



**DETERMINAÇÃO DA CONSTANTE DE DECAIMENTO
PARA A FISSÃO ESPONTANEA DO ^{238}U**

C. RENNER, M. P. T. LEME, M. CATTANI

PUBLICAÇÃO IEA N.º 221
Setembro — 1970

INSTITUTO DE ENERGIA ATÔMICA
Caixa Postal 11049 (Pinheiros)
CIDADE UNIVERSITÁRIA "ARMANDO DE SALLES OLIVEIRA"
SÃO PAULO — BRASIL

DETERMINAÇÃO DA CONSTANTE DE DECAIMENTO
PARA A FISSÃO ESPONTÂNEA DO ^{238}U

C. Renner, M.P.T. Leme, M. Cattani

Divisão de Física Nuclear
Instituto de Energia Atômica
São Paulo - Brasil

Publicação IEA Nº 221

Setembro - 1970

Comissão Nacional de Energia Nuclear

Presidente: Prof.Dr. Hervásio Guimarães de Carvalho

Universidade de São Paulo

Reitor: Prof.Dr. Miguel Reale

Instituto de Energia Atômica

Diretor: Prof.Dr. Rômulo Ribeiro Pieroni

Conselho Técnico-Científico do IEA

Prof.Dr. José Moura Gonçalves	}	pela USP
Prof.Dr. José Augusto Martins		
Prof.Dr. Rui Ribeiro Franco		
Prof.Dr. Theodoreto H.I. de Arruda Souto		
		pela CNEN

Divisões Didático-Científicas

Divisão de Física Nuclear -

Chefe: Prof.Dr. José Goldenberg

Divisão de Radioquímica -

Chefe: Prof.Dr. Fausto Walter de Lima

Divisão de Radiobiologia -

Chefe: Prof.Dr. Rômulo Ribeiro Pieroni

Divisão de Metalurgia Nuclear -

Chefe: Prof.Dr. Tharcísio D.S. Santos

Divisão de Engenharia Química -

Chefe: Lic. Alcídio Abrão

Divisão de Engenharia Nuclear -

Chefe: Eng^o Pedro Bento de Camargo

Divisão de Operação e Manutenção de Reatores -

Chefe: Eng^o Azor Camargo Penteado Filho

Divisão de Física de Reatores -

Chefe: Prof.Dr. Paulo Saraiva de Toledo

Divisão de Ensino e Formação -

Chefe: Prof.Dr. Rui Ribeiro Franco

DETERMINAÇÃO DA CONSTANTE DE DECAIMENTO
PARA A FISSÃO ESPONTÂNEA DO ^{238}U

C. Renner*, M.P.T. Leme*, M. Cattani**

RESUMO:

Neste trabalho o método dos traços de fissão em sólidos é utilizado na determinação da constante de decaimento λ_F para a fissão espontânea do ^{238}U . Este método requer as seguintes medidas: (a) número de traços de fissão espontânea do ^{238}U ; (b) número de traços de fissão induzida no ^{238}U por nêutrons térmicos e (c) o fluxo de nêutrons térmicos. A determinação direta do fluxo de nêutrons, entretanto, foi evitada através da medida da atividade por ele induzida em fôlhas de Au cuja secção de choque obedece bem de perto a lei $1/v$. Amostras de urânio natural em contato com fôlhas de mica permanecem seladas durante 4,216 anos. Obteve-se para a constante de decaimento o valor $\lambda_F = (7,30 \pm 0,16) 10^{-17}$ anos $^{-1}$.

1 - Princípio do método

Fragmentos de fissão provocam em alguns minerais como mica, vidro, etc., danos em forma de traços que, uma vez atacados quimicamente, podem ser alargados e vistos em um microscópio óptico (PR62a, PR62b). Construindo-se uma amostra de urânio natural em contato com uma fôlha de mica, os fragmentos provenientes da fissão espontânea do ^{238}U serão nela registrados. A densidade de traços ρ_e produzida na mica por êsses fragmentos durante um tempo τ é dada por: (F164, F165)

$$\rho_e = \frac{\lambda_F}{\lambda_D} N d C^{238} (1 - \exp(-\lambda_D \tau)) \epsilon (R^{238}, d) \quad (1)$$

onde λ_F é a constante de decaimento para fissão espontânea do ^{238}U , λ_D é a constante de decaimento total do ^{238}U ; N é o número de átomos de urânio natural na amostra por cm^3 ; d é a espessura da camada de urânio natural; C^{238} é a fração de átomos de ^{238}U no

* Instituto de Energia Atômica, São Paulo (CNEN).

