

## LES SPECTRES $L$ ET GAMMA ÉMIS DANS LA TRANSMUTATION $RaD \rightarrow RaE$

par LIDIA SALGUEIRO et MANUEL VALADARES

(Reçu le 31 Mai 1949)

Introduction. Pendant longtemps on a cru, d'après l'analyse du spectre de raies  $\beta$ , que le spectre  $\gamma$  émis dans la transmutation  $RaD \rightarrow RaE$  était monochromatique; ce sont Amaldi et Rasetti [1] qui, les premiers, ont montré que ce spectre était complexe par la méthode d'absorption sélective. Après ce travail, l'étude du spectre  $\gamma + X$  émis par le  $RaD$  a constitué l'objet de nombreuses recherches; il a été étudié, encore par la méthode d'absorption sélective, par Tsien [26,27], par diffraction cristalline par Frilley [8], par Frilley et Tsien [9] et par Salgueiro [19,20], par analyse du spectre de raies  $\beta$  par Ouang, Surugue et Tsien [13] et par Braga [2,3], à l'aide d'une chambre de Wilson par Tsien et Marty [28,29] et, tout récemment, en employant un compteur proportionnel, par Curran, Angus et Cockroft [7].

Dans ce travail nous nous sommes proposé deux buts essentiels:

- 1°. Étudier de nouveau la région du spectre  $L$  de façon à voir dans quelle mesure l'hypothèse des transitions internes  $L_I \rightarrow L_{II}$ ,  $L_{III}$  peut rendre compte de certaines anomalies d'intensité signalées auparavant;
- 2°. Étudier, pour la première fois, par spectrographie cristalline, la région spectrale de longueurs d'onde supérieures au spectre  $L$ .

Installation spectrographique. Nous avons employé un spectrographe de Bragg, monté avec un cristal de sel gemme et qui a été déjà décrit [19,20]. La source radioactive était formée par deux vieilles aiguilles de radon, placées sur un support de verre. L'intensité de chaque aiguille, au moment de son remplissage (1940), était de 700 millicuries. Le rayonnement  $\gamma$  était canalisé par les pièces polaires d'un électro-aimant, qui déviait le rayonnement  $\beta$ . Les pièces polaires de l'électro-aimant se terminaient par des surfaces rectangulaires de  $5,0 \times 2,3$  cm<sup>2</sup> et l'entrefer était de 1,2 mm. La distance entre l'axe de rotation du cristal et le film photographique était de 76 mm. Le châssis était en aluminium avec une fenêtre de  $7,5 \times 3,5$  cm<sup>2</sup>; on a employé des films Ilford pour rayons X avec un écran renforceur placé derrière le film; une feuille de papier noir couvrait le film pour empêcher que

celui-ci soit voilé par la lumière de fluorescence émise par la source.

Nous avons placé le spectrographe dans un vaste récipient cylindrique (volume: 400 litres) en fer dans lequel on maintenait le vide pendant toute la pose. Ceci nous a réduit notablement le rayonnement diffusé.

Resultats. a) *Région du spectre L*. Le spectre *L* de rayons X d'un élément de numero atomique 83 (transmutation *Ra D*  $\rightarrow$  *Ra E*) s'étend de 755 *U. X.* à 1314 *U. X.* Comme la discontinuité *K* d'absorption du brome se place à 918 *U. X.* il est très difficile, par la méthode photographique, de comparer les intensités des raies de part et d'autre de cette discontinuité. Pour cette raison, nous nous sommes bornés, dans ce travail, à étudier la région spectrale de longueur d'onde supérieure à 918 *U. X.* Dans cette région nous avons observé quatre raies qui correspondent à  $\beta_3$ ,  $\beta_{1,2}$ ,  $\beta_4$  et  $\alpha_1$ . Dans le tableau suivant nous donnons les longueurs d'onde et les intensités (mesure visuelle) des quatre raies d'après Frilley et Tsien et suivant nos résultats.

