

# SPECTRE D'ÉLECTRONS DE CONVERSION INTERNE ASSOCIÉS À LA TRANSMUTATION DU THORIUM-228 EN RADIUM-224\*

MARIA OTILDE COSTA (1)

et

MARIA REGINA SALES GRADE (2)

*RÉSUMÉ* — Le spectre d'électrons de conversion interne émis au cours de la transmutation  $^{228}_{90}\text{Th} \xrightarrow{\alpha} ^{224}_{88}\text{Ra}$  a été étudié selon la méthode des plaques nucléaires.

Les coefficients de conversion interne du rayonnement de 84,5 keV du radium ont été déterminés, et leurs valeurs sont les suivantes:

$$\alpha_L = 14 \pm 3; \alpha_{LII} = 7,6; \alpha_{LIII} = 6,3; \alpha_{M+N+\dots} = 3,8 \pm 0,9; \alpha_t = 18 \pm 4$$

*SUMMARY* — A nuclear emulsions study has been made of the conversion electrons emitted on the desintegration of  $^{228}\text{Th}$ .

The *L* and *M* internal conversion coefficients of the 84,5 keV  $\gamma$  radiation have been determined and the experimental results are:

$$\alpha_L = 14 \pm 3; \alpha_{LII} = 7,6; \alpha_{LIII} = 6,3; \alpha_{M+N+\dots} = 3,8 \pm 0,9; \alpha_t = 18 \pm 4$$

## 1. INTRODUCTION

La désintégration  $^{228}_{90}\text{Th} \xrightarrow{\alpha} ^{224}_{88}\text{Ra}$  a été étudiée depuis 1928 par plusieurs chercheurs, parmi lesquels nous citons ROSENBLUM *et al.* (1, 5), BELING *et al.* (2), VICTOR *et al.* (3), BATLEY *et al.* (4).

(\*) Reçu le 15 juin 1967.

(1) Centro de Estudos de Física — Faculdade de Ciências — Lisboa-2.

(2) Centro de Estudos de Radioquímica (C. E. E. N. - I. A. C.) — Faculdade de Ciências — Lisboa-2.

Le schéma de désintégration de ce noyau (6) est indiqué dans la fig. 1; les intensités des groupes  $\alpha_0$  et  $\alpha_1$  sont respectivement 71 % et 28 %.

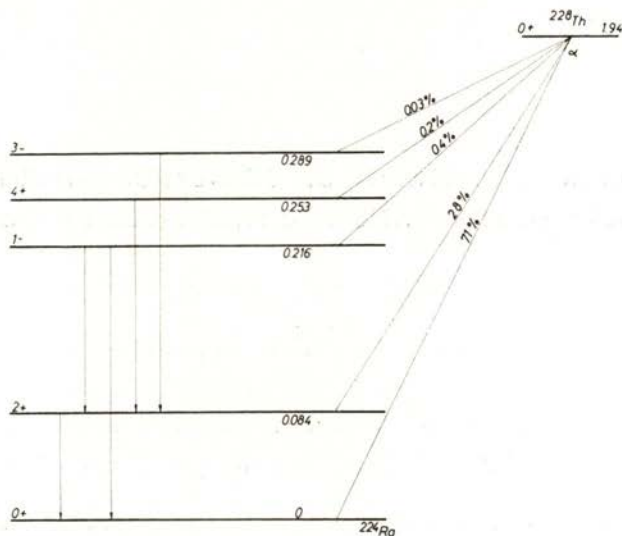


Fig. 1

Le rayonnement  $\gamma$  de 84,5 keV peut se convertir internement dans les couches  $L, M, \dots$  du  $^{224}\text{Ra}$ .

C. VICTOR *et al.* (3), en utilisant la méthode des coïncidences entre les particules  $\alpha$  et les électrons de conversion interne, ont déterminé le nombre d'électrons émis par désintégration, ce qui a permis de calculer le coefficient total de conversion interne.