** Instituto de Física, Universidade de São Paulo.

urânio natural; R^{238} é o alcance médio no urânio natural, dos fragmentos de fissão do ^{238}U e $\epsilon(R^{238}, d)$ é a eficiência total de detecção destes fragmentos.

A expressão (1) para valores de $\tau \ll 10^9$ anos pode ser aproximada para: (F164)

$$\rho_e = \lambda_F N d C^{238} \tau \epsilon(R^{238}, d) \quad (2)$$

A necessidade de se determinar N e $\epsilon(R^{238}, d)$ é evitada induzindo-se com nêutrons térmicos, a fissão do isótopo ^{235}U contido no urânio natural. Uma vez que a secção de choque de fissão do ^{235}U (Go66) para nêutrons térmicos segue bem de perto a lei $1/v$, (Be64) teremos para a densidade de traços de fissão induzida a seguinte expressão: (F164, Be64)

$$\rho_i = N d C^{235} \phi t \sigma^{235}(\bar{v}) g(T) \epsilon(R^{235}, d) \quad (3)$$

onde C^{235} é a fração de átomos de ^{235}U contido no urânio natural, ϕ é o fluxo de nêutrons térmicos com distribuição Maxwelliana, de velocidade média \bar{v} , t é o tempo de irradiação, $\sigma^{235}(\bar{v})$ é a secção de choque de fissão do ^{235}U para nêutrons de velocidade \bar{v} , $g^{235}(T)$ (Be64) é o fator de correção que leva em conta o desvio em $\sigma^{235}(v)$ da lei $1/v$, T é a temperatura característica do espectro de nêutrons térmicos, R^{235} é o alcance médio dos fragmentos de fissão do ^{235}U e $\epsilon(R^{235}, d)$ é a eficiência total de detecção destes fragmentos.

Das expressões (2) e (3) e levando-se em conta que $R^{238} = R^{235}$ dentro do erro experimental obtém-se:

$$\lambda_F = \frac{\rho_e}{\rho_i} \phi t \sigma^{235}(\bar{v}) \frac{1}{\tau} \quad (4)$$

onde:

$$\tau = C^{235} / C^{238}$$

A determinação do fluxo ϕ é evitada medindo-se a atividade de por ele induzida em fôlhas de Au cuja secção de choque ^(Go66) segue bem de perto a lei $1/v$. Têm-se: ^(Be64)

$$\phi = \frac{A}{\sigma^{\text{Au}}(\bar{v}) g^{\text{Au}}(T)} \quad (5)$$

onde $\sigma^{\text{Au}}(\bar{v})$ é a secção de choque de ativação do Au para nêutrons de velocidade \bar{v} , A é a atividade saturada induzida, por átomo de Au, e $g^{\text{Au}}(T)$ é o fator de correção que leva em conta o desvio em $\sigma^{\text{Au}}(v)$ da lei $1/v$.

Lembrando a relação dada pela lei $1/v$:

$$\sigma(\bar{v}) \bar{v} = \sigma_0 v_0 \quad (6)$$

onde σ_0 é a secção de choque para nêutrons de velocidade $v_0 = 2200$ m/s e, ainda, substituindo-se a expressão (5) na (4) chega-se a:

$$\lambda_F = \frac{\rho_e}{\rho_i} \frac{A \sigma_0^{235} g^{235}(T) I t}{\sigma_0^{\text{Au}} g^{\text{Au}}(T) \tau} \quad (7)$$

2 - Parte experimental

2a - Local das irradiações

Para estas medidas seria conveniente fazerem-se as irradiações em um fluxo de nêutrons puramente térmicos. Entretanto, como não se dispunha de tal fluxo, as irradiações foram feitas em um canal de irradiação - o canal radial 10 do reator IEA-R1 do Instituto de Energia Atômica de São Paulo - onde se conhece o espectro de nêutrons. O inconveniente em se utilizar este local para as irradiações está no fato do fluxo de nêutrons possuir no seu espectro uma componente epitérmica. A influência dessa componente, entretanto, pode ser indiretamente eliminada pelo método da dife

rença de cádmio, ^(Be64) irradiando-se as amostras aos pares - com e sem cobertura de cádmio. Foram utilizadas folhas de cádmio de 0,5 mm de espessura que absorve nêutrons de energia abaixo de 0,34 ev ^(Da57).

