



HAL
open science

Sur les rayonnements émis au cours de la transmutation $\text{RAc} \rightarrow \text{AcX}$. Première partie

Marcel Frilley, Salomon Rosenblum, Manuel Valadares, Georges Bouissieres

► To cite this version:

Marcel Frilley, Salomon Rosenblum, Manuel Valadares, Georges Bouissieres. Sur les rayonnements émis au cours de la transmutation $\text{RAc} \rightarrow \text{AcX}$. Première partie. *Journal de Physique et le Radium*, 1954, 15 (1), pp.45-49. 10.1051/jphysrad:0195400150104500 . jpa-00234846

HAL Id: jpa-00234846

<https://hal.science/jpa-00234846>

Submitted on 4 Feb 2008

HAL is a multi-disciplinary open access archive for the deposit and dissemination of scientific research documents, whether they are published or not. The documents may come from teaching and research institutions in France or abroad, or from public or private research centers.

L'archive ouverte pluridisciplinaire **HAL**, est destinée au dépôt et à la diffusion de documents scientifiques de niveau recherche, publiés ou non, émanant des établissements d'enseignement et de recherche français ou étrangers, des laboratoires publics ou privés.

SUR LES RAYONNEMENTS ÉMIS AU COURS DE LA TRANSMUTATION RAC → Ac X.

PREMIÈRE PARTIE

PAR MARCEL FRILLEY, SALOMON ROSENBLUM,
MANUEL VALADARES et GEORGES BOUSSIÈRES,

Laboratoire Curie, Paris,
Laboratoire du Grand aimant permanent, Bellevue.

Sommaire. — Une étude critique des données de la structure fine α , du spectre γ de diffraction et du spectre magnétique des électrons de conversion du RAc conduit, pour la région des émissions γ inférieures à 100 keV à une interprétation nouvelle. Cette interprétation, fondée sur les plus récents calculs concernant la conversion interne est contrôlée au moyen de nouvelles mesures précises du spectre de conversion, faites avec une source de RAc très pure. On arrive à un accord satisfaisant entre les hypothèses proposées et les résultats expérimentaux.

La confrontation des résultats relatifs aux rayonnements du RAc, obtenus par différentes méthodes, a fait apparaître certaines difficultés d'interprétation et des anomalies qu'il a été jusqu'à présent impossible d'expliquer [1]. A la lumière de calculs numériques récemment effectués sur la conversion interne [2], il nous a semblé que des hypothèses relatives aux rayonnements γ pouvaient être formulées qui résoudraient un certain nombre des problèmes ainsi posés. Pour que ces hypothèses soient sérieusement fondées il était nécessaire de compléter les données acquises par des mesures précises, faites avec des sources de RAc très pures. En effet, la complexité des spectres et les limites d'erreur admises jusqu'à présent sur certains résultats étaient telles qu'une interprétation nouvelle pouvait se trouver en accord avec l'expérience par le seul effet du hasard. Notre exposé concerne seulement les rayonnements qui se rattachent aux émissions γ d'énergie inférieure à l'énergie d'excitation du niveau K ($Z = 88$) de AcX. Les autres régions feront l'objet d'une étude ultérieure.

1. Résultats obtenus antérieurement par différentes méthodes. — 1° SPECTROGRAPHIE MAGNÉTIQUE DES RAYONS α . — L'étude de la structure fine du rayonnement α émis par RAc a permis d'observer les raies ci-dessous [3] :

TABLEAU I.

Raies α .	Énergie (keV).	Intensité (pour 100).	Raies α .	Énergie (keV).	Intensité (pour 100).
10.....	5 651	~ 2	4.....	5 922	~ 2
9.....	5 704	15	3.....	5 952	13
8.....	5 728	~ 1	2.....	5 972	21
7.....	5 749	17	1.....	6 001	5
6.....	5 796	2	0.....	6 030	19
5.....	5 860	4			

2° SPECTROGRAPHIE PAR DIFFRACTION CRISTALLINE DES RAYONS γ . — La région spectrale d'énergie inférieure à 100 keV est particulièrement favorable

à l'utilisation de cette méthode. Les résultats ci-dessous ont été obtenus [4] :

TABLEAU II.

