frac{\lambda_B r_B^A}{\lambda_B - \lambda_A} (1 - e^{-\lambda_A t}) e^{-\lambda_A x} + \right. \right. \\
 & \left. \left. + \frac{\lambda_A r_B^A}{\lambda_A - \lambda_B} (1 - e^{-\lambda_B t}) e^{-\lambda_B x} \right] - y_B^i (1 - e^{-\lambda_B t}) e^{-\lambda_B x} \right\} = 0 \quad (3)
 \end{aligned}$$

Esta ecuación es del tipo:

$$a y_A + b y_B - c y_C = 0 \quad (4)$$

Con las dos experiencias consideradas para los cálculos finales se obtuvo un sistema de dos ecuaciones:

$$\frac{c}{b} y_B - \frac{a}{b} y_C = y_A \quad (5)$$

$$\frac{c'}{b'} y_B - \frac{a'}{b'} y_C = y_A$$

Con este sistema se calculó el y_B/y_C buscado.

Se resolvió esta ecuación en la que figuran los datos obtenidos a partir de dos experiencias. Si bien se realizaron varias irradiaciones para la determinación de la relación de rendimientos del par $Cd^{115m}/^{115}Cd$, solamente las dos mencionadas permitieron un análisis satisfactorio de las curvas de desintegración.

El resultado obtenido representa la relación entre el rendimiento independiente del Cd^{115m} y el rendimiento de Cd^{115} . Como Bailey M. (14 B 59) aclara, este último implica la contribución correspondiente a la desintegración de la Ag^{115m} durante la irradiación y desde el fin de ésta hasta el corte de cadena. Ya que el 28% de la Ag^{115m} decae con un período de semidesintegración de 20 segundos directamente a Cd^{115} , el rendimiento de Cd^{115} sería el de un producto de larga vida al final de la cadena parcial de productos de fisión $Pd^{115} \xrightarrow{(45 \text{ seg})} Ag^{115} \xrightarrow{(20 \text{ seg})} Cd^{115} \rightarrow (\text{etc..})$

c) Resultados experimentales

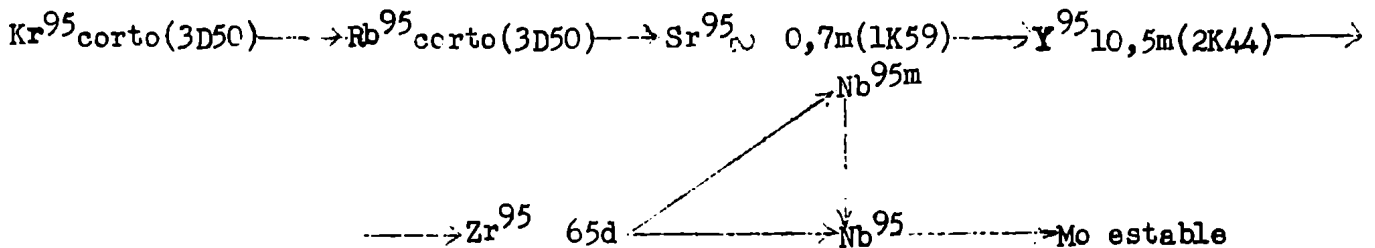
Los datos experimentales empleados en la determinación de la relación de rendimientos y el resultado final están dados en la siguiente tabla.

Tabla de datos experimentales implicados en la determinación de la relación de rendimientos independientes y resultado obtenido para el $Cd^{115m/115}$

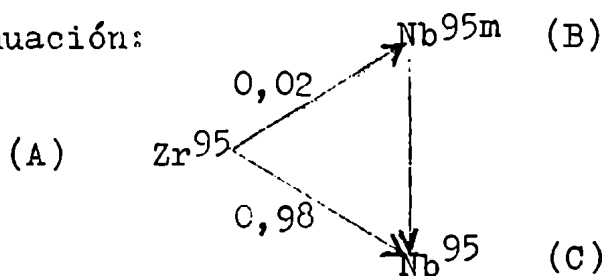
Experiencias	Tiempo de irradiación (t) en minutos	Intervalo desde el fin de irradiación hasta el corte de cadena (x) en minutos	Relación de rendimientos independientes (cadena aproximada) (y_m^i/y_g^i) ap.
I	15	24	$0,25 \pm 0,04$
II	15	25	