O espectro de nêutrons do canal 10 tem uma distribuição bem próxima à Maxwelliana, ^(Fu70) à temperatura $T = (351 \pm 8)$ °K, ^(Fu70) até aproximadamente a energia 0,34 ev. Foi feito um programa de computador para o cálculo da fração do fluxo de nêutrons com energia acima de 0,34 ev na distribuição Maxwelliana e verificou-se que essa fração é menor que 0,001. Com base neste resultado os fatores $g(T)$ foram calculados pela tabela de Westcott ^(We60) (que calcula essa correção considerando toda a Maxwelliana).

2b - Medida da atividade térmica induzida nas folhas de Au

O método de medida da atividade induzida que fornece melhor precisão no caso de folhas, ^(Ba65, Ax63) é o que utiliza o princípio de coincidência β - γ ^(Ba65, Ca59, Ca61).

As características do sistema de coincidência $4\pi\beta\gamma$ do Laboratório de Medidas Absolutas do IEA constam da tese de Doutorado da Dra. Lais P. de Moura ^(Mo69).

O Au foi escolhido como material detetor para as medidas de atividade por apresentar as seguintes características:

- 1) Sua secção de choque na região térmica segue bem aproximadamente a lei $1/v$, sendo que o valor de σ_0^{Au} é alto e conhecido com boa precisão ^(Go66).
- 2) O Au natural é constituído de um único isótopo, o ¹⁹⁷Au que por reação (n, γ) forma o ¹⁹⁸Au cuja meia vida é bem conhecida e cujo esquema de desintegra-

ção (Nu65) é adequado ao método de coincidência.

Para a escolha das dimensões das folhas de Au utilizadas no presente trabalho, levou-se em consideração as condições de contagem e de irradiação, isto é: 1) as folhas devem ser suficientemente grossas para que se tenha uma boa estatística de contagem e 2) suficientemente finas para que a eficiência do detetor β não seja muito baixa e para que não causem forte depressão de ativação (auto-blindagem).

O diâmetro das folhas foi fixado em 8 mm, dimensão máxima para que não haja variação da eficiência do detetor γ com o ponto de emissão da radiação (Pa67). Com este diâmetro, a espessura de folha que satisfaz as condições acima foi estabelecida em aproximadamente 100 mg/cm^2 .

A atividade térmica induzida nas folhas de Au é obtida através do método da diferença de cádmio. Além da correção $g^{\text{Au}}(T)$, foram feitas correções para auto proteção (fator F) (Ba65). Os valores obtidos para estas correções e os dados necessários para a medida da atividade do Au constam da tabela I.

TABELA I

$g(T) = 1,0085 \pm 0,0004$ (We60)		$\sigma_0(\text{Au}) = 98,8 \pm 0,3$ barns (Go66)		$T_{1/2}^{\text{Au}198} = 2,968 \pm 0,002$ dias (Le67)	
código da folha	massa (gr.)	diâmetro (cm)	espessura (mg/cm)	1/F	$A_t \times 10^{14}$ (dpm/átomo)
CM	0,048735	0,8	96,9552	1,012 (Ba65)	$1,146 \pm 0,007$
CM	0,048070	0,8	96,6322	1,012 (Ba65)	

2c - Obtenção das densidades de traços

A mica natural contém uma certa densidade de traços fósseis (F_{165}) resultantes da fissão espontânea do ^{238}U contido, em baixa concentração, na própria mica. No presente trabalho foram utilizadas somente micas de baixo "background" fóssil.