M. RIOU (7) a déterminé le nombre de photons  $\gamma$  par 100 désintégrations, par la méthode d'absorption sélective, et, en attendant aux résultats expérimentaux de Mlle. ALBOUY & TEILLAC et VALADARES & ROSENBLUM sur les intensités relatives de spectres d'électrons de conversion interne, il a calculé le coefficient de conversion dans la couche  $L$  que nous désignerons par  $\alpha_L$ .

Les résultats obtenus par ces chercheurs s'écartent des valeurs théoriques qu'on peut obtenir, des tables de M. E. ROSE (8) et de I. A. SLIV *et al.* (9), par interpolation.

En employant la technique des émulsions nucléaires, nous avons repris l'étude du spectre d'électrons de conversion interne du rayonnement de 84,5 keV, émis au cours de la désintégration  $^{228}_{90}\text{Th} \rightarrow ^{224}_{88}\text{Ra}$ , afin d'obtenir une nouvelle détermination expérimentale du coeffi-

cient total de conversion interne dans la couche *L*, et aussi déterminer, pour la première fois, le coefficient de conversion interne dans la couche *M*.

## 2. MÉTHODE EXPÉRIMENTALE

### a) SOURCE RADIOACTIVE

La source du  $^{228}\text{Th}$ , pratiquement pure, a été obtenue par un procédé de purification qui élimine ses descendants, puisque l'échantillon dont nous partons contenait seulement comme impureté quelques vestiges de  $^{232}\text{Th}$  qu'on ne peut pas séparer par des procédés chimiques.

La phase fondamentale du traitement a consisté à extraire le thorium en solution chlorhydrique 0,1 *N*, par 2-thenoyltrifluoracétone,  $\text{SCH} = \text{CHCH} = \text{CCOCH}_2\text{COCF}_3$ , couramment connu par T. T. A. (10).

L'addition du T. T. A., en solution benzénique 0,25 molaire, a provoqué la formation du complexe respectif, passant le thorium complexionné à la phase organique, les autres éléments restant dans la solution aqueuse non miscible avec la première.

Des lavages successifs, avec de l'acide chlorhydrique à égale concentration, ont complété la purification. Finalement, la récupération de l'isotope, dispersé dans la phase organique, a été réalisée par une nouvelle extraction avec du *HCL* 2 *N*.

Afin d'éviter que dans l'imprégnation de la plaque le thorium se dépose près de la surface et maintenir le thorium en solution ionique à un *pH* voisin de 7, on a ajouté un peu d'acide citrique (11) qui origine la formation de complexes, permettant ainsi que le thorium pénètre plus profondément.

### b) MÉTHODE D'IMPRÉGNATION, RÉVÉLATION ET OBSERVATION DES PLAQUES

Nous avons employé des plaques nucléaires Ilford  $G_5$  avec émulsion photographique de 200  $\mu$  d'épaisseur.

L'imprégnation a été réalisé en plongeant les plaques pendant 40 minutes dans la solution citrique préparée et neutralisée, en les laissant sécher et en exposition pendant 24 heures.



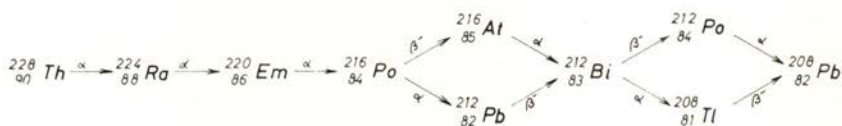
Ce temps d'exposition a été déterminé en appliquant les lois de désintégration radioactive aux isotopes  $^{228}\text{Th}$  et  $^{224}\text{Ra}$ , de telle façon que le nombre d'étoiles existant dans la plaque ne rende pas difficile l'observation. Ensuite, les plaques ont été révélées d'après le procédé connu par «révélation par cycle de températures», en employant un bain révélateur à base d'Elon.

Parmi les plaques imprégnées, nous avons choisi, pour réaliser le travail, la plaque qui, ayant le moindre voilé, se présentait uniformément révélée dans toute son épaisseur.

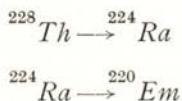
L'observation des plaques a été effectuée au moyen d'un microscope binoculaire Cooke Troughton et Simms. Les mesures ont été faites avec une amplification de 1200.

