

## RADIOACTIVITÉ NATURELLE PAR ÉMISSION DE NEUTRONS

par MARIETA DA SILVEIRA (À LISBONNE)

(Reçu le 13 Mai 1945)

Introduction. Au cours d'une série d'expériences réalisées dans le but d'étudier, par la méthode d'absorption, le rayonnement  $\gamma$  émis par les descendants immédiats de l'uranium I, et dont les résultats ont été déjà publiés [1], nous avons signalé l'existence d'un nouveau type de rayonnement naturel, dont les propriétés suggéraient qu'il s'agissait de neutrons.

En effet, au cours de l'exécution de ces expériences et dans le but d'éliminer tout le rayonnement  $\beta$  émis par la source (préparation d'oxyde d'uranium), nous avons interposé, entre celle-ci et les écrans absorbants, une lame de paraffine d'épaisseur (1,2 cm) suffisante pour absorber tout ce rayonnement  $\beta$ .

Dans nos premiers essais, nous avons employé la lame de paraffine seulement dans les cas où les épaisseurs de l'absorbant étaient très petites; dès que celui-ci avait une épaisseur suffisante pour absorber à lui seul tout le rayonnement  $\beta$ , on éliminait la paraffine, dont l'emploi, croyions nous, devenait alors inutile.

Cependant, nous avons vérifié que les mesures d'absorption, réalisées avec ou sans paraffine, ne conduisaient pas aux mêmes résultats, et c'est pourquoi nous avons décidé de faire toutes les mesures d'absorption du rayonnement  $\gamma$ , en employant toujours de la paraffine entre la source et les écrans absorbants, indépendamment de leur épaisseur. Une fois cette précaution prise, nous avons obtenu des résultats toujours comparables pour la longueur d'onde des rayons  $\gamma$  [1].

À première vue, on pouvait supposer que les différences des résultats obtenus, avec ou sans paraffine, provenaient d'un rayonnement secondaire excité dans le plomb par le rayonnement  $\beta$  de la source, quand il n'y avait pas de paraffine. Cette hypothèse a dû être abandonnée car on n'obtenait aucun changement quand on plaçait l'écran de paraffine après les écrans de plomb, dans l'espoir d'absorber cet éventuel rayonnement secondaire.

Nous avons alors décidé d'entreprendre des recherches dans le but d'éclaircir cette question.

Tout d'abord, on a recouvert la source d'une épaisseur de plomb suffisante pour l'absorption de tout le rayonnement  $\alpha$ ,  $\beta$  et  $\gamma$  mou. On devait alors avoir, d'après notre travail antérieur, seulement un rayonnement  $\gamma$  de longueur d'onde de 15 U. X. En étudiant l'absorption massique du rayonnement de la source, ainsi filtré, dans le plomb et dans la paraffine, nous avons reconnu, qu'à masse superficielle égale, et pour les petites épaisseurs d'absorbants, l'absorption était plus grande dans la paraffine que dans le plomb. À partir d'une certaine valeur de l'épaisseur, la paraffine ne produisait plus d'absorption, cependant l'absorption dans le plomb se comportait régulièrement, indiquant toujours le rayonnement  $\gamma$  de 15 U. X. de longueur d'onde.

Ces résultats nous ont fait penser que le rayonnement de la source, filtré seulement à travers le plomb, était complexe. Un des composants était le rayonnement  $\gamma$  déjà connu et l'autre serait un rayonnement qui était plus absorbé par la paraffine que par le plomb. Ce rayonnement était totalement absorbé dans une couche de paraffine de masse superficielle inférieure à  $1 \text{ g/cm}^2$ . Après un tel absorbant on n'avait que le rayonnement  $\gamma$  cité, pour lequel la paraffine n'a qu'un très petit coefficient d'absorption.

La propriété trouvée pour les coefficients d'absorption, dans le plomb et dans la paraffine, du rayonnement nouveau nous a conduit à supposer qu'il s'agissait d'une émission spontanée de neutrons pour la source d'oxyde d'uranium.