Raie	Frilley et Tsien		Salgueiro et Valadares	
	$\lambda$ ( <i>U. X.</i> )	<i>I</i>	$\lambda$ ( <i>U. X.</i> )	<i>I</i>
$\beta_3$ .....	937	15	935	40
$\beta_{1,2}$ .....	950	100	956	95
$\beta_4$ .....	975	30	983	45
$\alpha_1$ .....	1140	60	1146	100

En ce qui concerne les longueurs d'onde l'accord est tout à fait satisfaisant étant donné le faible pouvoir dispersif de notre spectrographe.

Pour les intensités, il y a un certain nombre de différences qui, pourtant, semblent pouvoir s'expliquer. Tout d'abord, dans le spectre de rayons X produit par bombardement cathodique la raie  $\beta_3$  est plus intense que  $\beta_4$  ( $\beta_3 : \beta_4 = 8 : 5$ ) tandis que dans les mesures de Frilley et Tsien  $\beta_3$  est plus faible que  $\beta_4$  ( $\beta_3 : \beta_4 = 15 : 30$ ). Frilley et Tsien ont expliqué cette divergence par le fait que la source employée contenait du plomb et comme la discontinuité d'absorption  $L_{III}$  de cet élément (949 *U. X.*) tombe entre  $\beta_3$  et  $\beta_4$ , la première de ces deux raies est beaucoup plus absorbée que la seconde. Dans nos expériences le rapport est déjà  $\beta_3 : \beta_4 = 40 : 45$  ce qui s'explique par le fait que dans notre source, seule, la faible quantité de plomb existant dans le verre des aiguilles peut intervenir comme absorbant.

D'autre part, dans nos expériences, la raie  $\alpha_1$  est plus intense que  $\beta_{1,2}$ , contrairement à ce que signalent Frilley et Tsien. Cette différence peut être encore, nous le croyons, expliquée par la différence

de constitution des sources et par le fait que nous travaillons dans le vide. D'ailleurs, nous n'avons pas fait la correction correspondante à l'absorption du rayonnement dans le verre de l'aiguille, correction qui conduirait à augmenter encore l'intensité de  $\alpha_1$  par rapport à celle des raies  $\beta_{1,2}$ . Remarquons, en tous cas, que le rapport  $\beta_4 : \alpha_1$  (celui qui va nous servir par la suite) est pratiquement le même dans les mesures de Frilley et Tsien et dans nos mesures.

Lorsqu'on compare les intensités des raies du spectre  $L$  dû à la conversion interne avec les intensités des mêmes raies dans le spectre de rayons X excité par bombardement cathodique, on remarque que, par rapport à  $\alpha_1$  les intensités des raies  $\beta_3$  et  $\beta_4$  sont beaucoup plus élevées. Nous ne considérons pas la raie  $\beta_{1,2}$  parce qu'il s'agit d'une raie double appartenant à deux spectres  $L$  différents :  $\beta_1(L_{II}M_{IV})$ ,  $\beta_2(L_{III}N_V)$ . Comme la raie  $\beta_3$  présente une intensité affaiblie du fait de l'absorption dans le plomb, nous allons considérer seulement le rapport d'intensité  $\alpha_1 : \beta_4$ ; ainsi, par bombardement cathodique, on a  $\alpha_1 : \beta_4 = 100 : 5$  tandis que nous avons déterminé  $\alpha_1 : \beta_4 = 100 : 45$ .

Or, de prime abord, l'accroissement d'intensité de  $\beta_4$  semble être encore très inférieur à ce qu'on devrait attendre. En effet, le rapport des atomes ionisés dans les niveaux  $L_I$  et  $L_{III}$  est, d'après les mesures du spectre de raies  $\beta$ ,  $92 : 3$ , tandis que ce même rapport, dans le cas du bombardement cathodique doit être, d'après le calcul,  $22 : 55$ . C'est-à-dire, pour une même intensité des raies  $\alpha$  (niveau  $L_{III}$ ) sur les spectres dûs à la conversion interne et au bombardement cathodique, on devrait avoir sur le premier de ces spectres la raie  $\beta_4$  (niveau  $L_I$ ) soixante-dix fois plus intense que dans le spectre d'un tube à rayons X. Or, l'expérience montre, comme nous venons de le voir, que l'intensité de  $\beta_4$  est seulement multipliée par 9. Comment expliquer cette divergence?