λ (U.X.).	$h\nu$ (keV).	Intensité.
156.....	79,5	Faible
218.....	57	Faible
247,5.....	50	Très forte

3° SPECTROGRAPHIE MAGNÉTIQUE DES ÉLECTRONS SECONDAIRES. — *a. Mesures d'énergie.* — Les raies électroniques enregistrées par Hahn et Meitner [5], Surugue [6], Ouang et Surugue [7] dans la région qui nous intéresse actuellement figurent plus loin dans le tableau III avec nos propres résultats.

b. Mesures d'intensité. — La raie correspondant à la conversion du rayonnement de 61,6 keV dans le niveau L_I (L_{II} dans l'hypothèse présentée ci-dessous) a une intensité de $4 \cdot 10^{-4}$ électrons/désintégration [7].

Celle résultant de la conversion dans L_I du rayonnement de 50 keV aurait par comparaison avec la précédente une intensité 20 fois plus faible [7].

4° INTENSITÉ DU RAYONNEMENT γ DE 50 keV. — La mesure absolue du nombre de photons par désintégration a donné les valeurs [8] :

Tsien.....	$3,0 \pm 0,6 \cdot 10^{-2}$
Bachelet et Savel.....	$5 \pm 2,5 \cdot 10^{-2}$
Riou.....	$2,9 \pm 0,8 \cdot 10^{-2}$

2. Confrontation des résultats anciens. —

1° STRUCTURE FINE α ET ÉNERGIES γ . — Les données de la structure fine ne sont pas en contradiction avec les valeurs des énergies γ , mais les limites d'erreur sont telles qu'un schéma de niveaux ne peut pas être établi avec certitude, particulièrement en ce qui concerne les deux premiers niveaux au-dessus du niveau fondamental.

TABLEAU III.

Hahn et Meitner.		Surugue.		Ouang et Surugue.		HR.	Intensité.	Énergie. (keV).	Observations.		
HR.	I.	HR.	I.	HR.	I.						
-	-	-	-	-	-	351,6	tf	10,77			
*378	20	359	0,25	-	-	362,4	m	11,43			
-	-	-	-	-	-	377,7	tf	12,41			
-	-	383	0,05	-	-	389,0	f	13,15			
*407	30	416	< 0,05	-	-	408,7	F	14,48			
*429	20	(430)	< 0,05	-	-	432,7	m	16,21			
-	-	525	1,5	529	6	-	-	-	(1)		
534	50	540	0,05	540	}	1,7	{	543,8	F	25,40	Raie large
*543	20	549	0,1	549				551,8	F	26,13	
551	15	557	0,05	557	0,7	560,6	m	26,95	Raie large (double)		
*561	10	568	0,05	568	< 0,5	570,2	m	27,86			
*571	25	578	0,3	575	1,9	580,9	F	28,88			
*580	15	587	0,1	585	1,1	589,8	m	29,75			
*590	30	598	0,06	597	2,2	601,4	F	30,90	Raie large		
*596	20	607	0,05	603	< 1	609,6	F	31,72			
*611	15	616	0,07	615	1	620,6	m	32,85			
624	15	-	-	-	-	-	-	-			
630	40	631	0,7	635	14,4	638,6	F	34,72			
-	-	-	-	640	1	-	-	-			
652	10	662	0,2	666	2	660	tf	37,0			
675	10	678	0,05	677	1	683	tf	39,5			
-	-	(696)	< 0,05	-	-	-	-	-			
707,5	90	711	10	711	45	714,4	tF	43,10			
732	100	736	60	736	265	740,2	tF	46,14	(2)		
-	-	-	-	-	-	747,7	f	47,04			
759	20	763	}	}	}	767,4	F	49,43	Raie large : (3)		
-	-	768				0,6	-	-	774,7	m	50,34
-	-	784	0,1	-	-	-	-	-			
-	-	793	0,05	-	-	798,1	m	53,28			
822,5	70	825	0,4	-	-	826,8	F	56,99			
-	-	830	0,05	-	-	833,4	F	57,85			
846	50	852	4,5	-	-	853,5	F	60,53	(4)		
-	-	859	0,07	-	-	860,5	f	61,47			