2.- Nb^{95m/95}

a) Cadena completa



El tiempo transcurrido desde el fin de irradiación hasta el corte de cadena era, en todos los casos, mucho mayor que una hora, por lo tanto todos los miembros de la cadena anteriores al Zr habían desintegrado al separar el niobio de los productos de fisión. Se consideró entonces la cadena completa, según se esquematiza a continuación:



La actividad del Nb^{95} medida experimentalmente se expresó utilizando la ecuación (14) del Capítulo II Sección B 4; y la actividad del Nb^{95m} , con una fórmula análoga a la (1) de esta sección. Se despejó el valor de R de esta última y se sustituyó en la expresión de la velocidad de conteo del Nb^{95} ; la ecuación final obtenida es:

$$\begin{aligned}
 y_A & \left\{ (1-e^{-\lambda_A t}) e^{-\lambda_A x} \left[\frac{\lambda_C r_C^A}{\lambda_C - \lambda_A} + \frac{\lambda_B \lambda_C r_C^A}{(\lambda_B - \lambda_A)(\lambda_C - \lambda_A)} - \frac{D_C}{D_B} \frac{\lambda_B r_B^A}{\lambda_B - \lambda_A} \right] + \right. \\
 & + (1-e^{-\lambda_C t}) e^{-\lambda_C x} \left[\frac{\lambda_A r_C^A}{\lambda_A - \lambda_C} + \frac{\lambda_A \lambda_B r_B^A}{(\lambda_A - \lambda_C)(\lambda_B - \lambda_C)} \right] + \\
 & + (1-e^{-\lambda_B t}) e^{-\lambda_B x} \left[\frac{\lambda_A \lambda_C r_C^A}{(\lambda_A - \lambda_B)(\lambda_C - \lambda_B)} - \frac{D_C}{D_B} \frac{\lambda_A r_B^A}{\lambda_A - \lambda_B} \right] \left. + \right. \\
 & + y_B^i \left\{ (1-e^{-\lambda_B t}) e^{-\lambda_B x} \left[\frac{\lambda_C}{\lambda_C - \lambda_B} - \frac{D_C}{D_B} \right] + \frac{\lambda_B}{\lambda_B - \lambda_C} (1-e^{-\lambda_C t}) e^{-\lambda_C x} + \right. \\
 & \left. + y_C^i \left\{ (1-e^{-\lambda_C t}) e^{-\lambda_C x} \right\} = 0 \right. \quad (6)
 \end{aligned}$$

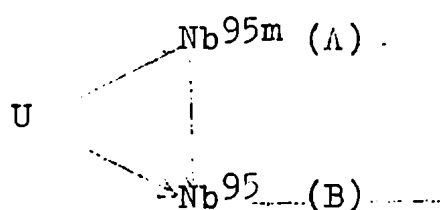
Con las cuatro experiencias seleccionadas de un conjunto de irradiaciones se obtuvo el sistema:

$$\begin{aligned}
 a y_A + b y_B^i + c y_C^i &= 0 \\
 a' y_A + b' y_B^i + c' y_C^i &= 0 \\
 a'' y_A + b'' y_B^i + c'' y_C^i &= 0 \\
 a''' y_A + b''' y_B^i + c''' y_C^i &= 0
 \end{aligned}$$

Los coeficientes de las incógnitas están dados por los términos encerrados entre llaves en la ecuación (6). Cada ecuación corresponde a una experiencia.