Au cours de l'étude de la plaque on a observé des «étoiles» de 4 branches avec une branche assez longue ( $\sim 48\ \mu$ ). Ceci nous a permis de confirmer le bon degré de purification de l'origine, et alors d'exclure la possibilité d'existence de particules  $\alpha$  provenant du  $^{224}\text{Ra}$  qui pourraient influencer la détermination des coefficients de conversion interne.

Le  $^{228}\text{Th}$  se désintègre successivement selon le schéma suivant:



En effet, s'il existait initialement quelques atomes de radium, les trajectoires des particules  $\alpha$  individuelles proviendraient des transmutations:



Comme les énergies des particules  $\alpha$  du  $^{228}\text{Th}$  et du  $^{224}\text{Ra}$  sont très proches (parcours dans l'émulsion  $24\ \mu$  et  $26\ \mu$  respectivement), il est tout à fait impossible de les distinguer dans l'histogramme.

Nous avons alors compté dans une région de la plaque étudiée les «étoiles» de 4 branches avec une branche de  $\sim 48\ \mu$  (qui correspondent à la désintégration  $^{212}\text{Po} \xrightarrow{208} \text{Pb}$ ).

Comme on connaît le rapport d'embranchement du  $^{212}\text{Bi} \xrightarrow{208} \text{Pb}$ , et, en nous servant des lois de désintégration radioactive, nous avons pu déterminer le nombre de particules  $\alpha$  qui proviennent d'atomes de  $^{224}\text{Ra}$ .

### 3. RÉSULTATS EXPÉRIMENTAUX

Nous avons étudié le parcours de 5386 particules  $\alpha$ , ayant mesuré le parcours réel de 2828 d'après une technique déjà décrite (12).

Vu que la principale cause d'erreur, dans la mesure des parcours, est la contraction et la possible distorsion de l'émulsion photographique, au cours du procédé de fixation, nous avons adopté comme critérium de ne pas considérer les particules  $\alpha$  dont la longueur de la projection horizontale de la trajectoire, dans la région supposée plane du champ d'observation du microscope, est inférieure à la longueur de la projection sur la normale au plan référé.

Ainsi, nous avons négligé 382 particules  $\alpha$ .

L'histogramme que l'on présente dans la fig. 2 correspond à 2446 particules. Le parcours est marqué en abscisses et le nombre correspondant de particules en ordonnées.

