

LE RENDEMENT DE FLUORESCENCE DU NIVEAU L DU Ra (*)

F. BRAGANÇA GIL (1), C. F. MIRANDA (2),
J. SOUSA LOBO (3) et J. GOMES FERREIRA (4)

RÉSUMÉ — Le rendement de fluorescence du niveau L du radium, $\overline{\omega}_L$, a été déterminé, en étudiant les coïncidences α - X_L émises au cours de la désintégration ${}_{90}^{228}Th \xrightarrow{\alpha} {}_{88}^{224}Ra$. Le résultat obtenu est

$$\overline{\omega}_L = 0,40 \pm 0,03$$

L'information expérimentale en ce qui concerne les rendements de fluorescence du niveau L est encore assez incomplète. Dans ce travail, on a cherché à obtenir la valeur du rendement de fluorescence du niveau atomique $L - \overline{\omega}_L$ du radium. La détermination a été effectuée dans le ${}^{224}Ra$ — noyau pair-pair — dont le spectre γ est relativement simple. En outre, le rayonnement γ le plus intense a une énergie (84,5 keV) qui n'est pas suffisante pour la conversion interne dans le niveau K .

Les deux déterminations de $\overline{\omega}_L$ du radium qui existent jusqu'à présent ont été réalisées avec le ${}_{90}^{230}Th$ (Io) par BOOTH *et al.* (1) et

(1) Chercheur du Conseil de Recherches Scientifiques d'Outre-Mer (J. I. U.) — Lisbonne (Portugal). Boursier du I. A. C.

(2) Institut du Radium de Paris (Annexe d'Arcueil).

(3) Boursier de l'OTAN à la Faculté des Sciences de Lisbonne.

(4) Faculté des Sciences de Lisbonne (Boursier du I. A. C.).

(*) Reçu le 30 novembre 1964

HALLEY *et al.* (2). Dans ce travail, nous avons entrepris une nouvelle détermination de $\overline{\omega}_L$ du radium, en étudiant la désintégration



Si on représente par I le nombre total d'atomes ionisés dans le niveau L par désintégration et par F le nombre total de photons X_L émis par désintégration, on a, d'après la nomenclature de ROSS *et al.* (3),

$$\overline{\omega}_L = \frac{F}{I} \quad (1)$$

Détermination de F. — Nous avons déterminé F en étudiant les coïncidences $\alpha - X_L$. En effet, le ${}^{228}Th$ se désintègre avec émission de particules α qui conduisent à l'état fondamental du ${}^{224}Ra$ (71% des désintégrations), ou à plusieurs niveaux excités de ce noyau, dont le plus important (28%) est le niveau de 84 keV, de spin et parité $2+$. Parmi les autres niveaux excités, il y a un dont l'énergie est 253 keV (0,2%) et le spin et parité est $4+$. Le rapport des énergies de ces deux niveaux ($253/84 \approx 3$) montre qu'ils sont de nature essentiellement rotationnelle, quoique le noyau du ${}^{224}Ra$ s'éloigne déjà un peu de la zone de grande déformation (4). En effet, d'après la formule de BOHR et MOTTELSON qui donne les énergies d'une bande de rotation,

$$E_{(rot)} = \frac{(h/2\pi)^2}{2J} [I(I+1) - K(K+1)],$$

nous avons, avec $K = 0$, $E_{(4+)}/E_{(2+)} = 3,3$.

Il s'agit alors d'une émission de rayonnement X_L après la desexcitation, par conversion interne, du premier niveau rotationnel d'un noyau pair-pair; ainsi, les photons X_L sont émis isotropiquement par rapport à la direction d'émission des particules α (5); nous pouvons, donc, déterminer le nombre total de photons X_L en connaissant ceux qui ont été émis selon un angle solide déterminé. Ceux-ci sont dénombrés au moyen des coïncidences observées entre les particules α du ${}^{228}Th$ et les photons résultants de la conversion interne du rayonnement γ originé dans la desexcitation du ${}^{224}Ra$. Dans cette desexcitation, il y a aussi émission de rayonnement γ , mais la différence d'énergie entre ce rayonnement et les rayons- X_L permet une bonne séparation. Le rayonnement γ émis est, d'ailleurs, de faible intensité,

même celui de 84 keV qui est originé dans le passage à l'état fondamental d'un niveau d'excitation très peuplé (28% des désintégrations). En effet, le coefficient de conversion interne de cette transition est élevé, vu leur énergie, multipolarité et numéro atomique de l'élément considéré.

Pour réduire la présence, dans la source, des dérivés du ^{228}Th et en attendant aux valeurs des périodes du ^{228}Th (1,9 ans) et de son descendant, le ^{224}Ra (3,64 jours), nous avons réalisé les déterminations pendant les premiers jours qui ont immédiatement suivi la préparation de la source.