Pour vérifier cette hypothèse, nous avons réalisé la série d'expériences que nous exposons ensuite.

Dans ces expériences, nous avons employé toujours, pour détecter le rayonnement, un compteur de Geiger-Müller, rempli d'un mélange d'air et de vapeur d'alcool, à proportions égales et à la pression de 5 cm de mercure. Les détails de l'installation ont déjà été publiés [1].

Il est facile d'expliquer qu'un tel compteur puisse détecter des neutrons, puisque l'alcool, étant une substance hydrogénée, les neutrons provoqueront la projection des noyaux de l'hydrogène; et d'autre part, les neutrons sont aussi capables de provoquer les transmutations des atomes de l'azote et de l'oxygène (constituants de l'air) en émettant dans ce cas des particules  $\alpha$ .

Résultats expérimentaux. Une première série d'expériences a été réalisée, en employant une source d'oxyde d'uranium. Cette source était placée à 10 cm du compteur et le rayonnement émis était toujours filtré

à travers 3 mm de plomb. Nous avons mesuré l'absorption du rayonnement résiduel, en employant cette fois des écrans de paraffine de plusieurs épaisseurs, et, ensuite, un écran de plomb, dont la masse superficielle était équivalente à la plus grande épaisseur de paraffine employée. Les nombres d'impulsions enregistrées, par minute, dans chacune des expériences, sont indiqués dans le tableau I.

TABLEAU I

Conditions d'expérience	Masse superficielle de l'absorbant (g/cm <sup>2</sup> )	Nombre des impulsions par minute
Source de U <sub>3</sub> O <sub>8</sub> + filtre	—	68 ± 2
Source de U <sub>3</sub> O <sub>8</sub> + filtre + paraffine	0,4	57 ± 2
	0,63	55 ± 2
	1,3	55 ± 2
Source de U <sub>3</sub> O <sub>8</sub> + paraffine + filtre	1,3	55 ± 2
Source de U <sub>3</sub> O <sub>8</sub> + filtre + plomb	1,3	60 ± 2

Les résultats indiqués dans la dernière colonne, déjà corrigés du fond continu du compteur, correspondent à des moyennes de plusieurs mesures, ayant chacune une durée de 40 minutes au moins; on donne aussi la fluctuation probable de la mesure.

Le résultat, mentionné dans l'avant dernière ligne de ce tableau, nous donne le nombre des impulsions enregistrées dans le cas où l'écran de paraffine, le plus épais, était placé directement sur la source, c'est à dire, avant le filtre de plomb. Nous avons fait cet essai pour vérifier qu'il ne s'agissait pas d'un rayonnement secondaire dû à l'action, sur le filtre de plomb, des rayonnements déjà connus de la source. D'après les résultats obtenus, on voit tout de suite que cette hypothèse n'est pas à retenir, puisque l'absorption réalisée par la paraffine a la même valeur, quelle que soit la position de l'absorbant, avant ou après le filtre de plomb.

En outre, les résultats mentionnés ont confirmé une fois de plus l'existence d'un rayonnement qui est plus fortement absorbé, à masse superficielle égale, par la paraffine que par le plomb (comme cela aurait lieu pour des neutrons), et montrent qu'il suffit d'une épaisseur de paraffine de 0,63 g/cm<sup>2</sup> pour l'absorber totalement.