La resolución del sistema de ecuaciones condujo a un conjunto de valores de la relación buscada. El dato que figura en la tabla de resultados experimentales bajo la denominación de $(y_m^i/y^i)_{comp}$. es el promedio de aquel conjunto, y el error indicado es la desviación standard correspondiente. Este error así calculado no representa la acumulación de errores de los datos experimentales, la que se obtendría aplicando el método de propagación de errores.

b) Cadena aproximada



Durante la irradiación (6 horas) y desde el fin de ésta hasta el corte de cadena, la actividad del Nb^{95m} formada por la desintegración del Zr^{95} se considera mucho menor que la producida independientemente en fisión. Pareció razonable hacer esta suposición debido a que los períodos de semidesintegración implicados eran suficientemente largos (Zr^{95} 65 días y Nb^{95m} 3,75 días) y, además, solamente un 2% de las desintegraciones del Zr conducen a la formación del Nb^{95m} . El largo período de semidesintegración del Nb^{95} (35 días) determina que la actividad proveniente del 98% de las desintegraciones del Zr^{95} pueda, también en este caso, considerarse despreciable frente a la formada independientemente en fisión.

Del análisis de las curvas de desintegración, realizado según se indicó en el Capítulo II, Sección G 1, se obtuvieron las velocidades de conteo correspondientes al Nb^{95m} y Nb^{95} ; luego de aplicar los factores de pasaje de velocidades de conteo a velocidades de desintegración (tabl) se expresaron estas últimas, siguiendo el razonamiento indicado en el Capítulo II, Sección 1 y Sección 2 (Fórmulas (1) y (6)), como se indica a continuación:

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

$$D_B = R y_A \left[\frac{\lambda_A}{\lambda_A - \lambda_B} (1 - e^{-\lambda_B t}) e^{-\lambda_B x} - \frac{\lambda_B}{\lambda_A - \lambda_B} (1 - e^{-\lambda_A t}) e^{-\lambda_A x} \right] + R y_B (1 - e^{-\lambda_B t}) e^{-\lambda_B x}$$

Combinando estas dos ecuaciones y operando se obtuvo finalmente:

$$\frac{y_m^i}{y_g^i} = \frac{(1 - e^{-\lambda_B t}) e^{-\lambda_B x}}{\left[\frac{D_B}{D_A} + \frac{\lambda_B}{\lambda_A - \lambda_B} \right] (1 - e^{-\lambda_A t}) e^{-\lambda_A x} - \frac{\lambda_A}{\lambda_A - \lambda_B} (1 - e^{-\lambda_B t}) e^{-\lambda_B x}}$$

Con cada una de las cuatro experiencias consideradas mejores se calculó un valor de la relación de rendimientos.

c.- Resultados experimentales

Siguiendo el tratamiento correspondiente a la "cadena completa" se obtuvo un único valor, para la relación de rendimientos

independientes; con la "cadena aproximada" se hallaron para la misma, cuatro valores. La tabla indica estos resultados como así también los respectivos tiempos de corte.

Como se observa, hay una disminución regular de la relación de rendimientos cuando decrecen los tiempos de corte. La extrapolación, para tiempo de corte igual cero, de las relaciones de rendimiento de cadenas aproximadas, (como era de esperar), condujo a un valor prácticamente coincidente con la relación de rendimiento para cadena completa.

Como se mencionó en la sección anterior (para el par $Cd^{115m}/115$) no se aplicó el método de propagación de errores a fin de determinar en forma precisa el error total de las relaciones de rendimientos halladas, debido a los numerosos términos implicados en el tratamiento seguido, cada uno de los cuales posee un error propio, el que es en la mayoría de los casos muy difícil de elucidar.

