



HAL
open science

Production de tritium dans le thorium par des protons de 135 MeV

M. Lefort, G. Simonoff, X. Tarrago, R. Bibron

► **To cite this version:**

M. Lefort, G. Simonoff, X. Tarrago, R. Bibron. Production de tritium dans le thorium par des protons de 135 MeV. *Journal de Physique et le Radium*, 1959, 20 (12), pp.959-962. 10.1051/jphys-rad:019590020012095900 . jpa-00236173

HAL Id: jpa-00236173

<https://hal.science/jpa-00236173>

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.

PRODUCTION DE TRITIUM DANS LE THORIUM PAR DES PROTONS DE 135 MeV

Par M. LEFORT, G. SIMONOFF et X. TARRAGO

Laboratoire de Physique Nucléaire, Orsay

et R. BIBRON,

Centre d'Études Nucléaires de Saclay.

Résumé. — On a mesuré la section efficace de production de tritium après bombardement de thorium par des protons de 135 MeV accélérés au synchro-cyclotron d'Orsay. Le tritium était extrait des cibles par chauffage, dans un creuset de graphite, par courants H. F. sous atmosphère d'hydrogène. L'hydrogène tritié était ensuite transformé en eau tritiée et le tritium mesuré au moyen de scintillateur liquide. La section efficace obtenue est de $19,5 \pm 0,5$ mbarns et dix pour cent des tritons ont une énergie supérieure à 35 MeV. On attribue cette production à un processus de double pick-up.

Abstract. — We have measured the cross-section of tritium production by bombardement of thorium by 135 MeV protons in the Orsay synchro-cyclotron. The tritium was separated from the targets by heating in a graphite crucible with a high-frequency generator, under hydrogen gas pressure. Tritiated water was synthesised and the tritium was measured with liquid scintillator. A value of 19.5 ± 0.05 mbarns was obtained for the tritium-cross section and ten percent of tritons have energies higher than 35 MeV. This large cross-section is attributed to a double pick-up process.

La production de tritium dans les réactions nucléaires a été signalée par plusieurs auteurs. En particulier, Wade et al. [1] ont montré que les particules alpha accélérées à 48 MeV produisaient sur l'or, le thorium et l'uranium du tritium avec une section efficace (α, t) plus grande que celle de la réaction ($\alpha, p 2n$) qui conduit aux mêmes noyaux résiduels. Ces résultats ont été interprétés en supposant que la particule α perd un proton pendant la traversée du noyau. Dans le cas de bombardement par protons ou deutons, le mécanisme inverse du stripping a été envisagé. Au cours des cascades d'interaction directe, le proton incident capterait dans le noyau cible un ou deux neutrons (pick-up et double pick-up).

Les recherches sur la formation de tritium par bombardement de protons d'énergies élevées ont été inaugurées par Barkas et Tyren [2] sur le beryllium et le carbone à 330 MeV, par Harvey [3] sur divers éléments lourds à moins de 25 MeV et par Cohen et Handley [4] sur le beryllium, le fer, le palladium et le niobium, à 22 MeV. Fireman et Rowland [5] ont déterminé les sections efficaces des réactions $N(p, t)$ et $O(p, t)$ à 2,2 BeV en vue de recherches sur l'abondance du tritium dans l'atmosphère et sur sa production par les rayons cosmiques. Currie, Libby et Wolfgang [6] ont trouvé que la formation de tritium à 450 MeV passe de 7,3 mbarns dans le carbone à 71 dans le plomb. Kuznetsov et Mekhedov [7] ont étudié cette production pour des énergies de protons allant de 120 à 660 MeV et avec diverses cibles allant de l'aluminium au plomb. Goebel [8] a trouvé récemment une section efficace variant de 4 mb à 6,6 mb en bom-

bardant le fer par des protons de 50 à 170 MeV.