Para a preparação das amostras foram construídas caixas de plástico ($\sim 2 \times 2 \times 0,1 \text{ cm}^3$), onde foi colocada uma camada de urânio em contato com uma das faces de uma folha de mica. Estas amostras permaneceram seladas durante 4.216 anos para a obtenção de ρ_e . Como a camada de urânio depositada é maior que o alcance máximo dos fragmentos não houve necessidade de se levar em consideração a uniformidade das amostras.

Na contagem de traços verificou-se que estes obedeciam a distribuição estatística de Poisson, pela qual se calculou o desvio padrão.

Para a obtenção de ρ_i amostras idênticas foram expostas, assim que seladas, ao fluxo de nêutrons do canal de irradiação 10 ($\sim 10^6 \text{ n/cm}^2 \times \text{s}$). Foi testado o tempo ideal de irradiação para que não houvesse uma superposição de traços, verificando-se também ser desprezível a densidade de traços proveniente da fissão induzida no ^{235}U , contido na própria mica, para este tempo de irradiação.

As densidades de traços de fissão espontânea ρ_e ; de fissão induzida, ρ_i , na amostra nua; de fissão induzida, ρ_i^{cd} , na amostra coberta com cádmio bem como a densidade de traços fósseis ρ_b encontram-se na tabela III. Para a obtenção dessas medidas, as folhas de mica foram reveladas em HF(48,9%), durante 3 horas à temperatura de 23°C . Os traços foram contados em um microscópio óptico de tela de projeção (REICHERT-NR 303574) do IEA com aumento de 130X. Para delimitar-se a área a ser observada foi utilizado um

reticulado de unidade de área de $1,021 \text{ mm}^2$ colocado sobre a amostra. As contagens totais dos traços e as respectivas áreas observadas e os tempos de irradiação acham-se na tabela II.

TABELA II

-	ρ_e	ρ_i	ρ_i^{Cd}	ρ_{bg}
tempo de irradiação	-	4 min	25 min	-
traços totais	4577	35979	11992	607
área (cm) observada	2,338	2,849	2,665	5,401

TABELA III

$T = 4.216 \pm 0.001$ anos	$g^{235}(T) = 0.964 \pm 0.002$ (We60)	$\sigma_0^{235} = 577.1 \pm 0.9$ (Go66) barns	$I = 0.725 \times 10^{-2}$ (Le67)
ρ_e (tr./cm ²)	ρ_i (tr./cm ² x min)	ρ_i^{Cd} (tr./cm ² x min)	ρ_b (tr./cm ²)
2086 ± 30	3157 ± 17	180 ± 2	112 ± 11

As densidades tabeladas ρ_e , ρ_i e ρ_i^{Cd} contêm o "background" ρ_b .

As densidades ρ_i e ρ_i^{Cd} estão normalizadas para 1 minuto de irradiação.

2d - Conclusão

Usando a equação (7) e os dados das tabelas I e III, obteve-se:

$$\lambda_F = (7,30 \pm 0,16) 10^{-17} \text{ anos}^{-1}$$

A tabela IV dá os valores para λ_F obtidos por vários autores. Por essa tabela vê-se que o resultado obtido neste trabalho está em bom acôrdo com os de Kuroda et al. (Ku56, Ra66), Fleischer e Price (Fl64) e Roberts et al. (Ro68).

TABELA IV

Valôres encontrados em λ_F

INVESTIGADORES	MÉTODO	ANO	λ_F^*
Perfilov (Pe47)	Câmara de fissão	1947	$5,3 \pm 0,9$
Segrè (Se52)	Câmara de fissão	1952	$8,7 \pm 0,3$
Kuroda et al. (Ku56)	Radioquímico	1956	$6,7 \pm 0,6$
Parker e Kuroda (Pa57)	Radioquímico	1957	$8,7 \pm 0,5$
Gerling et al. (Ge59)	Radioquímico	1959	$11,9 \pm 1,0$
Kuz'minov et al. (Ku60)	Câmara de fissão	1960	$10,7 \pm 0,5$
Fleischer e Price (Fl64)	SSTR**	1964	$6,6 \pm 0,8$
	Datação pelo ^{40}K e ^{87}Rb	1964	6,9
Rao e Kuroda (Ra66)	Radioquímico	1966	$7,8 \pm 0,9$
Roberts et al. (Ro68)	SSTR**	1968	$7,03 \pm 0,11$

* Unidades de 10^{-17} anos⁻¹

** Solid State Track Recorders

Agradecimentos

Queremos agradecer ao Dr. R. Fulfaro por ter-nos fornecido o espectro e a temperatura dos nêutrons térmicos do canal de irradiação 10 e à Dra. L.P. Moura por sua assistência na medida da atividade.