(1) Sur nos clichés obtenus avec une source fraîche de RAc on n'observe aucune raie à cet endroit (fig. 1). Au fur et à mesure que les descendants s'accroissent on voit apparaître une raie de HR = 529,2 Oe. cm. Hahn et Meitner ont observé dans le spectre de l'Ac X → An une raie intense de HR = 524 Oe. cm.

(2) Avec une source de RAc exempte de dérivés, nous obtenons le rapport des intensités des raies de HR = 714,4 et HR = 740,2 Oe. cm égal à 9 : 10 en parfait accord avec les valeurs données par Hahn et Meitner (90 : 100) : lorsque les descendants s'accroissent, la raie de HR = 740,2 augmente d'intensité par rapport à la raie de HR = 714,4 (fig. 2), Hahn et Meitner ont observé dans le spectre de l'AcX → An une raie intense de HR = 732 Oe. cm.

(3) Surugue attribue ces deux raies au dépôt actif : nous les classons dans le spectre RAc → Ac X.

(4) Cette raie, appartenant au spectre RAc → Ac X, coïncide avec une raie d'un descendant; Hahn et Meitner donnent dans le spectre de l'AcX → An une raie intense de HR = 845 Oe. cm.

* Mesures peu précises.

() Raies observées par Surugue mais auxquelles il n'a pas attribué d'origine.

2° DIFFRACTION. SPECTROGRAPHIE DES ÉLECTRONS SECONDAIRES. — La diffraction met en évidence l'anomalie la plus apparente : Alors que divers rayonnements γ avaient été déduits des spectres magnétiques d'électrons et parmi eux un rayonnement très intense de 61 keV, une seule raie diffractée présente une grande intensité, celle de 50 keV. La diffraction ne donne pas de raie de 61 keV, tandis qu'on ne peut trouver dans les spectres magnétiques que des raies faibles qui

correspondent à l'émission intense de photons de 50 keV. A ce rayonnement correspondrait un rapport $\frac{NeL_1}{N\gamma} = 7 \cdot 10^{-4}$ très inférieur aux valeurs habituelles dans ce domaine d'énergie [1], [7] (en prenant $N\gamma = 3 \cdot 10^{-2}$).

3. Nouvelles mesures et leur interprétation.

— 1° PRÉPARATION DES SOURCES DE RAc. — Hagemann [8] a établi, en vue de la séparation et

TABLEAU IV.