Tabla de datos experimentales implicados en la determinación de rendimientos independientes y resultados obtenidos para el $Nb^{95m}/95$

Experiencias	Tiempo de irradiación (t) en minutos	Intervalo des- de el fin de irradiación hasta el corte de cadena (x)	Relación de rendimientos independientes (cadena aprox.) (y_m^i/y_g^i) ap.	Relación de rendim. independ. (cadena comp) (y_m^i/y_g^i) comp.
I	3.600	120	1,62	1,37±0,54
II	3.600	715	1,62	
III	3.600	1.018	2,05	
IV	3.600	1.100	2,35	

D.- Análisis y conclusiones

De la búsqueda en publicaciones sobre el tema únicamente se pudo utilizar para comparar con los valores obtenidos para el $\text{Cd}^{115\text{m}}/^{115}$ el trabajo de Pappas y Sharp (1 P 59). Estos autores dan las relaciones de secciones eficaces para el $\text{Cd}^{115\text{m}}/^{115}$ (σ_m/σ_g) en la fisión del uranio natural (U^{238}) con deuterones de energía (E) de 10, 15, 20 y 25 Mev. La representación de σ_m/σ_g en función de E permitió hallar, por interpolación, el valor de 0,20 que correspondería a la energía de 13,3 Mev utilizada aquí. De manera que el valor hallado en el presente trabajo ($0,25 \pm 0,04$) es congruente con aquél. Como en el trabajo de Pappas y Sharp, la relación obtenida representa, también la relación entre el rendimiento independiente del $\text{Cd}^{115\text{m}}$ y el rendimiento acumulativo del Cd^{115} , siendo éste, como ya se mencionó anteriormente, el de un producto de larga vida al final de la cadena parcial de productos de fisión Pd^{115} , $\text{Ag}^{115\text{m}}$, Cd^{115} .

Para la relación de rendimientos independientes de $\text{Nb}^{95\text{m}}/^{95}$ no se encontraron trabajos semejantes que permitieran una comparación entre los valores experimentales. Según S.M. Bailey: "en la fisión del uranio con deuterones de 19 a 23 Mev, la relación del rendimiento independiente del $\text{Nb}^{95\text{m}}$ al Nb total de masa 95 cubre un intervalo del 70 al 100%". Interpretando este valor como relación entre el rendimiento independiente de $\text{Nb}^{95\text{m}}$ y la suma de los rendimientos independientes de ambos isómeros, se calculó a partir de $y_m^i/y_m^i + y_g^i = 0,7$ a 1, el valor $y_m^i/y_g^i = 2,3$. La relación de y_m^i/y_g^i obtenida en el presente trabajo ha sido de $1,37 \pm 0,54$; la diferencia entre ambos podría atribuirse a las distintas condiciones de irradiación (en particular menor energía de bombardeo).

Resumiendo: los valores de las relaciones de rendimientos obtenidos para los pares $\text{Nb}^{95\text{m}}/^{95}$ y $\text{Cd}^{115\text{m}}/^{115}$, junto con los del $\text{Xe}^{133\text{m}}/^{133}$ y $\text{Xe}^{135\text{m}}/^{135}$ (cuyos valores, así como sus spins se dan en la tabla N° 4), obtenidos por E.A. Tenreiro, con quien se trabajó paralelamente con el objeto de llevar a cabo una sistemática sobre este tema, permiten observar el predominio de formación del isómero de menor spin.

Tabla N° 4

Relación de rendimientos independientes obtenidas en el presente trabajo para los pares $\text{Nb}^{95\text{m}/95}$ y $\text{Cd}^{115\text{m}/115}$, valor hallado por Tenreyro E.A. para los pares $\text{Xe}^{133\text{m}/133}$ y $\text{Xe}^{135\text{m}/135}$ y relaciones de spines correspondientes.

<u>Par isomérico</u>	<u>Relación de spines m/g</u>	<u>Relación de rendimientos independientes y_m^i/y_g^i</u>
$\text{Nb}^{95\text{m}/95}$	0.11...	$1,37 \pm 0,54$
$\text{Cd}^{115\text{m}/115}$	11	$0,25 \pm 0,04$
$\text{Xe}^{133\text{m}/133}$	3.66...	0,4
$\text{Xe}^{135\text{m}/135}$	3.66...	0,5

La discusión seguida por Pappas y Sharp en su trabajo para explicar este hecho observado en la fisión del uranio natural, hace uso de la teoría clásica de reacciones nucleares. 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. Se favorecerá aquel isómero cuyo spin sea más próximo al del núcleo compuesto. Considerando, de acuerdo con estos autores, el valor 1 para el spin del núcleo compuesto formado al bombardear uranio natural (U^{238}) con deuterones, en todos los nucleídos estudiados los isómeros cuyos spines son más próximos al del núcleo compuesto son los isómeros de menor spin.