D'après les calculs élaborés sur la désexcitation des noyaux composés ou des noyaux résiduels par évaporation de nucléons, l'émission de tritons par ce processus est peu probable pour des énergies de protons incidents inférieures à 150 MeV. L'étude expérimentale des sections efficaces de production de tritium et de la distribution en énergie et en angle de tritons émis nous a semblé intéressante. D'autre part, lorsqu'on étudie par voie radiochimique les divers noyaux résiduels des réactions de spallation, les sections efficaces correspondantes aux réactions ($p, p2n$) doivent être attribuées en réalité à la somme ($p, p 2 n$) (p, dn) et (p, t). La mesure du tritium est donc utile pour l'étude que nous avons entreprise sur la spallation du thorium.

Au cours de ce premier travail nous nous sommes efforcés de mettre au point une nouvelle méthode rapide et fidèle d'extraction et de mesure du tritium produit dans les cibles et nous avons déterminé la section efficace absolue dans le thorium 232 bombardé par des protons de 135 MeV. Nous avons obtenu quelques indications sur l'énergie des tritons formés.

1. Conditions d'irradiation. — On a irradié au synchrocyclotron en faisceau interne et en faisceau externe, des empilements de feuilles de thorium laminées à 0,1 mm d'épaisseur. Pour être certain de recueillir entièrement le tritium, on a dû placer en avant une pastille de thorium beaucoup plus épaisse de 5 mm (*fig. 1*). En effet des essais préliminaires nous avaient montré que la plus grande partie des tritons produits dans une feuille

de 0,1 mm ont une énergie suffisante pour s'échapper de celle-ci et traverser plusieurs dixième de millimètre de thorium. On verra au delà des

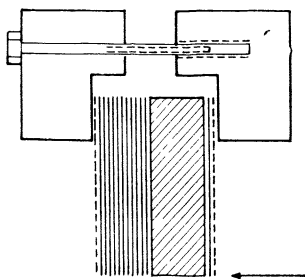


FIG. 1. — Empilement des feuilles de thorium pour irradiation en faisceau interne.

5 mm de thorium les résultats obtenus sont très reproductibles lorsqu'on passe d'une feuille à la suivante ; ceci indique que le tritium échappé est compensé par celui provenant des feuilles placées en avant. On peut donc ainsi convenablement mesurer la section efficace de production de tritium dans une épaisseur donnée de thorium.

L'ensemble de l'empilement était placé entre deux feuilles d'aluminium servant de moniteurs pour la mesure du flux des protons incidents et sortants. Cette mesure est obtenue par comptage des désintégrations β^- du sodium 24 produit par réaction (p, $3p$ n) dans 27 Al. L'étalonnage absolu du compteur utilisé a été fait avec diverses sources

étalons de sodium 24 . La section efficace de la réaction (p, $3p$ n) est de 9,2 mbarns pour des protons de 155 MeV d'après Hicks et al. [9]. Elle augmente légèrement lorsque l'énergie des protons baisse. On a calculé qu'après 6 millimètres de thorium l'énergie des protons est abaissée à 135 MeV. La section efficace pour 24 Na est alors de 9,7 mbarns. Nos résultats de comptage sur les feuilles d'aluminium ont donné effectivement des valeurs supérieures d'environ 5 % pour les feuilles placées à l'arrière du thorium.

MESURES EN FAISCEAU INTERNE. — Diverses mesures sur les feuilles d'aluminium irradiées en faisceau interne ont montré que les dimensions de ce dernier correspondaient à environ 3 mm sur 20 mm. Les feuilles de thorium avaient 15×15 mm de sorte que seule une bordure de 3 mm recevait le faisceau intense de protons. Pour apprécier grossièrement la part des tritons produits dans l'axe du faisceau et celle des tritons émis sous un certain angle en dehors du trajet des protons, on a découpé après irradiation les feuilles de thorium en plusieurs parties. En mesurant le tritium dans chacune de ces portions on a pu calculer la section efficace dans la zone soumise au bombardement du faisceau, et dans des zones plus ou moins éloignées.

MESURE EN FAISCEAU EXTERNE. — A la sortie du synchrocyclotron, le faisceau externe a une sec-

TABLEAU I illustrant une série de mesures.