Comme le bore est un des éléments légers qui présente une des plus grandes sections efficaces pour la capture des neutrons lents, nous avons tâché de mesurer l'absorption du rayonnement de type neutronique à

travers un composé, contenant cet élément. Ainsi, nous avons essayé le borate de sodium sous la forme de couches très minces et presque homogènes, que nous avons préparées, en tamisant plusieurs fois le sel, après l'avoir réduit à une poudre très fine. Nous avons fait d'autres essais, dans les mêmes conditions, mais en remplaçant le borate par le carbonate de sodium. La composition de ces deux sels diffère seulement par les éléments bore et carbone, et, malgré la proximité de leurs numéros atomiques (5 et 6), la section efficace [2] de l'atome du carbone pour la capture des neutrons lents ( $4,1 \times 10^{-24} \text{ cm}^2$ ) est très petite, presque négligeable, par rapport à la valeur de celle du bore ( $360 \times 10^{-24} \text{ cm}^2$ ). On pouvait donc prévoir, a priori, que, si le rayonnement analysé était effectivement constitué par des neutrons, l'absorption dans le borate devrait être bien plus grande que dans le carbonate, et que, par contre, si nous avions affaire à quelqu'autre type de rayonnement, les absorptions dans le borate et dans le carbonate devraient être à peu près les mêmes.

Le tableau II contient les résultats que nous avons obtenus dans ces expériences.

TABLEAU II

Conditions d'expérience	Masse superficielle de l'absorbant ( $\text{g}/\text{cm}^2$ )	Nombre des impulsions par minute
Source de $\text{U}_3\text{O}_8$ + filtre	—	$68 \pm 2$
Source de $\text{U}_3\text{O}_8$ + filtre + plomb	1, 3	$60 \pm 2$
Source de $\text{U}_3\text{O}_8$ + filtre + $\text{B}_4\text{O}_7 \cdot \text{Na}_2$	0, 04	$62 \pm 2$
	0, 08	$57 \pm 2$
	0, 12	$55 \pm 2$
	0, 16	$55 \pm 2$
	0, 20	$55 \pm 2$
Source de $\text{U}_3\text{O}_8$ + filtre + $\text{CO}_3 \cdot \text{Na}_2$	0, 16	$66 \pm 2$

En examinant ces résultats, on voit qu'en effet l'absorption réalisée par le carbonate de sodium est parfaitement négligeable, puisque le nombre des impulsions enregistrées dans ce cas tombe dans l'intervalle des fluctuations probables de la mesure faite en absence de tout absorbant. Au contraire, l'absorption réalisée par le borate de sodium est très importante, et il suffit une masse superficielle de  $0,12 \text{ g}/\text{cm}^2$  du sel.

pour absorber totalement le rayonnement en question. On doit encore remarquer que cette absorption est plus importante que celle qui est réalisée par une masse superficielle de plomb dix fois plus grande.

En comparant les résultats contenus dans les tableaux I et II, on voit aussi que la masse superficielle nécessaire pour absorber totalement le rayonnement est plus grande dans le cas de la paraffine ( $0,63 \text{ g/cm}^2$ ), que dans le cas du borate de sodium ( $0,12 \text{ g/cm}^2$ ). C'est ce qu'on devait attendre dans le cas d'un rayonnement constitué par des neutrons, d'après les valeurs des sections efficaces de capture des neutrons lents [2] ( $35 \times 10^{-24} \text{ cm}^2$  pour l'hydrogène et  $360 \times 10^{-24} \text{ cm}^2$  pour le bore), et des proportions de l'hydrogène dans la paraffine et du bore dans le borate.

Pour nous assurer que les résultats de toutes ces expériences n'étaient pas dus à quelque défaut de l'installation détectrice, nous avons, dans une deuxième série d'expériences, répété tous les essais, dans les mêmes conditions, mais en employant comme source radioactive une préparation de chlorure de baryum radifère.

Les résultats obtenus dans cette série d'expériences sont indiqués dans le tableau III.