Représentons maintenant par $\Omega_\gamma N_X / 4\pi = N_v$ le nombre des coïncidences vraies par unité de temps; $\Omega_\gamma / 4\pi$ désigne l'angle solide de détection des photons dans l'installation expérimentale employée, et N_α , le nombre des particules α détectées par unité de temps. Dans ces conditions, le nombre, non corrigé, des photons L émis par désintégration, que nous représentons par F_1 , est donné par

$$F_1 = \left(\frac{\Omega_\gamma N_X / 4\pi}{\Omega_\gamma / 4\pi} \right) / N_\alpha$$

Nous obtenons, alors, la valeur de F — nombre de photons X_L émis par désintégration — à partir de F_1 , en introduisant quelques corrections instrumentales dont il sera question plus loin.

Installation expérimentale. — Dans une détermination pareille effectuée avec le plutonium en étudiant la désintégration $^{242}\text{Cm} \rightarrow ^{238}\text{Pu}$, SALGUEIRO et al. (6) ont utilisé une chambre d'ionisation à grille pour la détection des particules α . Ne disposant pas d'une telle installation ou d'un détecteur à jonction de semiconducteurs, nous avons utilisé des compteurs à scintillations, soit pour les particules α , soit pour les photons, en employant des cristaux convenables avec des montages déjà essayés en coïncidences $\gamma - \gamma$ (7). Les photomultiplicateurs employés sont des *EMI 9514*, spécialement choisis pour la spectrométrie.

La détection des particules α a été réalisée à l'aide d'un cristal de *CsI (T1)*, de 2,54 cm de diamètre et 0,1 cm d'épaisseur, et les photons X_L en employant un cristal *Harshaw type HG*, avec un diamètre de 2,22 cm et une épaisseur de 0,25 cm; ce cristal est protégé par une fenêtre de beryllium avec la masse superficielle de $2,35 \times 10^{-2}$ g/cm². Dans ces conditions, nous avons réussi à détecter des photons d'énergie

inférieure à une dizaine de keV (fig. 1). Pour un rayonnement X avec l'énergie de 13 keV, l'absorption dans la fenêtre du cristal est inférieure à 1%. En ce qui concerne l'efficacité du cristal, on vérifie qu'elle est seulement de nature géométrique. En effet, étant donné l'énergie du