Nous croyons que l'hypothèse avancée par Coster et Kronig [5] des passages électroniques de  $L_{III}$  et  $L_{II}$  vers  $L_I$  (avec émission d'électrons Auger), hypothèse qui a permis d'interpréter d'une façon parfaitement satisfaisante les faits les plus saillants des spectres de raies satellites de la couche  $L$  [10, 18], permettra encore dans le domaine de la radioactivité d'expliquer les faits observés.<sup>1</sup>

Tâchons, alors, d'appliquer cette hypothèse au cas des spectres  $L$  résultant du phénomène de conversion interne. Comme nous l'avons vu, la proportion entre le nombre d'électrons expulsés de  $L_I$  et  $L_{III}$  est de  $92 : 3$ . Pour calculer le nombre de photons produits par des atomes ionisés en  $L_I$  il faut connaître le coefficient de fluorescence correspondant.

<sup>1</sup>Récemment Tomboulian [25] a pu mettre en évidence l'existence d'un rayonnement dans le spectre de rayons X du soufre correspondant aux passages  $L_I \rightarrow L_{II}, L_{III}$ .

Bien que les calculs ne conduisent pas à des valeurs très concordantes il semble qu'on peut prendre la valeur 0,14 [6,14 a 17] ce qui conduit à admettre que du remplissage des 92 places vides de  $L_I$  résulte l'émission de 13 photons du spectre  $L_I$ . Or, les 79 places restantes ( $92 - 13$ ) ont été occupées, pour la plupart, par des électrons de  $L_{III}$  avec émission d'un autre électron, c'est-à-dire, laissant l'atome doublement ionisé; on peut calculer que 66 des 79 places vides restantes ont été occupées par des électrons de  $L_{III}$ . Dans ces conditions on aura, au total,  $69 = 66 + 3$  places libres en  $L_{III}$ , dont 3 correspondant à des atomes monoionisés et 66 à des atomes doublement ionisés.

Nous prendrons pour le coefficient de fluorescence des atomes monoionisés de  $L_{III}$  la valeur 0,37 (moyenne des valeurs théoriques et expérimentales) [6, 11, 12, 14 a 17, 23, 24] et pour le coefficient des atomes doublement ionisés la moitié. Par conséquent, le remplissage des 69 places vides de  $L_{III}$  donnera lieu à l'émission de 14 photons du spectre  $L_{III}$ . Le résultat final est que les sommes des intensités des raies du spectre  $L_I$  et du spectre  $L_{III}$  sont dans le rapport de  $13 : 14 = 93 : 100$ . Si on reproduit, maintenant, le même raisonnement pour le cas des atomes ionisés par choc électronique (tube à rayons X) on trouve le rapport  $3 : 23 = 13 : 100$ .

On conclut, par conséquent, que, pour une même intensité du spectre  $L_{III}$ , le spectre  $L_I$  émis au cours de la transmutation  $Ra D \rightarrow Ra E$  doit être sept fois plus intense que celui d'un tube à rayons X.

On voit ainsi que l'hypothèse des passages internes  $L_I \rightarrow L_{III}$  a permis de descendre du facteur d'agrandissement 70 — que l'expérience rejetait indiscutablement — au facteur 7.

Comme nous ne pouvons pas, d'après les résultats de nos expériences, déterminer la somme des intensités de toutes les raies appartenant soit au spectre  $L_I$ , soit au spectre  $L_{III}$ , nous nous bornerons à faire la comparaison entre les intensités de deux raies:  $\alpha_1(L_{III}M)$  et  $\beta_4(L_I N)$ . Nous admettrons que lorsque l'intensité totale des raies d'un spectre est multipliée par un certain facteur, l'intensité de chaque raie est multipliée par le même facteur; cette hypothèse est pourtant, comme nous le verrons par la suite, susceptible d'être critiquée. Ainsi, tandis que dans le spectre de rayons X le rapport d'intensité  $\alpha_1 : \beta_4$  est  $100 : 5$ , dans le spectre de fluorescence il doit être, d'après le calcul précédent,  $100 : 35$ ; l'expérience nous a conduit à la valeur  $\alpha_1 : \beta_4 = 100 : 45$ .