Pappas y Sharp estiman que si bien en las relaciones de rendimientos se refleja el hecho de que el valor observado del Cd^{115} es debido fundamentalmente a la desintegración de los primeros miembros de la cadena de masa 115 que decaen a través de la $\text{Ag}^{115\text{m}}$, ello no elimina la influencia debida al bajo spin del Cd^{115} . El alto rendimiento en cadena está apoyado por la observación de que la distribución de carga primaria a la energía moderada usada favorece los precursores beta inestables más alejados de la estabilidad. Para la formación del $\text{Cd}^{115\text{m}}$ el factor determinante es casi exclusivamente su spin (considerando que puede descontarse la contribución debida a sus antecesores, siendo por lo tanto el

rendimiento observado el de un nucleído bloqueado ("shielded").

Es interesante mencionar aquí la proposición hecha por Pappas y Sharp de que el $\text{Cd}^{115\text{m}/115}$ formado en fisión del U^{238} con deuterones es el resultado de la contribución de dos formas de fisión simétrica y asimétrica.

En conclusión, parecería que los resultados experimentales obtenidos a medianas energías concuerdan con la teoría de que el proceso de fisión en esas condiciones sigue un mecanismo que favorece principalmente la formación de productos de bajo spin.

BIBLIOGRAFIA

- 1 A 54 Asaro F and Perlman I., Phys. Rev. 93, 1423 (1954)
- 2 A 59 Abecasis S. M. y Bosch H., Cálculo de rendimientos acumulativos en la fisión de uranio. Publicación de la C. N. E. A., Inf. N° 4 (Química Nuclear), (1959)
- 3 A 61 Apalin V. F., Yu P. Dobrynin, Zakharova V. P., Kutikov J. E. and Mikaélian, Soviet Journal of Atomic Energy 8, 10 (1961)
- 4 A 52 Aten A. H. W. (Jr), Boelhouwer M., Physica 18, 651 (1952)
- 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 58 Abecasis S. M. Contaje beta absoluto con tubo Geiger Muller. Tesis, (1958)
- 8 A 58 Alexander J. M., Schindewolf U. and Coryell D., Phys. Rev. 111, 228 (1958)

- 1 B 39 Bohr N. and Wheeler J.A., Phys. Rev. 56, 426, (1939)
- 2 E 56 Bohr A., Datos de la Primera Conferencia Internacional sobre la Utilización de la Energía Atómica con Fines Pacíficos, Ginebra 1955, P/911, 2 (1956)
- 3 B 60 Brunner W. and Paul H., Annalen der Physik (7), 6, N° 5/6, 267 (1960)
- 4 B 61 Brunner W. and Paul H., Annalen der Physik (7), 7, N° 5/6, 326 (1961)
- 5 B 61 Brunner W. and Paul H., Annalen der Physik (7), 8, N° 3/4, 146 (1961)
- 6 B 36 Bohr N., Nature 137, 344 (1936)
- 7 B 52 Bohr A., Dan. Mat. Fys. Medd., 26 N° 14, (1952)
- 8 B 53 Bohr A. and Mottelson B.R., Dan. Mat. Fys. Medd., 27, N° 16 (1953)