N° DE LA FEUILLE DE THORIUM	DÉCOUPAGE	COUPS/MINUTE	SECTION EFFICACE EN MB APRÈS CORRECTIONS	SECTION EFFICACE TOTALE
2	3 mm	12 720	12,4	19,2
2	6	3 700	3,1	
2	6	320	0,34	
3	4	10 300	13,0	20,0
3	5	2 550	3,2	
3	6	345	0,3	
4	3	12 575	12,75	21,0
4	4	3 630	3,60	
4	4	485	0,40	
4	4	208	0,15	
5	4,5	11 150	12,7	19,1
5	5,5	880	3,1	
5	5	105	0,10	
6	3	9 790	12,1	21,7
6	6	3 210	4,4	
6	6	325	0,4	
8	3	9 690	12,2	19,4
8	12	2 850	3,6	
9	15	14 180	16,25	18,2
10	5	13 050	14,8	
	4	980	1,4	
	6	285	0,3	

tion d'environ 30×20 mm. Par autoradiographie de plaque d'aluminium irradiée dans ces conditions, on obtient la tache ci-contre (fig. 2). On a placé des feuilles de thorium de 5 cm de haut sur 4 cm de

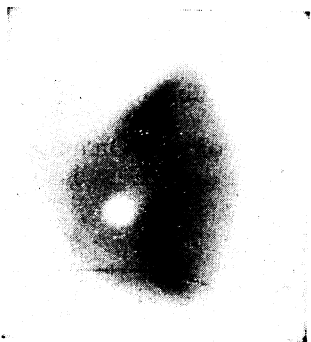


FIG. 2. — Image de la section du faisceau externe par autoradiographie β du sodium 24.

large de façon à ce que leur centre corresponde à la section du faisceau et qu'une marge importante soit réservée pour les tritons éventuellement émis sous certains angles. On a vérifié de la sorte les sections efficaces obtenues en faisceau interne.

2. **Extraction du tritium.** — On peut suivre sur la figure 3 les opérations d'extraction du tritium. La feuille de thorium placée dans un creuset de

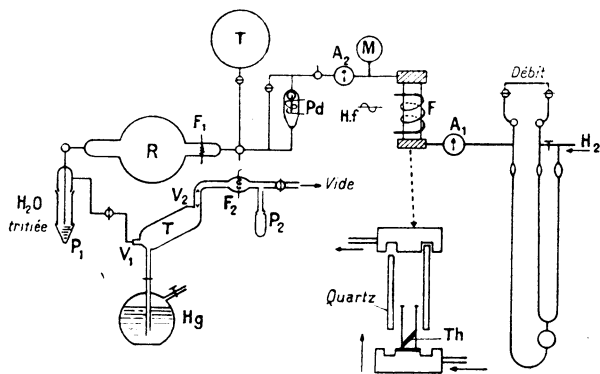


FIG. 3. — Schéma de l'appareil à extraction du tritium.

graphite ou de carbure de silicium est chauffée par induction à environ $1\ 600$ °C sous une pression d'environ une demi-atmosphère d'hydrogène contrôlée au manomètre. Le four à haute fréquence Hermann-Moritz F a été modifié pour permettre ce type de chauffage. Il fonctionne pendant 5 minutes puis l'hydrogène mélangé au tritium extrait est transféré dans un ballon de 3 litres R après un passage à travers un tube diffuseur de palladium pour éliminer d'autres gaz. L'opération est répétée deux fois puis on lave à l'hydrogène. Des essais de contrôle ont montré qu'après ces opérations il reste moins de 1 % du tritium dans le thorium. On provoque ensuite la combustion de l'hydrogène en introduisant de l'oxygène dans le ballon. Un débit-