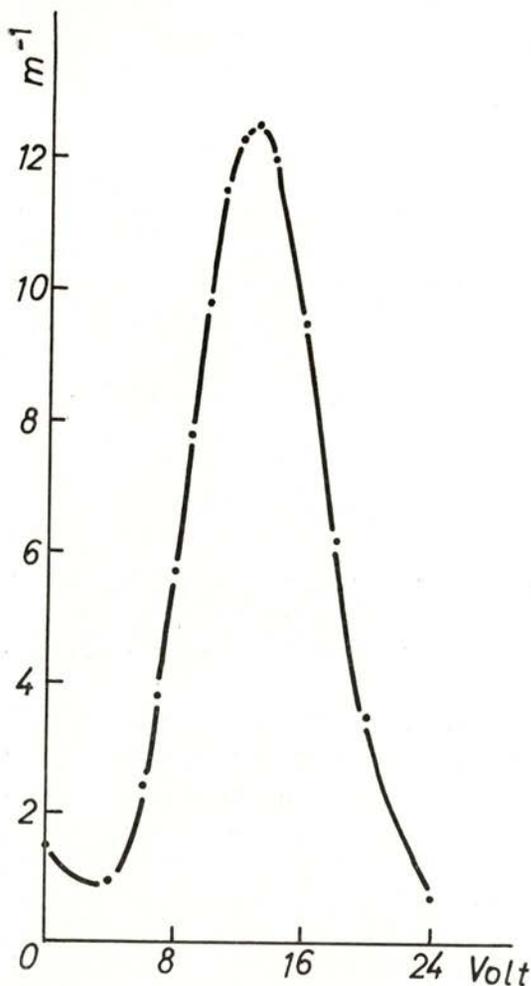
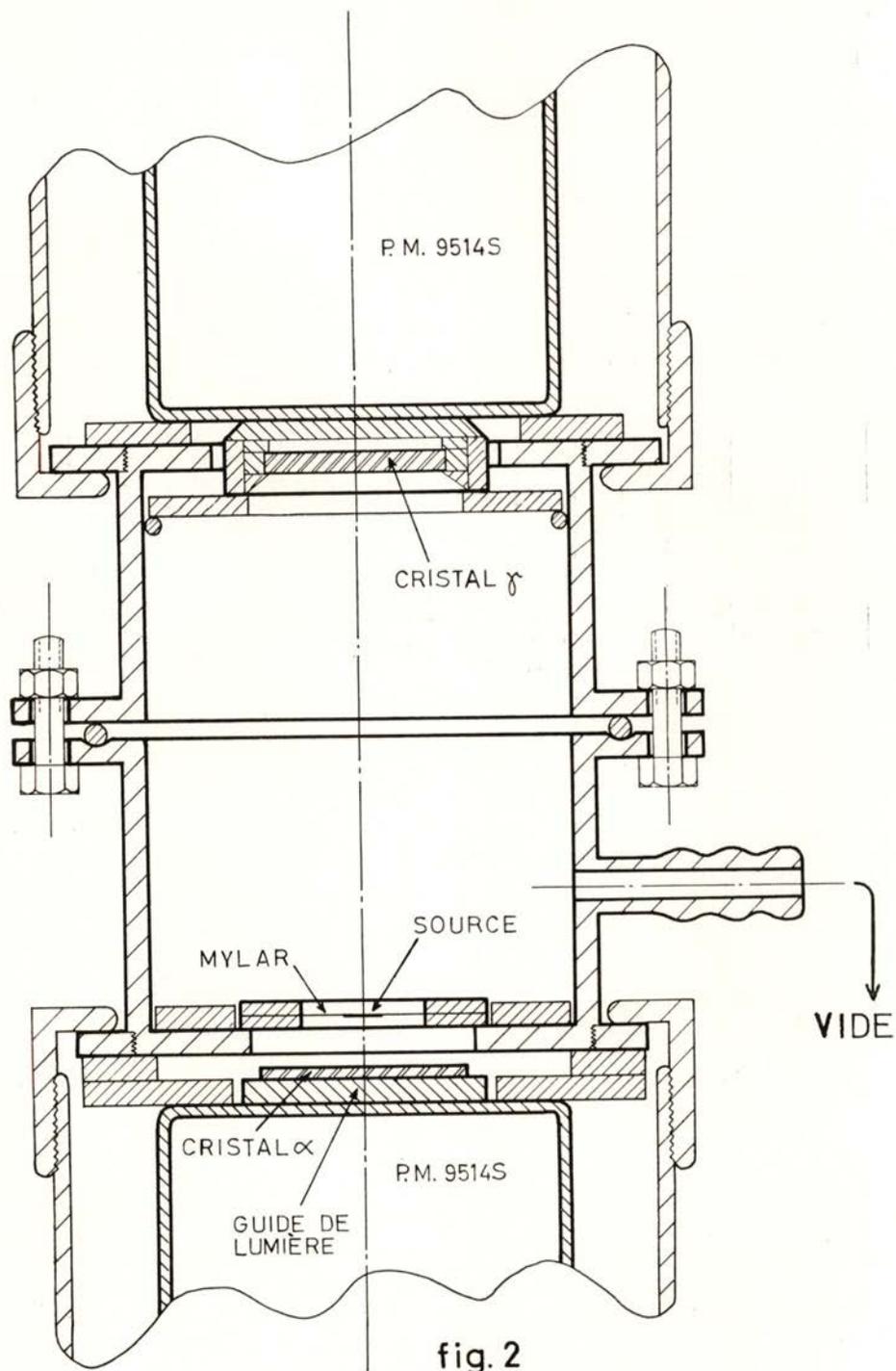


fig. 1

rayonnement X, l'épaisseur du cristal et le coefficient d'absorption du NaI, on constate que ce rayonnement est totalement absorbé dans le cristal.

Les compteurs à scintillations sont enfermés dans une chambre à vide, ayant des parois en laiton; les cristaux sont placés de façon à avoir symétrie de révolution au tour d'un même axe (fig. 2).



La source est centrée et colimée par rapport aux cristaux, pour bien définir l'angle solide.

Les impulsions sortant des anodes des photomultiplicateurs sont amplifiées dans des amplificateurs Baird-Atomic type 215 et analysées dans des sélecteurs d'amplitude Baird-Atomic type 510. Les impulsions qui sortent des sélecteurs d'amplitude attaquent un sélecteur de coïncidences Dynatron type 1036 C. Le temps de résolution du circuit de coïncidences, que nous avons employé, est $1 \mu\text{s}$. Trois échelles donnent, respectivement, le nombre des particules α , le nombre total des photons et le nombre des coïncidences. La connaissance du nombre total des photons détectés est nécessaire pour le