Energies (keV).			Rayonnements γ .		
Electrons de conversion.	Niveau $Z = 88$.	$h\nu$.	$h\nu$ valeurs moyennes.	Nature, polarité.	
10,77	19,23 (L_I)	30,00	29,97	E ₂	Rapport des intensités exp. $L_{II} : L_{III} = 1 : 3$ (L_I très faible) calculé par extrapolation : $L_{II} < L_{III}$
11,43	18,48 (L_{II})	29,91			
14,48	15,44 (L_{III})	29,92			
25,40	4,66 ($M_{I,II}$)	30,06			
26,13	3,79 (M_{III})	29,92			
28,88	1,13 ($N_{I,II}$)	30,01			
29,75	0,20 (O_{II})	29,95	31,64	E ₂ (1)	Rapport des intensités (2) exp. $L_{II} : L_{III} = 1 : 3$ (L_I très faible) calculé par extrapolation : $L_{II} < L_{III}$
12,41	19,23 (L_I)	31,64			
13,15	18,48 (L_{II})	31,63			
16,21	15,44 (L_{III})	31,65			
26,95	4,66 ($M_{I,II}$)	31,61			
27,86	3,79 (M_{III}) ¹	31,65			
30,90	19,23 (L_I)	50,13	50,16	E ₁	Rapport des intensités exp. $L_I : L_{II} : L_{III} = 7 : 8 : 10$ calculé = 96 : 85 : 100 (3)
31,72	18,48 (L_{II})	50,20			
34,72	15,44 (L_{III})	50,16			
43,10	18,48 (L_{II})	61,58	61,63	E ₂	Rapport des intensités (4) exp. $L_{II} : L_{III} = 9 : 10$ H et M = 90 : 100 O et S = 17 : 100 calculé = 116 : 100
46,14	15,44 (L_{III})	61,58			
56,99	4,66 ($M_{I,II}$)	61,65			
57,85	3,79 (M_{III})	61,64			
60,53	1,13 ($N_{I,II}$)	61,66			
61,47	0,20 (O_{II})	61,67			
49,43	19,23 (L_I)	68,66	68,67	(5)	
50,34	18,48 (L_{II})	68,62			
53,28	15,44 (L_{III})	68,72			

(1) La raie de conversion en $N_{I,II}$ (30,50 keV) doit être cachée par la raie de 30,90 keV qui est, d'ailleurs, une raie large; de même pour la raie O_{II} (31,43 cachée par 31,72).

(2) Les raies de conversion du rayonnement de 29,97 keV sont, pour les niveaux correspondants, toujours plus intenses que les raies de conversion du rayonnement de 31,64 keV. Comme les coefficients de conversion de ces deux rayonnements doivent avoir sensiblement la même valeur, étant donné le faible écart des énergies, on doit conclure que la transition de 29,97 keV est plus fréquente que celle de 31,64 keV.

(3) Les raies de conversion de ce rayonnement dans les niveaux $M_{I, II, III}$ sont cachées par la raie très intense de 46,14 keV; la raie de 47,04 keV correspond, peut-être, à la conversion de ce rayonnement dans les niveaux M_{IV} (46,92) et M_V (47,07).

(4) La détermination du rapport des intensités $\frac{L_{II}}{L_{III}}$ ne peut pas être très précise parce qu'il y a une raie dans le spectre des produits descendants qui coïncide avec la raie de 46,14 keV. Ce fait explique le faible rapport trouvé par O et S. Il semble que la source de Rac employée par ces auteurs contenait déjà un pourcentage important de dérivés de Rac.

(5) Dans la zone spectrale que nous avons examinée restaient à classer les raies suivantes : 32,85 (m), 37,0 (tf) 39,5 (tf) 49,43 (F), 50,34 (m) et 53,28 (m) keV. On serait tenté de classer les trois dernières raies comme correspondant à la conversion d'un dipôle électrique : cette interprétation se heurte pourtant au fait qu'un tel rayonnement n'a pas été observé par diffraction cristalline.

On doit remarquer encore que certaines raies, surtout dans la région de HR 543,8 à 638,6 sont peut-être la superposition de raies correspondant à la conversion de plusieurs rayonnements.

de la purification de l'actinium produit par irradiation neutronique du radium, les courbes d'extraction avec une solution benzénique de TTA (thénoyl-trifluoroacétone) de Tl, Po, Bi, Pb, Ra, Ac et Th.

Des résultats de cet auteur, il ressort que à pH 1 seul Th est extrait, les autres éléments ne s'extrayant qu'à des pH plus élevés. L'application de ces données nous a permis de préparer à partir d'une solution de lanthane actinifère contenant 2 mC de Ac, 250 mg de La Cl_3 et 10 mg de Ba Cl_2 dans 2 cm³

$\text{HCl N}/10$, plusieurs sources de Rac sans matière et exempt de dérivés.