mètre permet de contrôler les quantités d'hydrogène puis d'oxygène. On chauffe au rouge blanc un filament de platine F_1 placé à l'entrée de l'arrivée d'oxygène et l'eau de synthèse formée est condensée dans un doigt piégé à l'air liquide P_1 . Cette eau tritiée est ensuite ajoutée à un scintillateur liquide. Le rendement de ces opérations a été mesuré au préalable avec de l'hydrogène tritiée et il est de 100 %. Le traitement est terminé en moins d'une heure. Les méthodes utilisées jusqu'ici pour recueillir et mesurer le tritium consistaient à chauffer les cibles dans des fours ordinaires pendant plusieurs heures sous atmosphère d'hydrogène très réduite et à refouler cet hydrogène dans le mélange gazeux d'un compteur proportionnel. Cependant l'extraction du tritium est bien meilleure d'une part lorsque la pression d'hydrogène est plus élevée car l'échange tritium-hydrogène est plus rapide, d'autre part en chauffant par courant d'induction H. F. ; si bien qu'au lieu d'une extraction partielle obtenue après plusieurs heures nous avons pu recueillir la totalité du tritium en quelques minutes.

3. **Mesures au scintillateur.** — L'activité des échantillons d'eau tritiée a été mesurée par scintillation en milieu liquide. L'appareil de détection et les performances qu'il permet d'obtenir ont déjà été décrits [10]. Il utilise le principe de mesure par coïncidence entre deux photomultiplicateurs refroidis.

Les échantillons tritiés ($0,2$ cm³) étaient introduits dans un scintillateur de composition suivante: dioxane : 9 cm³ ; toluène : 9 cm³ ; alcool : 1 cm³.

P. P. O. (2,5 diphenyloxazole) : 4 g/l ; P. O. P. O. P. (1,4 bis 2(5 phényloxazolyl) benzène) 100 mg/l ; naphthalène : 50 g/l.

Ce scintillateur similaire à celui décrit par F. E. Kinard [11] contient cependant moins d'alcool (source importante de bruit de fond dû au ¹⁴C) et permet d'obtenir avec une cuve de quartz un bruit de fond inférieur à 10 cpm pour une bande de 5 à 50 V.

Les solvants employés n'ayant pas un degré de pureté constant, le rendement de détection était déterminé pour chaque nouvelle préparation de scintillateur à l'aide d'un échantillon d'eau tritiée dont l'activité était connue avec une précision de ± 2 %. Ce rendement était d'environ 14 %.

4. **Résultats.** — IRRADIATIONS EN FAISCEAU INTERNE. — On a mesuré le tritium au cours d'un grand nombre d'expériences et le tableau I, p. 960, résume les principales. On peut remarquer que les feuilles ont été découpées en diverses portions. Pour connaître la section efficace complète de formation du tritium il faut ajouter à celui recueilli dans la zone du faisceau le double de la valeur obtenue dans la partie de la feuille placée en dehors

TABLEAU II

	TH FAISCEAU INTERNE	TH FAISCEAU EXTERNE	PB 120 MeV (RÉF. N° 7)	TH 32 MeV (RÉF. N° 1)
Section efficace en mb	$20 \pm 1,5$	$19,5 \pm 0,5$	17 ± 5	$24,2 \pm 2,5$

du faisceau. En effet le faisceau frappe la feuille sur un bord et la moitié seulement des tritons projetés obliquement ou par suite de la diffusion des protons est arrêté dans les feuilles de thorium, l'autre allant dans la chambre du synchro-cyclotron. On a donc construit le diagramme de la figure 4 avec plusieurs expériences et on a évalué la section efficace dans la zone du faisceau à $13,0 \pm 0,5$ mb et celle diffusée à $3,5 \pm 0,5$ mb. On est ainsi conduit à une section totale de $20 \pm 1,5$ mb.

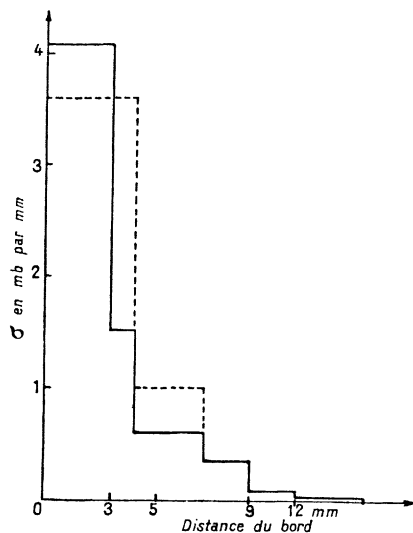


FIG. 4. — Répartition du tritium dans la cible.