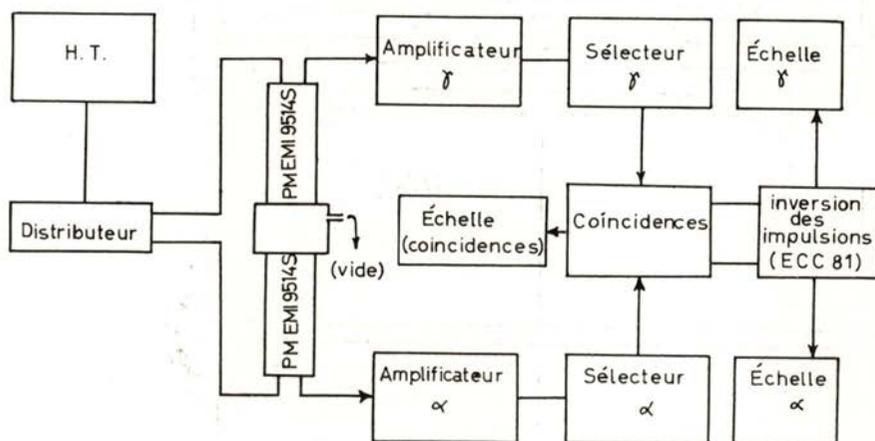


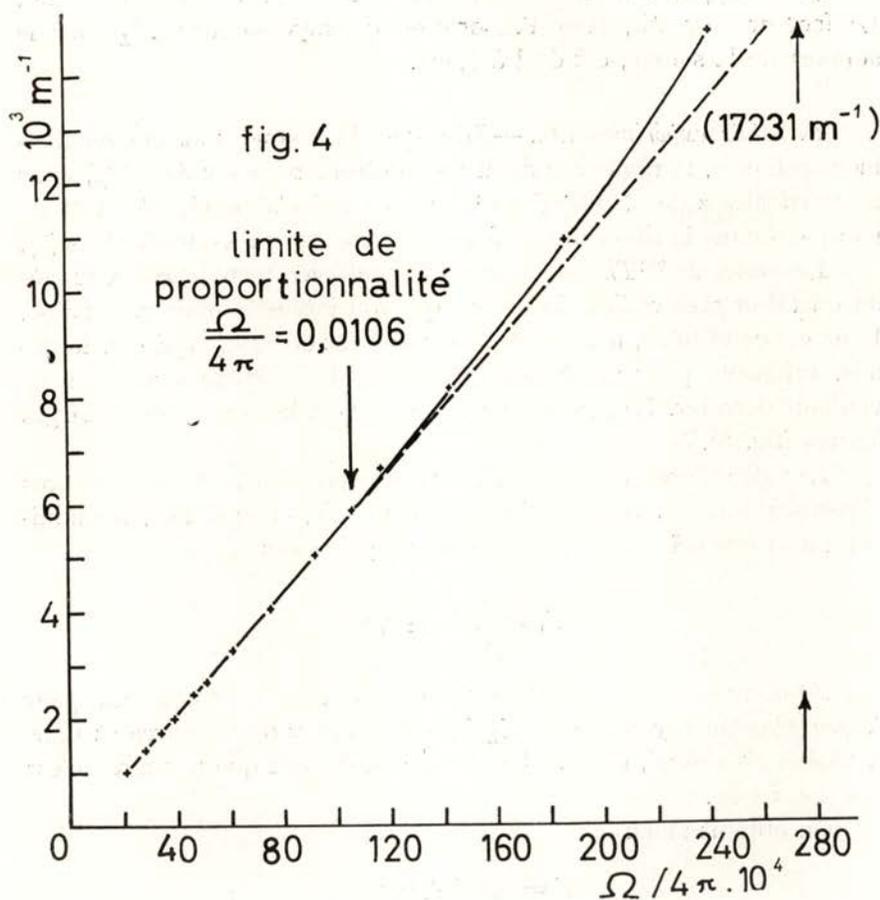
fig. 3

calcul des coïncidences fortuites. Le schéma de principe de l'ensemble de l'appareillage utilisé est présenté dans la fig. 3.

Angle solide de détection des photons. — D'après la méthode que nous avons employée, on voit que la rigueur dans la détermination de F dépend du degré de précision obtenu dans la mesure de l'angle solide de détection des photons. Ainsi, nous avons déterminé, avec une source ponctuelle, la limite de proportionnalité entre la valeur de l'angle solide $\Omega_\gamma/4\pi$ et le nombre des photons détectés par unité de temps (fig. 4). On vérifie que cette limite existe pour $\Omega_\gamma/4\pi = 0,0106$, ce qui correspond, dans notre cas, à une distance source-cristal égale à 5,45 cm. Nous pouvons donc déterminer l'angle solide à partir de la mesure de la distance source-cristal. L'erreur de cette détermination, pour une distance d'environ 5 cm, est égale à 4×10^{-4} par mili-

mètre d'erreur commis dans la mesure de la distance. L'angle solide que nous avons utilisé dans la détermination de F fut

$$\frac{\Omega_{\gamma}}{4\pi} = 0,00730 \pm 0,00003$$



La source de ^{228}Th employée a un rayon de 0,28 cm et le rayon du cristal est de 1,11 cm. Dans ces conditions, pour la distance source-cristal utilisée, la correction à introduire dans les résultats, du fait que la source n'est pas ponctuelle, est de 0,7% (8).

Source (1). — La source de ^{228}Th a été préparée à partir d'une solution chlorhydrique 0,1 N de ^{228}Ra ($M_s \text{ Th-1}$) et ses descendants,

(1) La source a été préparée à l'Institut du Radium de Paris (Annexe d'Arcueil).