TABLEAU III

Conditions d'expérience	Masse superficielle de l'absorbant ( $\text{g/cm}^2$ )	Nombre des impulsions par minute
Source de $\text{Cl}_2 \text{ Ba}$ radifère + filtre	—	$70 \pm 2$
Source de $\text{Cl}_2 \text{ Ba}$ radifère + filtre + plomb	1,3	$60 \pm 2$
Source de $\text{Cl}_2 \text{ Ba}$ radifère + filtre + paraffine	1,3	$66 \pm 2$
Source de $\text{Cl}_2 \text{ Ba}$ radifère + filtre + $\text{B}_4 \text{O}_7 \text{ Na}_2$	0,16	$67 \pm 2$
Source de $\text{Cl}_2 \text{ Ba}$ radifère + filtre + $\text{CO}_3 \text{ Na}_2$	0,16	$68 \pm 2$

D'après ces résultats, nous pouvons conclure tout de suite que le comportement de la paraffine et du borate de sodium vis-à-vis les rayonnements émis par la source de chlorure de baryum radifère est tout à fait différent de ce qui avait lieu quand la source employée était l'oxyde d'uranium. En effet, l'absorption maintenant réalisée est très petite, presque négligeable, comme il fallait s'y attendre dans tous les cas où il y aurait seulement des rayonnements  $\gamma$  pénétrants.

La source d'oxyde d'uranium contient  $\text{U}_I$ ,  $\text{U}_{II}$ ,  $\text{AcU}$ ,  $\text{UX}_I$ ,  $\text{UY}$ ,  $\text{UX}_2$  et  $\text{UZ}$ , en équilibre radioactif. L'émission naturelle de neutrons qui nous avons signalée provient donc d'un ou de plusieurs de ces éléments.

Pour tâcher de déterminer son origine, nous avons, dans une troisième série d'expériences, répété toutes les mesures d'absorption, en employant cette fois une source de UX complexe. Cette source a été obtenue, en faisant l'extraction de l'UX<sub>1</sub> (et de son isotope UY) contenu dans 500 g de nitrate d'uranyle, par entraînement avec le fluorure de cérium. Comme les périodes des éléments UX<sub>2</sub> et UZ sont, respectivement, 1,14 minutes et 6,7 heures, ces éléments prennent naissance et atteignent l'équilibre radioactif très rapidement, et ainsi, dans la source d'UX, on a effectivement, UX<sub>1</sub>, UY, UX<sub>2</sub> et UZ, en équilibre radioactif.

Les résultats des mesures d'absorption réalisées avec cette source sont indiqués dans le tableau IV.

TABLEAU IV

Conditions d'expérience	Masse superficielle de l'absorbant (g/cm <sup>2</sup> )	Nombre des impulsions par minute
Source d'UX + filtre	—	119 ± 2
Source d'UX + filtre + plomb	1, 3	98 ± 2
Source d'UX + filtre + paraffine	0, 50	106 ± 2
	0, 92	101 ± 2
	1, 20	98 ± 2
	1, 41	95 ± 2
	1, 63	95 ± 2
	1, 80	95 ± 2
	Source d'UX + filtre + B <sub>4</sub> O <sub>7</sub> Na <sub>2</sub>	0, 16
0, 20		105 ± 2
0, 24		100 ± 2
0, 28		94 ± 2
0, 32		93 ± 2
0, 36		94 ± 2
Source d'UX + filtre + CO <sub>3</sub> Na <sub>2</sub>	0, 28	111 ± 2

D'après ces résultats, nous pouvons conclure que le phénomène d'émission naturelle de neutrons se produit encore avec la source d'UX.

Ceci montre que, tout au moins la plus grande partie des neutrons observés avec la source d'oxyde d'uranium provient d'un des quatre éléments qui constituent la source d'UX.

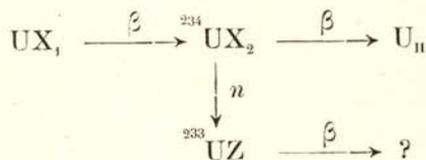
Un examen attentif de ces résultats montre aussi que l'énergie des neutrons est, dans ce dernier cas, un peu plus grande que dans le cas de la source d'oxyde d'uranium, puisque, pour absorber totalement le rayonnement il a fallu employer maintenant des masses superficielles d'absorbants (0,28 g/cm<sup>2</sup> de borate de sodium et 1,40 g/cm<sup>2</sup> de paraffine) plus grandes qu'antérieurement. Cela peut s'expliquer, car la masse d'oxyde d'uranium était très grande et pouvait donc elle-même provoquer un ralentissement des neutrons, dû surtout à l'oxygène. Dans la source d'UX, où la masse du précipité actif est très petite, ce ralentissement n'est pas à craindre.