Rac était extrait de la solution-mère par une solution benzénique 0,25 M de TTA (agitation 30 mn). Puis la phase benzénique était décantée et lavée, deux fois pendant 5 mn, avec $\text{HCl N}/10$. Rac était ensuite réextrait avec un petit volume de $\text{HCl } 2\text{N}$ que l'on agitait pendant 15 mn avec la solution organique. Après lavage avec du benzène pur, une partie de la solution chlorhydrique de Rac était

évacuée sous une lampe à infrarouge dans une rainure de $25 \times 1 \times 0,5$ mm pratiquée sur une plaque de plexiglas. Après accumulation de RAc dans la solution HCl N/10 de lanthane actinifère, on pouvait procéder directement à une nouvelle extraction.

2° NOUVELLES MESURES AVEC UN SPECTROGRAPHE MAGNÉTIQUE A GRANDE DISPERSION. — L'utilisation de l'aimant permanent pour l'étude des rayons β de

Bellevue a permis d'obtenir des spectres d'électrons secondaires avec une dispersion élevée. Les raies obtenues figurent dans le tableau III, page 46 (colonnes 7, 8, 9). Pour la mesure des HR, nous avons utilisé comme étalons les raies A — HR 533,66 et F — HR 1388,55 du spectre d'électrons de conversion du Th (B + C + ...) [10].

Compte tenu des énergies de liaison connues maintenant avec une précision satisfaisante [11],

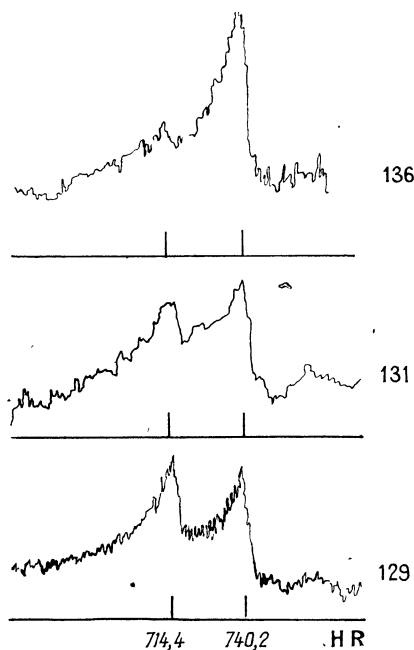
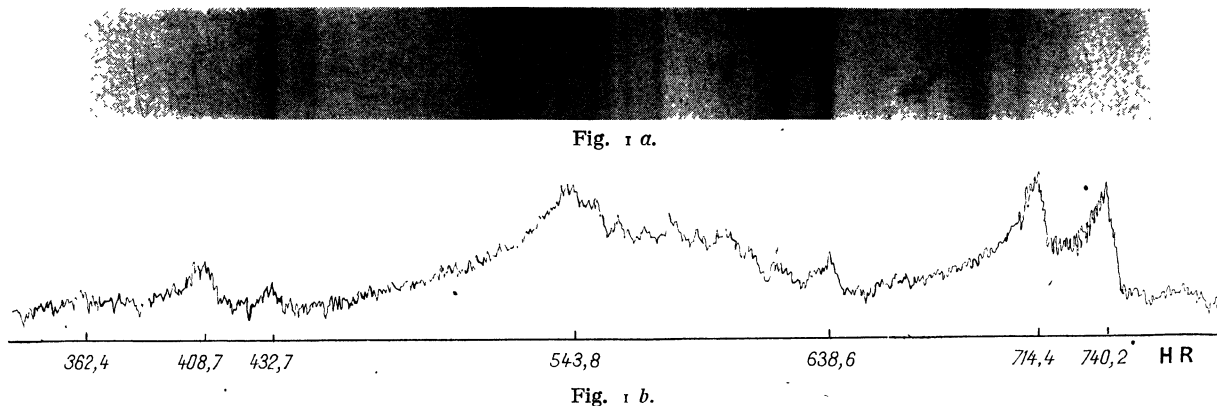


Fig. 2.