- 9 B 43 Beady E. L. and Engelkeimer D. W., Fission Products, Paper 242 (1943)
- 10 B 43 Burgus W. H. and Davies T. M., Report CN-1113 (1943)
- 11 B 54 Balfour J. G., J. Instr. 31, 395 (1954)
- 12 B 50 Burgus W. H., Knight J. D., Prestwood R. J., Phys. Rev. 79, 104 (1950)
- 13 B 60 Bramlit E., Finik R. W., Gardner P.G, University of Arkansas, Nuclear Chem. Research, Annual Report 6 (1960)
- 14 B 59 Bailey M. S. (Thesis) 1959. UCRL-8710
- 15 B 50 Brady E. L, Engelkeimer D. W. Steinberg E. P. NNES 9, 711 (1950)
- 1 C 58 Cameron A.G. W. Proceedings of The Second United Nations International Conference on the Peaceful Uses of The Atomic Energy, P/192, 15 (1958)
- 2 C 52 Cook G. and Duncan J. F., Modern Radiochemical Practice, Oxford Univ. Press (1952)
- 3 C 53 Coryell C. D., Leveque P., Richter H. G., Phys. Rev. 89, 903 A (1953)
- 4 C 53 Cork J. M., Le Blanc J. M., Martin D. W., Nester W.H. and Brice M. K., Phys. Rev. 90, 579 (1953)
- 5 C 61 Coryell C. D., Kaplan M. and Fink R., Can. J. of Chem. 39, N° 3, 646 (1961)
- 6 C 57 Charlot G. and Bezier D. "Quantitative Inorganic Analysis", Trans. from 3rd. French ed., John Willey and Sons, Inc. (1957)
- 1 D 47 Dunworth J. V. and Pontecorvo B., Proc. Cambridge Phil. Soc. 43, 123 (1947)
- 2 D 55 Drakkin G. M., Orlov V. I. and Rusinov L.I., Izvest Akad Nank SSSR, Ser. Fiz 19, 324 (1955), Columbia Tech. Transl. p. 294 (1955)

- 3 D 50 Dillard C. R., Adams R. M., Finston H. and Turkevich A.,
NNES 9, 716 (1950)
- 1 E 54 Ellenberg J. Y., Leddicote G. W. and More F. L., Anal.
Chem. 26, 1045 (1954)
- 1 F 46 Frenkel J., J. Phys. (URSS) 10, 533 (1946)
- 2 F 53 Fong P., Phys Rev. 89, 434 (1953)
- 3 F 53 Ford K. W., Phys Rev. 90, 29 (1953)
- 4 F 56 Fong P., Phys Rev. 102, 434 (1956)
- 5 F 47 Frankel S. and Metropolis N., Phys. Rev. 72, 914 (1947)
- 6 F 49 Fermi E., Nucl. Physics Notes (univ. of Chicago Press)
6 (1949)
- 8 F 54 Fairhall A. W., Halpern I. and Winhold E. J., Phys.
Rev. 94, 733 (1954)
- 9 F 34 Fermi E., Nature 133, 898 (1934)
- 1 G 51 Glendenin L. E., NNES 9, 1576 (1951)
- 2 G 58 Gleit C.E., MIT LNS Annual Progr. Report p.25 (October
1958)
- 3 G 49 Glendenin L. E., Coryell C.D. and Edwards R.R., Phys.
Rev. 75, 337 (1949)
- 4 G 58 Glat C.E., MIT LNS Annual Progr. Report p.34 (May 1958),
ver también (2 G 58)
- 1 H 53 Hill D. L. y Wheeler J. A., Phys Rev. 89, 1102-1145
(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, 15 (1958)
- 3 H 55 Hill R. D., Phys Rev. 98, 1272-1276 (1955)
- 4 H 40 Henderson M.C., Phys. Rev. 58, 774 (1940)