Conclusions. Les expériences décrites montrent donc qu'il y a une émission de neutrons par un des quatre éléments UX<sub>1</sub>, UX<sub>2</sub>, UZ ou UY.

La période de l'UY est de 24,6 heures, et comme l'émission signalée se poursuit avec la même intensité pendant plusieurs jours, on peut conclure qu'elle ne provient pas de cet élément. Alors trois éléments (UX<sub>1</sub>, UX<sub>2</sub> ou UZ) restent donc seulement en cause.

Une émission d'un neutron par l'UX<sub>1</sub> conduirait à un isotope de cet élément qui n'a jamais été signalé.

L'hypothèse, la plus vraisemblable, sur l'origine des neutrons nous semble être d'admettre que c'est l'élément UX<sub>2</sub> qui en est le responsable. Cet élément peut se désintégrer, soit par émission d'un rayon β pour donner l'U<sub>II</sub>, soit par émission d'un neutron, comme le montre le schéma suivant :



Cette dernière émission conduirait à l'UZ qui serait donc un isotope de l'UX<sub>2</sub>, mais non un isomère.

L'hypothèse généralement admise de l'isomerie nucléaire des deux éléments UX<sub>2</sub> et UZ (le seul cas connu d'isomerie dans les radioéléments naturels) devrait donc être abandonnée. L'UZ serait un isotope de l'UX<sub>2</sub> de nombre de masse 233 qui, par émission β conduirait à un isotope de l'U<sub>II</sub> de même nombre de masse. Cet isotope est inconnu, mais aucun fait connu ne s'oppose à son existence. D'ailleurs s'il

existe, ce ne serait qu'en petites proportions (le rapport  $UZ/UX_2$  est de  $1:665 \pm 65$  d'après Feather et Bretscher [3]), ce qui expliquerait qu'on ait pas encore réussi à le mettre en évidence. Son existence pourrait justifier peut-être le désaccord des résultats des différents auteurs qui ont mesuré les parcours des particules  $\alpha$  de l' $U_{11}$ .

Il est aussi à remarquer que l' $U_{11}$  est un des rares radioéléments qui n'obéit pas à la relation de Geiger-Nuttall, entre la période et le parcours des particules  $\alpha$  émises.

L'hypothèse inverse d'une émission de neutrons par l' $UZ$ , conduisant à l' $UX_2$ , qui aurait le nombre de masse 233, est à repousser, puisque la quantité d' $UX_2$  en équilibre avec l' $UX_1$  montre qu'il est un descendant direct de l' $UX_1$ .

Ces raisons semblent justifier l'hypothèse présentée plus haut, tout au moins comme hypothèse de travail.

Ce travail a été réalisé au Laboratoire de Physique de la Faculté des Sciences de Lisbonne. Je tiens à remercier M. Le Professeur A. Cyrillo Soares, Directeur du Laboratoire, de l'intérêt qu'il a toujours apporté à ces recherches et des moyens qu'il a mis à ma disposition. Je remercie aussi MM. M. Valadares et A. Marques da Silva qui m'ont beaucoup aidé de leurs conseils, pendant l'exécution de ce travail.

Je remercie «l'Instituto para a Alta Cultura» qui m'a accordé une bourse pour la réalisation de cette recherche.

#### BIBLIOGRAPHIE

- [1] MARIETA DA SILVEIRA — *Portugalia Physica*, 1, 151, 1944.
- [2] DUNNING, PEGRAM, FINK et MITCHELL — *Phys. Rev.*, 48, 265, 1935.
- [3] FEATHER et BRETSCHER — *Proc. Roy. Soc.*, 165, 530, 1938.