129, 2 h après purification de la source;
 131, 31 h " " "
 136, 33 j " " "

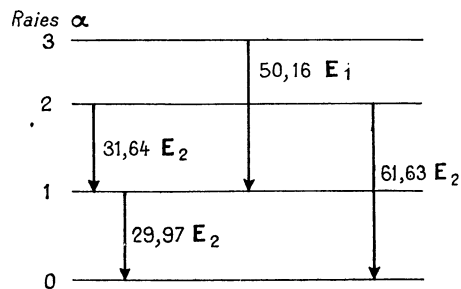


Fig. 3.

à croire qu'ils doivent correspondre à des passages entre des niveaux rapprochés du niveau fondamental. C'est pourquoi nous mettons en jeu seulement les niveaux correspondant aux raies $\alpha_0, \alpha_1, \alpha_2$ et α_3 pour interpréter ces rayonnements γ .

On remarquera que la somme des énergies des deux rayonnements de 29,97 et 31,64 keV, égale à 61,61 keV, équivaut à l'énergie du rayonnement de 61,63 keV (la différence de 20 eV étant inférieure aux erreurs de mesures sur les trois raies).

La diffraction cristalline a mis en évidence, dans la région située au-dessous de 100 keV, outre le rayonnement très fort de 50 keV deux rayonnements faibles de 57 et 79,5 keV. Les raies de conversion L du rayonnement de 57 keV tombent dans la région de HR 660 à 700; on y observe quelques raies

l'interprétation des spectres ne laisse place à aucune ambiguïté (tableau IV).

3° SCHÉMA DES NIVEAUX. — Les résultats ci-dessus permettent de préciser le schéma (fig. 3) suggéré par l'étude de la structure fine α (tableau I).

très faibles, mais leur mesure est trop imprécise pour permettre d'affirmer qu'il s'agit, en effet, des raies de conversion de ce rayonnement.

Les raies de conversion du rayonnement de 79,5 keV sont voisines de raies intenses ou moyennes, ce qui rend difficile leur observation. On doit en tout cas remarquer que le passage du niveau 3 au niveau fondamental correspond à $50,16 + 29,97 = 80,13$ keV en bon accord avec la détermination par spectrographie cristalline. Il est probable, par conséquent, que le rayonnement émis dans ce passage est un dipôle électrique ayant, comme tel, un coefficient de conversion très faible.

4° CONVERSION INTERNE. — Les résultats obtenus sont satisfaisants quant aux énergies et aux rapports d'intensités entre les raies correspondant à la conversion interne de chaque rayonnement γ dans différents niveaux.

Les rayonnements de 29,97, 31,64 et 61,63 keV étant classés comme E_2 sont fortement convertis. Ils correspondent à des nombres de photons $N\gamma$ très petits, tels que ces photons ne sont pas observables par diffraction.

Par contre, le rayonnement de 50 keV, classé comme E_1 , doit avoir un rapport $\frac{Ne}{N\gamma}$ beaucoup plus petit.

Les données de la structure fine α , la nature et la polarité, déterminées ci-dessus, des rayonnements de 50 et 61,6 keV permettent d'établir que le rayonnement de 50 keV a un coefficient de conversion conforme aux prévisions théoriques.

Pour le calculer, nous admettrons quelques

hypothèses simplificatrices. D'abord, nous ne tiendrons compte que de la partie du schéma de niveaux constituée par le niveau fondamental et les trois premiers niveaux (fig. 3), en négligeant les passages des niveaux supérieurs vers les niveaux 3 (départ du rayonnement de 50 keV) et 2 (départ du rayonnement de 61,6 keV).

Nous admettrons ensuite que le niveau 3 se désexcite seulement par le passage $3 \rightarrow 1$ car on n'a pas observé de rayonnement correspondant au passage $3 \rightarrow 2$ et le rayonnement $3 \rightarrow 0$ est très faible par rapport à $3 \rightarrow 1$. En ce qui concerne le niveau 2, nos recherches montrent qu'il peut se désexciter directement vers 0 ou par la cascade $2 \rightarrow 1 \rightarrow 0$. Nous affecterons des probabilités égales à ces deux processus.