- 5 H 50 Hill D. L., Phys. Rev. 79, 197 (1950)
- 7 H 58 Hoffman T.A., Proc. Int. 2nd. Conf. Peaceful Uses of Atomic Energy, P/2031 Ginebra (1958)
- 1 I 58 Iwantscheff G. "Das Dithizon und sein Anwendung in der Mikro und Spureanalyse, Verlag Chemie GMBH, Weinheim/Bergster 1958
- 1 J 49 Jugerman J. and Wright S.C., Phys Rev. 76, 1112 (1949)
- 1 K 59 Knight J. D., Hoffman D.C., Dropesky B. J. and Frasco D. L., J. Inorg. Nuclear Chem. 10, 183 (1959)
- 2 K 44 Knight J. D., Nuclear Data Sheets 1960
- 1 L 58 Leachman R. B., Proceedings Int. 2nd. Conf. Peaceful Uses of Atomic Energy, P/2467 (1958)
- 2 L 56 Lounsbury M., Can. J. Chem. 34, 259 (1956)
- 3 L 52 Langer L. M., Moffat R. D. and Graves G.A., Phys. Rev. 86, 632A (1952)
- 5 L 57 Levy H. B., UCRL 4588 and UCRL 4713; Phys. Rev. 106, 1265 (1957); AECL 339 (1956)
- 1 M 48 Mayer M. G., Phys. Rev. 74, 235-239 (1943)
- 2 M 39 Meitner L. and Frisch O.R., Nature 143, 239 (1939)
- 3 M 50 Metropolis N. and Reitweisner G., USAEC Rep. N.P. 1980 (1950)
- 5 M 55 Mc Ginnis C.L., Phys. Rev. 97, 93 (1955)
- 6 M 51 Metcalf R. P., NNES 9, 892 (1951)
- 7 M 50 Metcalf R. P., NNES 9, 898 (1950)
- 1 N 56 Newton T. D., Chalk River Report 642 A (AECL 329) 307-328 (1956)
- 2 N 55 Newton J.C., Progr. in Nuclear Phys 4, 234 (1955)

- 3 N 60 Need J. L., comunicación privada al Nuclear Data
Sheets (1960)
- 1 O 60 Orth C. J., Smith R. K. J., Inorg. Nucl. Chem. 15, 4 (1960)
- 1 P 59 Pappas A.C. and Sharp R.A., J. Inorg. and Nucl. Chem. 10,
1732,82 (1959)
- 2 P 53 Pappas A.C., Technical Report N° 63, Laboratory for Nu-
clear Science, Massachusetts Institute of Technology
(1953)
- 3 P 51 Preiswerk P. and Stahelin P., Helv. Phys. Acta 24,300
(1951)
- 6 P 47 Present R.D., Phys Rev 72, 7 (1947)
- 7 P 53 Pappas A.C., AECU 2806 (1953)
- 1 R 59 Radicella R. y Abecasis S. comunicación personal (1959)
- 2 R 54 Rich M. and Madey R., Range Energy Tables, USAEC-UCRL
2301 (1954)
- 1 S 51 Swiatecki W.J., Phys Rev. 83, 178 (1951)
- 2 S 55 Swiatecki W.J., Phys Rev. 100, 937 (1955)
- 3 S 39 Sandell E. B., Ind. Eng. Chem. Anal. Ed., 11, 364 (1939)
- 4 S 53 Segré E., Experimental Nuclear Physics, J. Willey and Sons
Inc. N.Y. 1, 242 (1953)
- 5 S 47 Seren L., Engelkeimer D. W., Sturm W., Friedlander H.N.
and Turkel S.H., Phys. Rev. 71, 409 (1947)
- 6 S 40 Sagave R., Kojima S., Miyamoto G. and Ikawa M. Proc.
Phys. Math. Soc. Japan 22, 174 (1940)
- 7 S 59 Shumman R. P. and Goris P., J. Inorg. Nuclear Chem. 12,
1 (1959)
- 8 S 57 Sugihara T.T., Drevinsky P.J., Troianello E.J. and
Alexander J.M., Phys. Rev. 108, 1264 (1957)
- 9 S 43 Steinberg E.F., Fission Products. Paper 243 (1943)