IRRADIATIONS EN FAISCEAU EXTERNE. — Pour éviter les erreurs d'appréciation dues à la méthode précédente, on a irradié en faisceau externe pendant environ 1 heure. En recueillant le tritium dans des feuilles précédées d'une épaisseur suffisante de thorium, on obtient une section efficace de $19,5 \pm 0,5$ mbarns. Cette valeur est en bon accord avec celle indiquée par Kuznetsov et Mekhedov [7] pour des protons de 120 MeV sur le plomb (17 ± 5 mb).

Le tableau II rassemble les divers résultats.

ÉNERGIE DES TRITONS. — On a mesuré la section efficace de formation du tritium dans des feuilles de

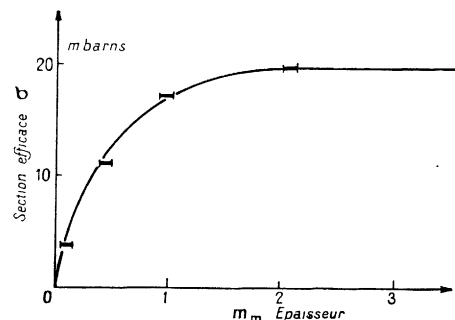


FIG. 5. — Section efficace du tritium en fonction de l'épaisseur de la cible.

thorium placées à des distances croissantes de la feuille d'entrée. Cette section augmente jusqu'au moment où l'on atteint la zone d'équilibre où le tritium projeté hors d'une feuille est remplacé complètement par celui venant de feuilles précédentes. On a pu tracer ainsi la courbe de la figure 5 en fonction de l'épaisseur de thorium. On peut remarquer qu'environ 50 % des tritons ont un parcours supérieur à 0,3 mm dans le thorium et que 10 % ont un parcours de plus de 1 mm. Ceci correspond à des énergies d'environ 15 et 35 MeV. L'analyse détaillée de la répartition en énergie et en angle des tritons formés fera l'objet d'une étude ultérieure, mais on peut déjà remarquer que selon Dostrovsky et al. [12] le nombre moyen de tritons évaporés pour une énergie d'excitation initiale de 150 MeV sur ^{181}Ta est très faible ou nul, alors qu'il est de 10 pour les neutrons et de 0,8 pour les protons. Nous espérons que la poursuite de ce travail apportera quelques renseignements sur le processus de formation du tritium dans les réactions de spallation sur les noyaux lourds.

Manuscrit reçu le 25 juillet 1959.

BIBLIOGRAPHIE

- [1] WADE (W. H.), VIDAL (J. Gonzalez), GLASS (R. A.) et SEABORG (G. T.), *Phys. Rev.*, 1957, **107**, 134.
- [2] BARKAS (W. H.) et TYREN (H.), *Phys. Rev.*, 1953, **89**, 1.
- [3] HARVEY (J. A.), *Canad. J. Phys.*, 1953, **31**, 278.
- [4] COHEN (B. L.) et HANDLEY (T. H.), *Phys. Rev.*, 1954, **93**, 514.
- [5] FIREMAN (E. L.) et ROWLAND (F. S.), *Phys. Rev.*, 1955, **97**, 780.
- [6] CURRIE (L. A.), LIBBY (W. F.) et WOLFANG (R. L.), *Phys. Rev.*, 1956, **101**, 1557.
- [7] KUZNETSOV (V. V.) et MEKHEDOV (V. N.), *Zh. Eks. Teor. Fiz.* 1958, **35**, 587.
- [8] GOEBEL (K.), Rapport CERN 58.2. (1^{er} février 1958).
- [9] HICKS (H. G.), STEVENSON (P. C.) et NERVIK (W. E.), *Phys. Rev.*, 1956, **102**, 1390.
- [10] BIBRON (R.), *Onde électrique*, 382 (janvier 1959).
- [11] KINARD (F. E.), *Rev. Sc. Instr.*, 1957, **28**, 4, 293.
- [12] DOSTROVSKY (I.), RABINOWITZ (P.) et BIVINS (R.), *Phys. Rev.*, 1958, **111**, 1659.