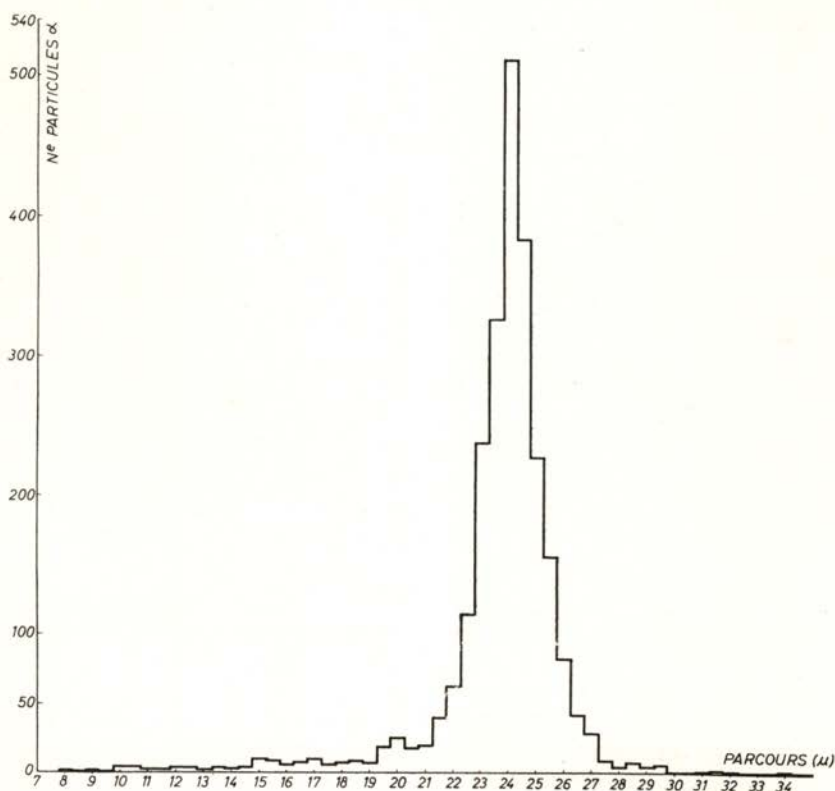


Fig. 2

Pour déterminer l'énergie des particules  $\alpha$ , nous nous sommes servis d'une courbe de calibration «parcours-énergie» (fig. 3), obtenue d'après les résultats de J. J. WILKINS (13) et J. ROTBLAT (14).

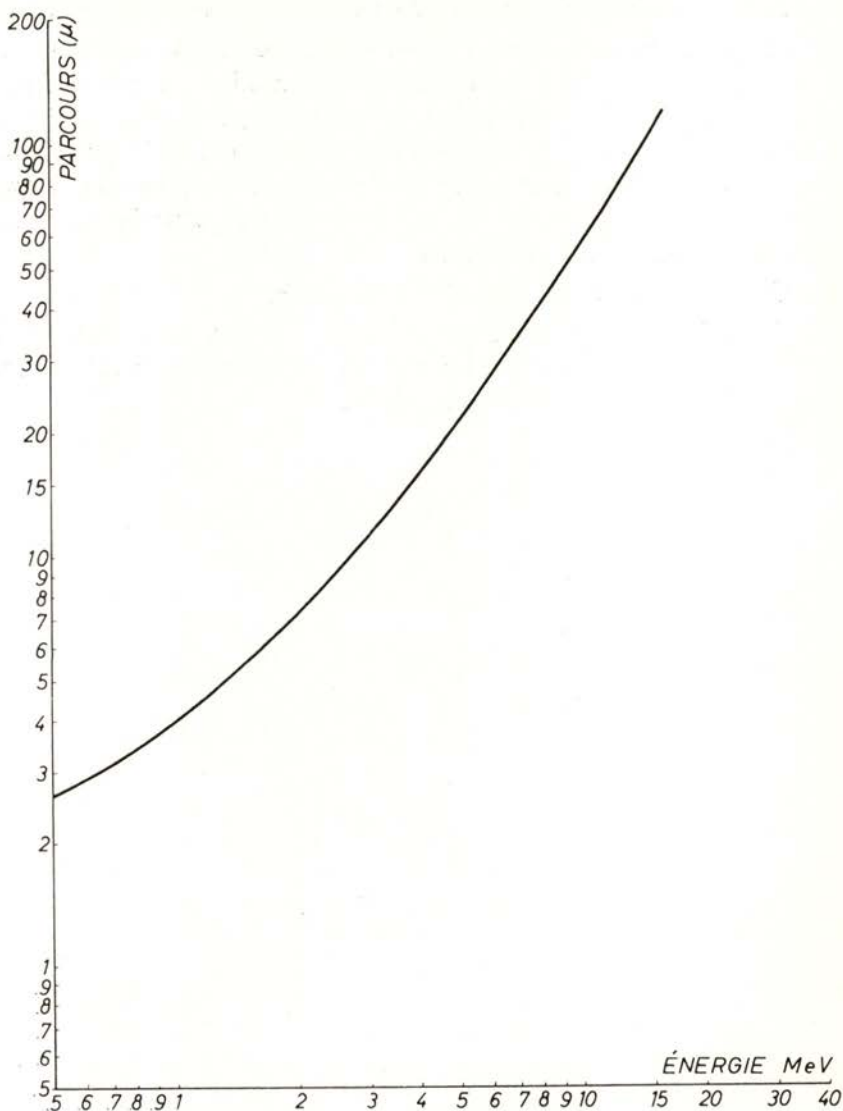


Fig. 3

Nous avons obtenu, comme valeur plus probable du parcours des particules  $\alpha$  de  $^{228}\text{Th}$ :

$$23,96 \pm 0,02 \mu,$$

ce qui correspond à l'énergie

$$\underline{E} = 5,42 \pm 0.01 \text{ MeV,}$$

ce qui est d'accord avec la valeur

$$E = 5,423 \text{ MeV}$$

présentée par ROSENBLUM *et al.* (1).