^{228}Ac (*Ms Th-2*) et ^{228}Th (*Rd Th*). Celui-ci a été extrait au moyen d'une solution benzénique, 0,25 M de TTA et passé à une phase aqueuse au moyen d'une solution d'acide chlorhydrique 2N.

La solution de ^{228}Th a été déposée sur mylar avec la masse superficielle 0,9 mg/cm². Le mylar est placé entre deux anneaux de dural. Le facteur correctif, pour l'absorption du rayonnement X_L dans le support de la source, est égal à 1,003.

Résultats expérimentaux. — Dès que la source soit convenablement collimée, la résolution de notre spectromètre α est de 5,5 % pour les particules α de 5,15 MeV du ^{239}Pu , ce qui s'approche des valeurs indiquées dans la littérature pour les spectromètres α à scintillations (9).

La source de ^{228}Th , que nous avons employée, a été placée tout près du cristal et sans collimation parce que son intensité était très faible. Dans ces conditions, la résolution obtenue est de 8,5 %, qui est, toutefois, suffisante pour une bonne séparation des particules α que nous voulions détecter. La réponse du détecteur est linéaire dans de larges limites (fig. 5).

La valeur déterminée pour F_1 est la moyenne de quatre expériences effectuées dans un temps suffisant pour avoir, chaque fois, un minimum de 1 000 coïncidences. La valeur moyenne est

$$F_1 = 0,081 \pm 0,005$$

Nous avons calculé la valeur 1,03 comme facteur correctif pour l'absorption du rayonnement X_L dans le support de la source et dans la fenêtre du cristal, et pour l'angle solide, du fait que la source n'est pas ponctuelle.

On obtient alors:

$$F = 0,083 \pm 0,005$$

Détermination du nombre d'atomes ionisés, par désintégration, dans le niveau atomique L. — Le spectre α du ^{228}Th a été étudié surtout par S. ROSENBLUM et al. (10), F. ASARO et al. (11), F. S. STEPHENS JR. et al. (12); une information plus complète en ce qui concerne la désintégration de cet isotope est incluse dans la table des isotopes (13).

La désintégration α du ^{228}Th conduit à l'état fondamental du ^{224}Ra et à plusieurs niveaux excités; dans le tableau I nous indiquons les énergies d'excitation, spins, parités et intensités relatives de ces états.