- 10 S 50 Sandell E. B., "Colorimetric determination of Tracer Metals", Interscience publishers, New York 1950
- 1 T 60 Takahashi Y., Kotayima H., Morinoga H., Kuroyamagi T., Yuta H., Nagatani K., Phys. Soc. Japan, Annual Meeting (October 1960)
- 2 T 63 Tenreiro E. A. A., comunicación personal (1963)
- 1 W 47 Weisskopf V. F., MDDC-1175 (1947)
- 2 W 53 Willets L., Hill D.L. and Ford K. W., Phys Rev., 91, 1488 (1953)
- 3 W 55 Willer J. A., in Niels Bohr and Development of Physics, 163 (Mc Graw-Hill Book Co., Inc., N.Y., 1955)
- 4 W 52 Winhold E. J. Demos P.T. and Halpern I., Phys Rev. 87, 1139 (1952)
- 5 W 47 Wilson R.R., Phys. Rev. 72, 189 (1947)
- 6 W 06 Weinland R. F. and Storz L., Ber. 39, 3056 (1906)
- 7 W 47 Welcher F. J., Organic Analytical Reagents, D. Van Nostrand Co. Inc. New York 1947, Vol.III, P.463
- 8 W 45 Wigner E. P. and Way K., Rep. CC-3032, Jun 13(1945)
- 9 W 58 Wahl A.G., J. Inorg. and Nucl. Chem., 6, 236 (1958)
- 10 W 62 Wahl A.G. Ferguson R.L., Methaway D.H., Troutner D.E. and Wolfsberg K., Phys. Rev. 126, 1112 (1962)
- 1 Y 60 Yuta H. and Morinoga H., Nuclear Phys. 16, 119 (1960)
- 1 Z 50 Zumwalt L.R., AECU 567 (1950)

R. H. Zumdahl

Agradecimientos.

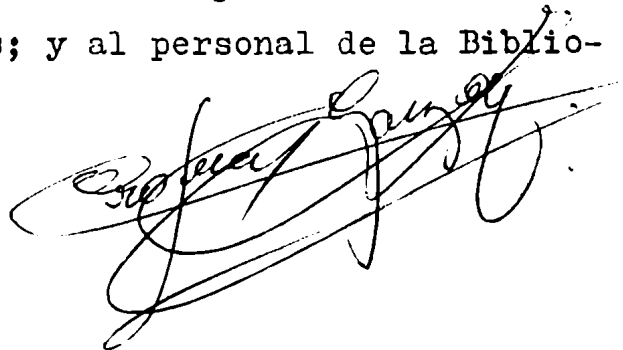
C. N. E. A.

Agradezco a la Dra S. Nassiff, madrina de tesis durante el primer año de realización de este trabajo. Ante el Dr R. Rodríguez Pasqués me siento profundamente obligada debido a su aliento y guía brindada durante los dos años que condujo mi trabajo.

Estoy muy reconocida ante las autoridades de la C.N.E.A. por haberme permitido realizar esta investigación en los laboratorios de Radioquímica y al Consejo de Investigaciones Científicas y Técnicas por la beca que permitió efectuar esta tesis.

A la Dra S. Abecasis y R. Radicella y los integrantes del Departamento de Radioquímica, quienes en todo momento me ofrecieron sus valiosos conocimientos; al Ing. C. Martinez Vidal las láminas de uranio; al personal de Espectroscopía Nuclear por su asesoramiento; al Dr R. Bès por la lectura del Capítulo referente a las teorías de fisión citadas en este trabajo.

Quiero agradecer muy especialmente al Sr S. Tejero quien realizó las irradiaciones en el Sincrociclotrón de noche debido a inconvenientes en el suministro de tensión y a sus compañeros del mismo laboratorio; al personal de Química Analítica por las importantes ayudas que me prestaron; a la Sra A.M. Ferrari y Sr A. Guichou quienes me ayudaron en las mediciones y otros trabajos; al personal del Departamento de Electrónica y especialmente al Sr H. Fabris por el mantenimiento de los equipos electrónicos; y al personal de la Biblioteca por su gran colaboración.



Aclaración

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