La résolution obtenue dans notre travail est  $\frac{\Delta E}{E} = 4,8 \%$ , qu'on peut considérer satisfaisante.

Des 5386 trajectoires des particules  $\alpha$  que nous avons étudiées, 1358 sont associées à la trajectoire d'un électron de conversion et 66 sont associées à la trajectoire de 2 électrons.

L'énergie des électrons de conversion a été déterminée d'après le nombre de grains qui constituent la trajectoire de chaque électron, en nous servant de la courbe de calibration «nombre de grains-énergie» (fig. 4) obtenue pour la plaque en étude.

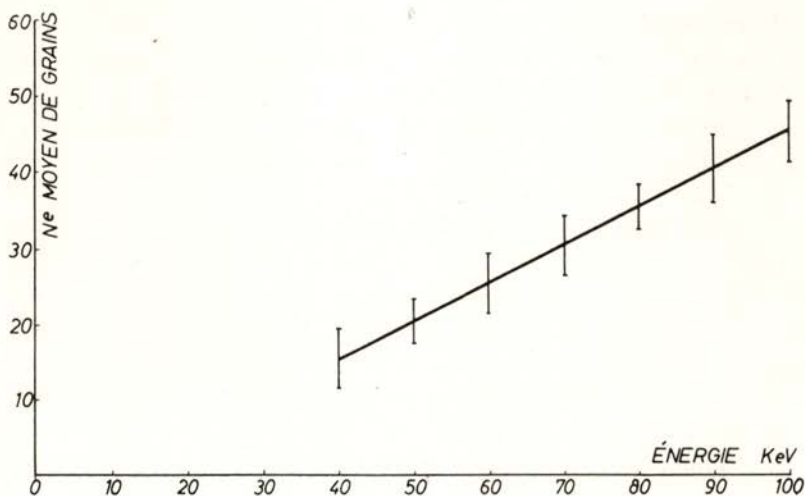


Fig. 4

Comme le nombre de grains de la trajectoire d'un électron dépend des conditions de révélation, nous avons commencé par faire une calibration «parcours-nombre de grains», mesurant les parcours dont la configuration dans la plaque nous permette d'obtenir une mesure plus rigoureuse.



Le diagramme présenté dans la fig. 4 a été obtenu par comparaison avec la courbe parcours-énergie pour électrons, de ROSS *et al.* (15), valable aussi pour les plaques Ilford G<sub>5</sub>.

Comme il existe quelques particules  $\alpha$  qui proviennent du  $^{232}\text{Th}$  et la désintégration de ce noyau origine aussi un spectre d'électrons de conversion interne, il a fallu déduire, du spectre total d'électrons de conversion interne, la partie qui correspond au  $^{232}\text{Th}$ .

Afin d'obtenir le spectre d'électrons de conversion interne émis par le  $^{232}\text{Th}$ , nous nous sommes servis d'un travail effectué avec des plaques nucléaires par S. W. PEAT *et al.* (16).

Nous avons conclu qu'il existait 180 particules  $\alpha$  provenant du  $^{232}\text{Th}$ , dont 43 sont associées à la trajectoire d'un électron.

Par conséquent, nous devons seulement considérer 5206 particules  $\alpha$  du  $^{228}\text{Th}$ , parmi lesquelles 1315 sont associées à la trajectoire d'un électron et 66 sont associées à la trajectoire de deux électrons.

La fig. 5 représente l'histogramme des électrons de conversion interne émis lors de la désintégration du  $^{228}\text{Th}$ . Le nombre de grains est marqué en abscisses et le nombre d'électrons correspondants en ordonnées.