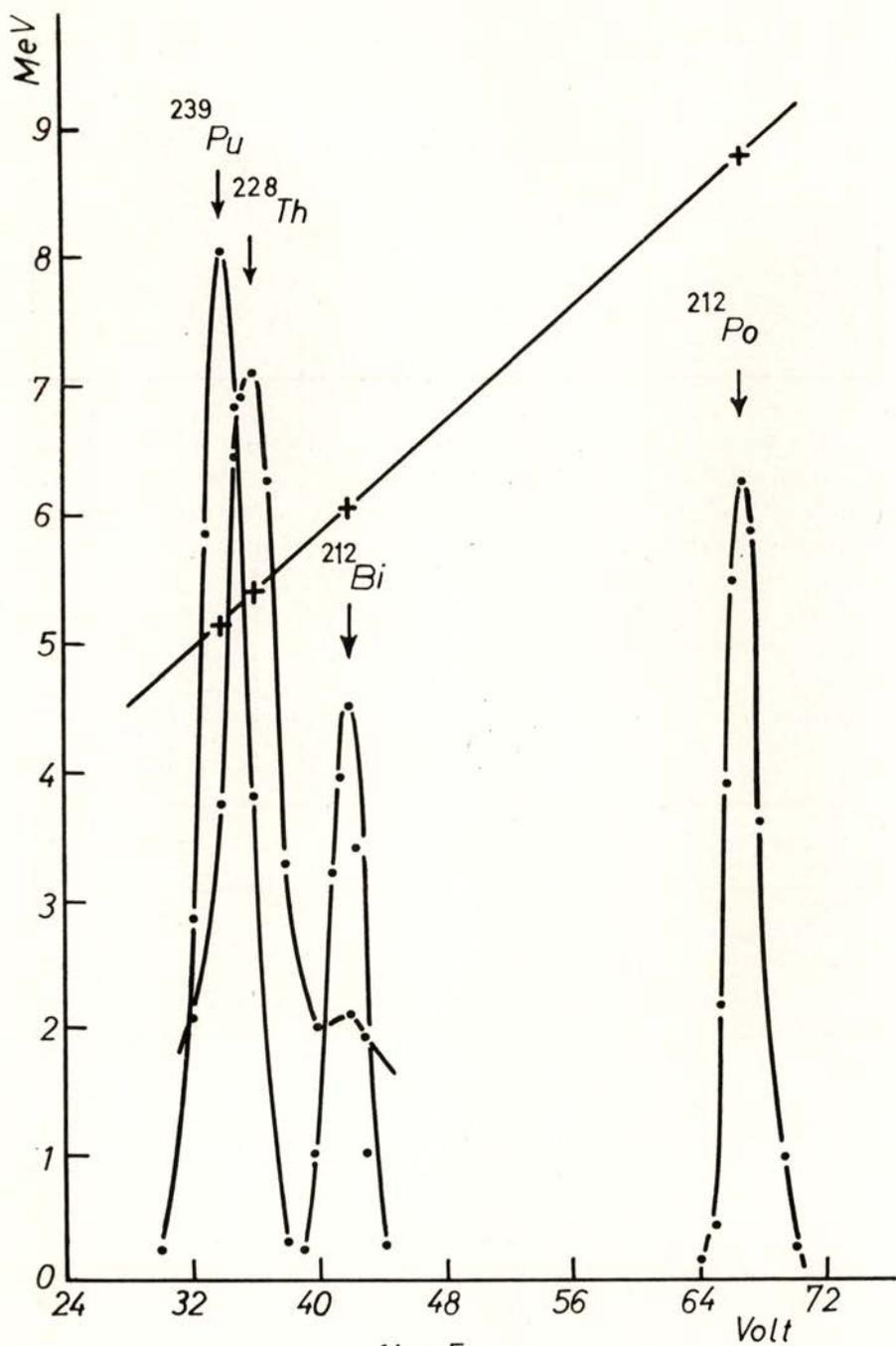


fig. 5

TABLEAU I

Niveaux d'énergie (keV)	Intensités relatives	Spins et parités	Énergies de photons γ (keV)
0	71	0+	—
84	28	2+	84,5
216	0,4	1—	132
253	0,2	4+	214
289	0,03	3—	169
			205

Le spectre d'électrons, qui résultent de la conversion interne du rayonnement d'énergie 84,5 keV, a été étudié par S. ROSENBLUM *et al.* (14, 15); dans le tableau II nous présentons les résultats expérimentaux de ces auteurs et les valeurs théoriques de SLIV et BAND (16).

TABLEAU II

Intensités relatives dans les spectres de conversion interne et d'émission du rayonnement de 84,5 keV

Auteur	I_I	I_{II}	I_{III}	$\Sigma (M+N+O+...)$	Rayonnement γ émis
ROSENBLUM <i>et al.</i>	—	1	0,83	—	
SLIV et BAND	0,040	1	0,78	—	0,12
Valeur adoptée....	$0,040 \pm 0,002$	1	$0,80 \pm 0,04$	$0,58 \pm 0,03$	$0,12 \pm 0,01$

La valeur de $\Sigma (M+N+O+...)$ et les erreurs présentées ont été estimées par les présents auteurs.

En ce qui concerne la détermination des intensités relatives des raies de conversion interne et d'émission originées au cours des transitions d'énergie 132 keV, 169 keV, 205 keV et 214 keV, nous avons utilisé exclusivement les valeurs théoriques de SLIV et BAND, en absence de données expérimentales. Dans le tableau III nous présentons ensemble les valeurs obtenues pour les intensités relatives des spectres de conversion interne et d'émission du ^{228}Th .

TABLEAU III

Énergie du rayonnement (keV)	K	L_I	L_{II}	L_{III}	$\Sigma(M+N+O+\dots)$	Rayonnement γ émis	Total
84,5	—	$0,040 \pm 0,002$	1	$0,80 \pm 0,04$	$0,58 \pm 0,03$	$0,12 \pm 0,01$	$2,54 \pm 0,05$
132 + transitions $K \rightarrow L$	$0,20 \pm 0,01$	$0,022 \pm 0,001$	$0,0093 \pm 0,0005$	$0,0084 \pm 0,0004$	—	1	$1,24 \pm 0,01$
		$0,0048 \pm 0,0005$	$0,056 \pm 0,003$	$0,097 \pm 0,005$			
		$0,027 \pm 0,0001$	$0,065 \pm 0,003$	$0,105 \pm 0,005$			
169 + transitions $K \rightarrow L$	$0,23 \pm 0,01$	$0,048 \pm 0,002$	$0,41 \pm 0,02$	$0,23 \pm 0,01$	$0,22 \pm 0,01$	1	$2,14 \pm 0,03$
		$0,0055 \pm 0,0005$	$0,064 \pm 0,003$	$0,11 \pm 0,01$			
		$0,054 \pm 0,002$	$0,47 \pm 0,02$	$0,34 \pm 0,01$			
205 + transitions $K \rightarrow L$	$0,069 \pm 0,003$	$0,0084 \pm 0,0004$	$0,0026 \pm 0,0001$	$0,0020 \pm 0,0001$	—	1	$1,08 \pm 0,00_3$
		$0,0017 \pm 0,0002$	$0,019 \pm 0,001$	$0,034 \pm 0,002$			
		$0,010 \pm 0,000_4$	$0,022 \pm 0,001$	$0,036 \pm 0,002$			
214 + transitions $K \rightarrow L$	$0,063 \pm 0,003$	$0,0077 \pm 0,0003$	$0,0023 \pm 0,0001$	$0,0018 \pm 0,0001$	—	1	$1,07 \pm 0,00_3$
		$0,0015 \pm 0,0002$	$0,018 \pm 0,001$	$0,031 \pm 0,002$			
		$0,0092 \pm 0,0004$	$0,020 \pm 0,001$	$0,033 \pm 0,002$			