Nous pouvons alors calculer le rapport théorique des intensités des raies HR 601,4 et HR 714,4 en utilisant seulement comme données expérimentales les intensités des niveaux 3, 2 et 1 de la structure fine α (tableau V).

Expérimentalement, nous avons trouvé ce rapport égal à $\frac{1}{3}$ (fig. 1). Ce parfait accord doit d'ailleurs être considéré comme fortuit, étant donné les hypothèses simplificatrices que nous avons faites. Cependant, Hahn et Meitner, déjà, avaient trouvé pour les intensités des deux raies les valeurs 30 et 90 [5].

On peut donc considérer comme cohérents les résultats concernant la région que nous avons étudiée des spectres de Rac et notamment, on peut conclure que le rapport entre le coefficient de conversion du rayonnement γ de 50 keV (E_1) et celui du rayonnement de 61,6 keV (E_2) est normal

TABLEAU V.

Rayonnement γ de 50 keV (E_1).		Rayonnement γ de 61,6 keV (E_2).	
Intensité structure fine α		Intensité structure fine α	
niveau 3.....	13%	niveau 2.....	21%
passage $3 \rightarrow 1$	13%	passage $2 \rightarrow 0$	$\frac{21}{2} = 10,5\%$
$\frac{NeL}{N\gamma}$ (théorique).....	$\approx 0,6$	$\frac{NeL}{N\gamma}$ (théorique).....	≈ 80
NeL (théorique).....	$\approx 5\%$	NeL (théorique).....	$\approx 10\%$
NeL_I (raie HR 601,4).....	$\frac{NeL}{3} = \frac{5}{3} \approx 1,7\%$	NeL_{II} (raie HR 714,4).....	$\frac{NeL}{2} = \frac{10}{2} \approx 5\%$
	$\frac{Ne(HR 601,4)}{Ne(HR 714,4)}$ (théorique) $\approx \frac{1,7}{5} \approx \frac{1}{3}$.		

Manuscrit reçu le 18 juillet 1953.

BIBLIOGRAPHIE.

- [1] FRILLEY M., SURUGUE J. et TSIEN SAN-TSIANG. — *J. Physique Rad.*, 1946, **7**, 350.
 [2] GELLMAN H., GRIFFITH B. A. et STANLEY J. P. — *Phys. Rev.*, 1952, **85**, 1944.
 [3] ROSENBLUM S., VALADARES M., PEREY M. et GUILLOT M. — Mesures effectuées au Laboratoire du Grand aimant permanent à Bellevue, publiées dans *Tables of Isotopes*, 1952, par HOLLANDER, PERLMAN et SEABORG.
 [4] FRILLEY M. — *J. Physique Rad.*, 1940, **1**, 34.
 [5] HAHN O. et MEITNER L. — *Z. Physik*, 1925, **34**, 795.
 [6] SURUGUE J. — *Ann. Physique*, 1937, **8**, 484.
 [7] OUANG TE-TCHAO et SURUGUE J. — *C. R. Acad. Sc.*, 1944, **218**, 591.
 OUANG TE-TCHAO, SURUGUE J. et PEREY M. — *C. R. Acad. Sc.*, 1944, **218**, 190.
 [8] TSIEN SAN-TSIANG. — *C. R. Acad. Sc.*, 1943, **217**, 685.
 BACHELET M. et SAVEL P. — *Cahiers de Physique*, 1944, **19**, 51.
 RIOU M. — *J. Physique Rad.*, 1950, **11**, 185.
 [9] HAGEMAN. — *J. Amer. Chem. Soc.*, 1950, **72**, 768.
 [10] CRAIG. — *Phys. Rev.*, 1952, **85**, 688.
 LINDSTROM. — *Phys. Rev.*, 1951, **83**, 465.
 [11] CAUCHOIS Y. — *J. Physique Rad.*, 1952, **13**, 113.