ABSTRACT

In this paper the fission track method is used to determine the decay constant λ_F for spontaneous fission of ^{238}U . This method requires the following measurements: a) number of spontaneous fission tracks of ^{238}U ; b) number of induced fission tracks of ^{235}U due to thermal neutrons and c) the thermal neutron flux. The direct neutron flux determination is avoided by measuring instead the activity induced by this flux in a material with cross section obeying the $1/v$ law. Samples of natural uranium in contact with mica sheets remained sealed about four years. The decay constant was found to be $\lambda_F = (7.30 \pm 0.16)10^{-17}\text{y}^{-1}$.

Referências

- (Axó3) - E.J. Axton, Reactor Science and Technology 17, A/B, (1963) 125.
- (Ba65) - N.P. Baumann e M.B. Strond, Nucleonics 23 (1965) 98.
- (Ba66) - A.P. Baerg - Metrologia 2 (1966) 23.
- (Be64) - K.H. Beckurtz and K. Wirtz - "Neutron Physics" (ed. Springer-Verlag, 1964).
- (Ca59) - P.J. Campion, IJARI, 4 (1959) 232.
- (Ca61) - P.J. Campion, J.G.V. Taylor, IJARI 10 (1961) 131.
- (Da57) - D.I.E. Dayton e W.G. Pettus - Nucleonics V. 15, nº 12 , (1957) 86.
- (Fl64) - R.L. Fleischer and P.B. Price, Phys. Rev. 133 (1964)B63.
- (Fl65) - R.L. Fleischer, P.B. Price and R.M. Walker, Ann. Rev. Nucl. Sci. 15 (1965) 1.
- (Fu70) - R. Fulfaro, Tese de Doutorado (Departamento de Física, Universidade Estadual de Campinas, outubro de 1970).
- (Ge59) - E.K. Gerling, Yu. A. Shukwhyukov e B.A. Makarochkin, Radiokhimiya 1 (1959) 223.
- (Go66) - M.D. Goldberg et al., BNL 325 (2nd ed.) (Supp. nº 2) (1966).
- (Ku56) - P.K. Kuroda, R.R. Edwards e F.T. Ashizawa, J. Chem.Phys. 25 (1956) 603.
- (Ku60) - B.D. Kuz'minov et al., Soviet Phys. JETP 10 (1960) 290.
- (Le67) - C.M. Lederer, J.M. Hollander e J. Perlman - Table of Isotopes 6th edition - John Wiley and Sons, Inc. 1967.
- (Mo69) - L.P. Moura, Tese de Doutorado (Departamento de Física, Universidade Estadual de Campinas, dezembro de 1969).

- (Nu65) - Nuclear Data Sheets, National Research Council, National Academy of Sciences, USA (1959 a 1965).
- (Pa57) - P.L. Parker e P.K. Kuroda, J. Inorg. Nucl. Chem. 5 (1957) 153.
- (Pa67) - I. Paternot, Rapport CEA-R3166 (Tese de 3º Ciclo, fevereiro 1967).
- (Pe47) - N.A. Perfilov, Zh. Eksperim.i Teor. Fiz. 17 (1947) 746.
- (Pr62a) - P.B. Price e R.M. Walker, J. Appl. Phys. 33 (1962) 3407.
- (Pr62b) - P.B. Price e R.M. Walker, Phys. Letters 3 (1962) 113.
- (Ra66) - M.N. Rao e P.K. Kuroda, Phys Rev. 147 (1966) 884.
- (Ro68) - J.H. Roberts, R. Gold e R.J. Armani, Phys. Rev. 174 (1968) 1482.
- (Se52) - E. Segrè, Phys. Rev. 86 (1952) 21.
- (We60) - C.H. Westcott - AECL 1101 e adendum (1960).