Dans le calcul des nombres d'atomes ionisés dans les niveaux L_I , L_{II} , L_{III} , qui résultent des transitions $K \rightarrow L_I$, $K \rightarrow L_{II}$, $K \rightarrow L_{III}$, radiatives ou d'Auger, nous avons utilisé les valeurs

$$f_{KL_I} = 0,024 \pm 0,002 \quad f_{KL_{II}} = 0,279 \pm 0,002$$

$$f_{KL_{III}} = 0,487 \pm 0,002$$

données par WAPSTRA *et al.* (17), pour les probabilités, par atome, des transitions $K \rightarrow L_I$, $K \rightarrow L_{II}$, $K \rightarrow L_{III}$.

Le nombre de photons d'énergie 84,5 keV, 132 keV, 169 keV, 205 keV et 214 keV originés par désintégration sont, respectivement:

84,5 keV	0,2850 ± 0,0180
132 keV	0,0017 ± 0,0002
169 keV	0,0020 ± 0,0001
205 keV	0,0003 ± 0,0000 ₂
214 keV	0,0023 ± 0,0002

On obtient immédiatement ces résultats d'après les valeurs du tableau I. En employant ces valeurs et ceux du tableau III, on peut déterminer $n'_1, n'_2, n'_3, \dots, n_1^v, n_2^v, n_3^v$, c'est-à-dire, les nombres d'atomes ionisés, par désintégration, dans les niveaux L_I, L_{II}, L_{III} , originés, respectivement, dans la conversion interne des rayonnements d'énergie 84,5 keV, 132 keV, 169 keV, 205 keV et 214 keV (tableau IV).

TABLEAU IV

Energie du rayonnement (keV)	Nombre d'atomes ionisés, par désintégration, dans les couches		
	L_I	L_{II}	L_{III}
I — 84,5 .	0,0045 ± 0,0004	0,1112 ± 0,0075	0,0898 ± 0,0076
II — 132 ...	0,0000	0,0001 ± 0,0000 ₁	0,0001 ± 0,0000 ₁
III — 169 ...	0,0000	0,0004 ± 0,0000 ₃	0,0003 ± 0,0000 ₂
IV — 205 ...	0,0000	0,0000	0,0000
V — 214 ...	0,0000	0,0000	0,0001 ± 0,0000 ₁
n_i	$n_1 = 0,0045 \pm 0,0004$	$n_2 = 0,1117 \pm 0,0075$	$n_3 = 0,0903 \pm 0,0076$

Le nombre total d'atomes ionisés, par désintégration, dans le niveau L est $I = n_1 + n_2 + n_3$; nous aurons, enfin,

$$I = 0,206 \pm 0,011$$

Valeur du rendement de fluorescence $\overline{\omega}_L$. — Le rendement du niveau atomique L — ω_L — est déterminé en substituant dans l'expression (1) les valeurs trouvées pour F et I; on obtient alors

$$\overline{\omega}_L = \frac{0,083 \pm 0,004}{0,206 \pm 0,011} = 0,40 \pm 0,03$$

BOOTH *et al.* (1) ont aussi mesuré le rendement $\overline{\omega}_L$ du radium et ont obtenu le résultat $0,52 \pm 0,05$, qui n'est pas d'accord avec le nôtre; cette détermination a été réalisée en étudiant les coïncidences entre les photons γ d'énergie 142 keV et les photons X_L émis au cours de la désintégration ${}^{230}_{90}\text{Th} \xrightarrow{\alpha} {}^{226}_{88}\text{Ra}$. Une détermination plus récente, réalisée par HALLEY *et al.* (2), a donné la valeur $0,480 \pm 0,012$.

Une étude expérimentale systématique sur les rendements de fluorescence $\overline{\omega}_L$ de plusieurs éléments a été réalisée par LAY (18); dans ce travail, l'ionisation atomique était produite par bombardement photonique.

Dans la fig. 6 nous présentons l'ensemble des résultats de LAY et d'autres déterminations de $\overline{\omega}_L$ obtenues à l'aide de différents processus d'ionisation atomique.

Du diagramme de LAY on obtient la valeur 0,43 pour rendement de fluorescence du radium ($Z = 88$). Cependant, on doit remarquer que le rendement du niveau atomique L d'un élément dépend du processus selon est faite l'ionisation atomique; les rendements des sous-couches L sont indépendants de ce processus. Le désaccord entre notre résultat et celui de LAY est ainsi justifié. Un examen du diagramme de la fig. 6 nous montre que si l'ionisation atomique est produite par bombardement photonique, les résultats obtenus pour $\overline{\omega}_L$ sont systématiquement supérieurs à ceux qu'on détermine si l'ionisation est due à la conversion interne du rayonnement γ , capture électronique ... Cette conclusion s'accorde bien avec le résultat que nous avons trouvé pour $\overline{\omega}_L$ du radium.