Les tableaux suivants résument les calculs précédents et mettent en évidence les résultats de l'expérience et ceux de la théorie suivant qu'on admet ou non l'existence des passages électroniques de  $L_{II}$  et  $L_{III}$  vers  $L_I$ .

Etant donnée l'imprecision des coefficients théoriques que nous avons

TABEAU I

Niveaux	Spectre $L$ (conversion interne)					Spectre $L$ (bombardement cathodique)							
	I	II	III	IV	III+IV	V	I'	II'	III'	IV'	III'+IV'	V'	V/IV'
$L_I$	92	—	$0,14 \times 92$	13	—	13	22	—	$0,14 \times 22 = 3$	—	3	0,13	7,0
$L_{III}$	3	$0,72 \times 92 = 66$	$0,37 \times 3 = 1$	$0,19 \times 66 = 13$	14	0,93	55	$0,72 \times 22 = 16$	$0,37 \times 55 = 20$	$0,19 \times 16 = 3$	23		

I — Nombre d'atomes monoionisés correspondant à la conversion interne du rayonnement  $\gamma$ .

II — Nombre d'atomes monoionisés résultant du bombardement cathodique.

III et IV — Nombre d'atomes doublement ionisés résultant des passages électroniques de  $L_{III}$  vers  $L_I$ ; 0,72 est le pourcentage d'atomes monoionisés en  $L_I$  qui deviennent doublement ionisés en  $L_{III}$  et dans un niveau extérieur.

III et III' — Nombre de photons émis par les atomes de la colonne I ou I'; 0,14 e 0,37 sont les coefficients de fluorescence de  $L_I$  et  $L_{III}$ .  
 IV et IV' — Nombre de photons émis par les atomes de la colonne II ou II'; 0,19 est le coefficient de fluorescence de  $L_{III}$  pour les atomes doublement ionisés.

V et V' — Rapport du nombre de photons du spectre  $L_I$  au nombre de photons du spectre  $L_{III}$ .

TABEAU II

Raies	I	II	III	IV
$\beta_1 (L_I M_{II}) \dots$	5	383	35	45
$\alpha_1 (L_{III} M_V) \dots$	100	100	100	100

I — Intensités observées dans le spectre  $L$  de rayons X (bombardement cathodique).

II — Intensités calculées sans tenir compte des passages  $L_I \rightarrow L_{II}$  et  $L_I \rightarrow L_{III}$ .

III — Intensités calculées en admettant les passages  $L_I \rightarrow L_{II}$  et  $L_I \rightarrow L_{III}$ ; on a employé le facteur 7,0 (tableau antérieur).

IV — Intensités observées dans le spectre  $L$  résultant de la conversion interne.

employés, aussi bien que l'incertitude dans les résultats expérimentaux, on peut conclure que l'application de l'hypothèse de Coster et Kronig conduit à des valeurs qui sont en bon accord avec l'expérience.