Parmi les diverses trajectoires d'électrons de conversion interne, nous en avons trouvé 47 dont il a été seulement possible d'évaluer une valeur approchée du nombre de grains. De ce fait, ces électrons ne figurent pas sur l'histogramme; néanmoins ils ont été considérés dans le calcul des coefficients de conversion interne, parce qu'on est sûre quant à leur origine.

D'après l'observation de l'histogramme de la fig. 5, nous avons pu conclure l'existence de deux maxima différents, se situant un entre 28 et 29 grains et l'autre entre 36 et 37 grains, ce qui est d'accord avec l'énergie des électrons de conversion interne du rayonnement  $\gamma$  de 84,5 keV dans les niveaux *L* et *M* du radium, respectivement.

L'analyse de l'histogramme et des 47 parcours d'électrons qui n'y figurent pas nous ont permis de conclure que les nombres d'électrons de conversion dans les niveaux *L* et *M* + *N* + ... par 100 particules  $\alpha$  émis sont:

$$\begin{aligned} n_L &= 20,8 \pm 0,4 \\ n_{M+N+\dots} &= 5,7 \pm 0,3 \end{aligned}$$

et le nombre total d'électrons de conversion interne est

$$n_i = 26,5 \pm 0,4 .$$



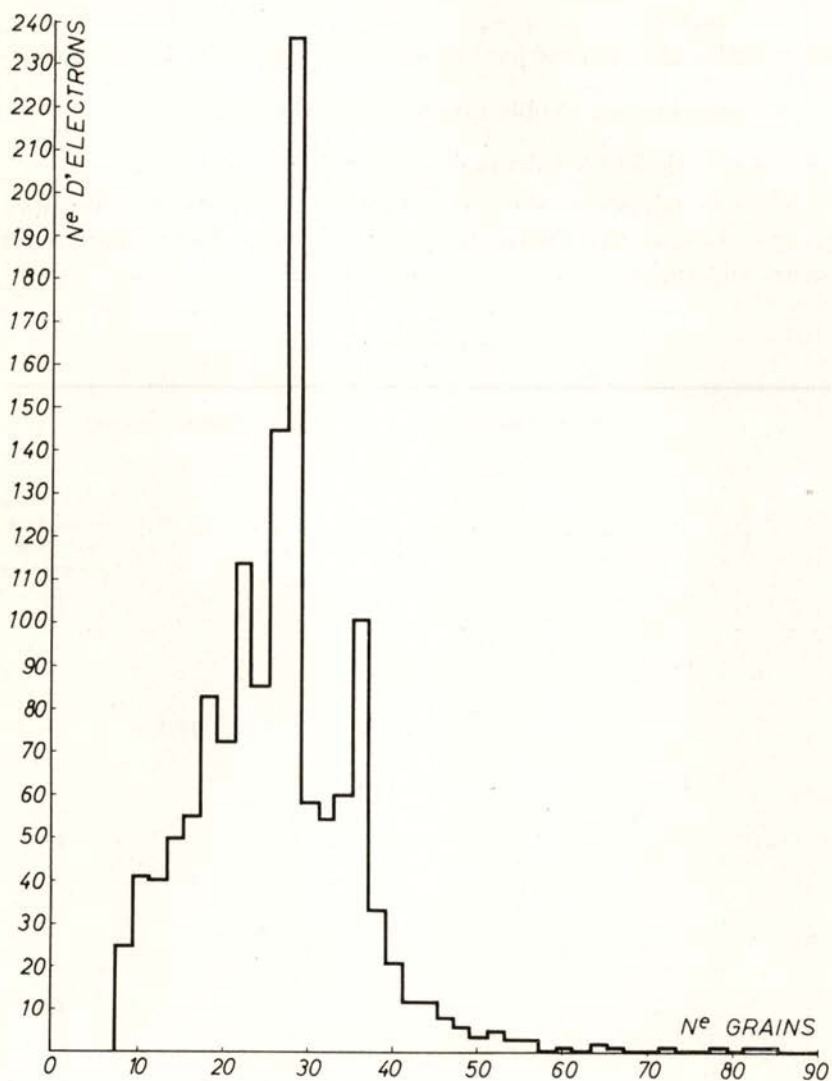


Fig. 5

Utilisant la valeur  $28,0 \pm 0,4$  <sup>(1)</sup> comme intensité du groupe  $\alpha_1$ , du  $^{228}\text{Th}$ , nous avons déterminé les coefficients de conversion interne et, ensuite, les rapports  $\frac{n_L}{n_M}$  et  $\frac{n_L}{n_{M+N+\dots}}$

(<sup>1</sup>) Erreur estimée par les auteurs.