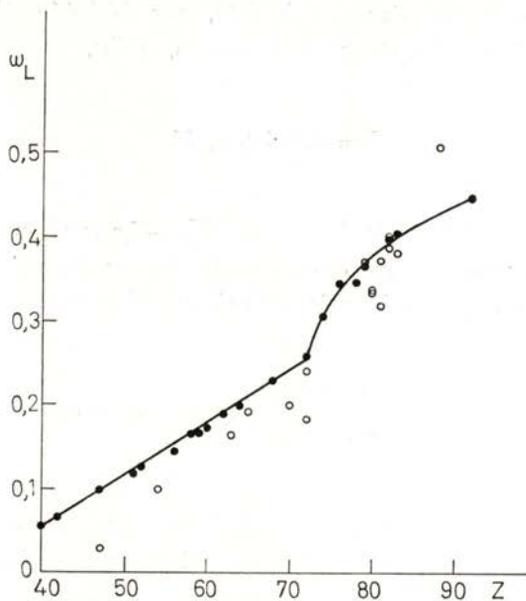


fig. 6

Nous exprimons notre reconnaissance à Mr. le Prof. Amaro Monteiro, directeur du Laboratoire de Physique de la Faculté des Sciences de Lisbonne, pour les facilités de travail qu'il nous a accordées.

Nous tenons aussi à remercier Mr. R. Muxart, chargé de la direction de l'Annexe d'Arcueil de l'Institut du Radium de Paris, pour avoir autorisé l'utilisation d'une solution de réserve de ^{228}Ra et Madame E. Pluchet par son aide dans la préparation de la source.

BIBLIOGRAPHIE

- (1) E. BOOTH, L. MADANSKY et F. RASETTI — *Phys. Rev.*, **102**: 800, 1956.
- (2) J. W. HALLEY et D. ENGELKEMEIR — *Phys. Rev.*, **134**: A24, 1964.
- (3) M. A. S. ROSS, A. J. COCHRAN, J. HUGHES et N. FEATHER — *Proc. Phys. Soc., A*, **68**: 612, 1955.
- (4) R. FOUCHER — *Thèse de Doctorat*, Paris, 1961.
- (5) P. FALK-VAIRANT, J. TEILLAC, G. VALLADAS et P. BENOIST — *C. R. Acad. Sc. Paris*, **238**: 1409, 1954.
- (6) L. SALGUEIRO, J. G. FERREIRA, J. J. H. PARK et M. A. S. ROSS — *Proc. Phys. Soc.*, **77**: 657, 1961.
- (7) F. BRAGANÇA GIL — *Thèse de Doctorat*, Paris, 1961.
- (8) S. H. VEGORS JR., L. L. MARSDEN et R. L. HEATH — *Calculated Efficiencies of Cylindrical Radiation Detectors* — Phillips Petroleum Company — Atomic Energy Division — Idaho, 1958.
- (9) Voir, par exemple, H. J. GALE — *Phys. Med. Biol.*, **6**: 577, 1962; M. A. ALVES, M. A. TAVARES, M. P. ALVES et M. I. BARRADAS — *Rev. Fac. Ciênc. U. Coimbra*, **29**: 121, 1960.
- (10) S. ROSENBLUM, M. VALADARES et M. PEREY — *C. R. Acad. Sc. Paris*, **228**: 385, 1949.
- (11) F. ASARO, F. S. STEPHENS JR. et I. PERLMAN — *Phys. Rev.*, **92**: 1495, 1953.
- (12) F. S. STEPHENS JR., F. ASARO et I. PERLMAN — *Phys. Rev.*, **107**: 1091, 1957.
- (13) D. STROMINGER, J. M. HOLLANDER et G. T. SEABORG. — *Rev. Mod. Phys.*, **30**: 585, 1958.
- (14) S. ROSENBLUM, M. VALADARES et M. GUILLOT — *C. R. Acad. Sci. Paris*, **253**: 238, 1951.
- (15) S. ROSENBLUM, M. VALADARES et M. GUILLOT — *J. Phys. Rad.*, **15**: 129, 1954.
- (16) L. A. SLIV et I. M. BAND — *Leningrad Physico-Technical Institute Report* (traduction de l'original russe), 1956; rapports 57 ICCK_I 58 ICCL_I, 1958 (Department of Physics — University of Illinois).
- (17) A. H. WAPSTRA, G. J. NIJGH, et R. VAN LIESHOUT — *Nuclear Spectroscopy Tables*, p. 87, Amsterdam, 1959.
- (18) H. LAY — *Zeit. Phys.*, **91**: 533, 1934.