Jusqu'ici nous avons employé la désignation  $Lx_1$  pour la raie dont la longueur d'onde est  $1146 U. X.$ ; il faut pourtant remarquer que cette désignation n'est pas tout à fait juste. En effet, des 69 atomes ionisés seulement 3 sont monoionisés, tandis que 66 sont doublement ionisés; or, les atomes doublement ionisés donnent lieu à des raies satellites de  $Lx$  et par conséquent dans ce spectre de fluorescence doit être la bande satellite, résultant des différentes raies satellites, qui prédomine par rapport à la raie  $\alpha_1$ . Or, comme le maximum de la bande satellite se place à  $1138 U. X.$  si on disposait d'un spectrographe suffisamment précis, on devrait pouvoir constater que le maximum de la bande est déplacé de  $3,5 U. X.$  par rapport à la raie  $\alpha_1$  ( $1141,5 U. X.$ ) émise par un tube à rayons  $X$  dont l'anticathode aurait le numéro atomique 83. Si cette hypothèse se confirme, le fait que ce spectre présente les raies satellites en absence, ou presque, de la raie mère, aurait un gros intérêt pour l'étude expérimentale et théorique des raies satellites; en effet, par l'étude des rayons  $X$  excités par bombardement électronique, on peut connaître soit la raie  $\alpha$  avec satellites, soit sans satellites suivant la tension appliquée au tube [32]; le spectre  $L$  résultant de la conversion interne présenterait seulement la bande satellite avec l'avantage qu'on connaît expérimentalement le nombre d'électrons expulsés de chaque sous niveau  $L$ , ce qui n'arrive pas lorsqu'on excite le spectre de rayons  $X$  par bombardement cathodique.

Pourtant, cette interprétation soulève une difficulté. En effet, la théorie prévoit qu'il doit y avoir deux bandes satellites des raies  $\alpha$ : une placée vers les courtes longueurs d'onde, par rapport à  $\alpha_1$ , et une autre située entre  $\alpha_1$  et  $\alpha_2$ , celle-ci présentant une intensité moitié de la première. Or, soit Frilley et Tsien, soit nous-mêmes, n'avons observé qu'une raie (ou bande) dans cette région. Il est vraie que l'expérience a montré [21, 22, 31] que la bande comprise entre les raies  $\alpha$  est plus faible et plus étalée que la théorie ne le prévoit: pourtant il est assez inexplicable qu'on observe une seule raie. Seulement des nouvelles expériences, disposant d'un pouvoir séparateur plus grand, permettront d'éclaircir cet aspect du problème.

Remarquons, finalement, que le fait qu'il ne s'agit pas de raies, mais plutôt de bandes satellites rend assez criticable l'hypothèse que nous avons faite: les intensités relatives des raies d'un spectre restent les mêmes lorsque l'intensité totale du spectre varie; en effet, si cela est vrai pour le spectre  $L_I$ , vu que soit dans le cas des rayons  $X$ , soit

dans celui résultant de la conversion interne, les raies sont les mêmes, on ne peut pas en dire autant du spectre  $L_{III}$  où les raies du spectre de rayons X sont remplacées, dans le spectre d'émission propre, par des bandes satellites. Il serait aisé de montrer qu'un tel fait porterait à rapprocher les résultats expérimentaux de ceux qu'on déduirait de la théorie des raies satellites, mais cela ne semble pas raisonnable de vouloir donner une forme quantitative à ce raisonnement dans l'état actuel de nos connaissances sur les intensités relatives des bandes satellites.

b) *Région de longueur d'onde supérieure à 1200 U. X.* Dans la région comprise entre 1200 U. X. et 1800 U. X. nous avons observé cinq raies 1315, 1400, 1550, 1690 et 1755 U. X. Bien que ces raies soient toutes assez faibles (les deux moins faibles étant celles de 1400 et 1690 U. X.) leur existence nous semble assurée, parce qu'on les a observées, au moins, sur trois spectrogrammes ; la mesure de leurs longueurs d'onde est pourtant assez imprécise.

La raie de 1315 U. X. pourrait être la raie «*l*» du spectre *L*, mais étant donné l'imprécision de la détermination de sa longueur d'onde, nous ne pouvons pas préciser s'il s'agit d'un rayonnement X ou  $\gamma$  ; d'ailleurs si cette raie a son origine dans le cortège électronique, elle doit correspondre aux raies satellites des raies «*l*» qui ont été observées pour la première fois par Melle. Cauchois dans les spectres de rayons X des éléments à numéro atomique élevé [4].

Toutes les autres raies sont observées pour la première fois à l'exception du rayonnement de 1690 U. X. qui correspond au rayonnement de 7,3 keV découvert par Tsién et Marty (chambre Wilson et absorption) et dont l'existence a été confirmée récemment par Curran, Angus et Cockroft (compteur proportionnel).

On doit finalement remarquer que pour l'étude de cette région spectrale nos conditions de travail étaient défavorables parce qu'on employait une source fermée (absorption dans la paroi de verre).

## BIBLIOGRAPHIE

- [ 1]. E. AMALDI ET F. RASETTI, *Ricerca Scient.*, 10, p. 111, 1939.
- [ 2]. C. BRAGA, *Port. Phys.*, 1, p. 159, 1944.
- [ 3]. C. BRAGA, Thèse, Porto, 1944.
- [ 4]. Y. CAUCHOIS, *C. R. Acad. Sc. Paris.*, 222, p. 1484, 1946.
- [ 5]. D. COSTER ET R. de L. KRONIG, *Physica*, 2, p. 13, 1935.
- [ 6]. J. N. COOPER, *Phys. Rev.*, 61, p. 234, 1942.
- [ 7]. S. C. CURRAN, T. ANGUS ET A. L. COCKROFT, *Phyl. Mag.*, 40, p. 36, 1949.
- [ 8]. M. FRILLEY, *C. R. Acad. Sc. Paris*, 218, p. 505, 1944.
- [ 9]. M. FRILLEY ET TSIEN SAN-TSIANG, *C. R. Acad. Sc. Paris*, 220, p. 144, 1945.
- [10]. F. R. HIRSCH, JR., *Rev. Mod. Phys.*, 14, p. 45, 1942.
- [11]. H. KÜSTNER ET A. ARENDS, *Ann. der Phys.*, 25, p. 385, 1936.
- [12]. H. LAY, *Zeits für Phys.*, 91, p. 533, 1934.
- [13]. OUANG TE-TCHAO, J. SURUGUE ET TSIEN SAN-TSIANG., *C. R. Acad. Sc. Paris*, 217, p. 535, 1943.
- [14]. L. PINCHERLE, *N. Cimento*, 14, p. 185, 1937.
- [15]. L. PINCHERLE, *Phys. Rev.*, 61, p. 225, 1942.
- [16]. E. G. RAMBERG ET F. K. RICHTMYER, *Phys. Rev.*, 51, p. 913, 1937.
- [17]. F. K. RICHTMYER ET E. G. RAMBERG, *Phys. Rev.* 51, p. 925, 1937.
- [18]. F. K. RICHTMYER, *Rev. Mod. Phys.*, 9, p. 391, 1937.
- [19]. L. SALGUEIRO, *Port. Phys.*, 1, p. 67, 1944.
- [20]. L. SALGUEIRO, Thèse, Lisboa, 1945.
- [21]. J. SARMENTO, *Port. Phys.*, 2, p. 139, 1946.
- [22]. J. SARMENTO, Thèse, Porto, 1945.
- [23]. R. J. STEPHENSON, *Phys. Rev.*, 51, p. 637, 1937.
- [24]. H. TELLEZ PLASENCIA, *Journal de Physique*, 10, p. 14, 1949.
- [25]. D. H. TOMBOULIAN, *Phys. Rev.*, 74, p. 1887, 1948.
- [26]. TSIEN SAN-TSIANG, *C. R. Acad. Sc. Paris*, 216, p. 765, 1943.
- [27]. TSIEN SAN-TSIANG, *C. R. Acad. Sc. Paris*, 218, p. 503, 1944.
- [28]. TSIEN SAN-TSIANG ET C. MARTY, *C. R. Acad. Sc. Paris*, 220, p. 688, 1945.
- [29]. TSIEN SAN-TSIANG ET C. MARTY, *C. R. Acad. Sc. Paris*, 221, p. 177, 1945.
- [30]. TSIEN SAN-TSIANG, *Phys. Rev.*, 69, p. 38, 1946.
- [31]. M. VALADARES, *Ricerca Scient.*, 11, p. 270, 1940.
- [32]. M. VALADARES ET F. MENDES, *C. R. Acad. Sc. Paris*, 226, p. 1185, 1948.