Le coefficient  $\alpha_M$  a été calculé en admettant  $\alpha_M = 3\alpha_{N+\dots}$ , résultat qui a été confirmé par l'expérience en plusieurs désintégrations.

À partir du résultat obtenu pour  $\alpha_L$  et de la relation  $\frac{\alpha_{LII}}{\alpha_{LIII}} = 1,19$  (5), nous avons calculé les valeurs de  $\alpha_{LII}$  et de  $\alpha_{LIII}$ .

Dans le tableau I nous présentons nos résultats expérimentaux et ceux obtenus par différents auteurs et nous les comparons aux valeurs théoriques.

TABLEAU I

Valeurs déterminées	Résultats expérimentaux			Résultats théoriques		
	VICTOR <i>et al.</i> (3)	M. RIOU (7)	Présent travail	M. E. ROSE (8)	I. A. SLIV <i>et al.</i> (9)	Valeur de $\alpha_M$ corrigée d'après la méthode semi-empirique (20)
$\alpha_t$	12	—	$18 \pm 4$	—	—	—
$\alpha_L$	—	$10 \pm 4$	$14 \pm 3$	15,8	16,1	—
$\alpha_M + N + \dots$	—	—	$3,8 \pm 0,9$	—	—	—
$\alpha_M$	—	—	2,9	7,5	—	3,8
$\frac{\alpha_L}{\alpha_M + N + \dots}$	—	—	$3,7 \pm 1,1$	—	—	—
$\frac{\alpha_L}{\alpha_M}$	—	—	4,8	2,1	—	4,2
$\alpha_{LII}$	—	—	7,6	8,4	—	—
$\alpha_{LIII}$	—	—	6,3	7,0	—	—

Quoique nos valeurs s'écartent un peu des valeurs théoriques, elles sont néanmoins celles qui s'en rapprochent le plus.

En conformité avec ce qui a déjà été cité par plusieurs chercheurs dans le domaine de la spectroscopie magnétique d'autres radio-éléments, par ex. (17) et (18), et aussi dans le domaine des plaques nu-

cléaires (19), nous avons trouvé que la relation expérimentale  $\frac{n_L}{n_M}$  est supérieure à la valeur théorique, ce qui confirme que les tables de ROSE donnent des valeurs très élevées pour les coefficients de conversion interne dans la couche *M*.

Y. Y. CHU *et al.* (20) ont suggéré une méthode semi-empirique pour la correction des valeurs des coefficients de conversion interne dans la couche *M*; dans la dernière colonne du tableau 1 nous présentons la valeur de  $\alpha_M$  corrigée selon cette méthode.

Nous avons déterminé l'énergie du rayonnement  $\gamma$  d'après les maxima de l'histogramme (électrons de conversion dans les niveaux *L* et *M*).

On a trouvé respectivement:

$$E_\gamma = 84,6 \text{ keV}$$

$$E_\gamma = 84,3 \text{ keV .}$$

Des 66 trajectoires de particules  $\alpha$ , associées à deux électrons, il y en a 62 dont un des électrons a une énergie voisine de 67 keV (conversion dans le niveau *L*) et l'autre une énergie correspondante à un électron d'Auger, émis au cours de la réorganisation de l'atome ionisé au niveau *L*.

Le coefficient de visibilité des électrons d'Auger, dans la plaque pour cette région de nombres atomiques, est environ de 10 % (21), (22); cependant nous avons pu calculer le rendement d'Auger et le rendement de fluorescence du niveau *L*.

Nous avons trouvé:

$$a_L = 0,57 \pm 0,06$$

et

$$W_L = 0,43 \pm 0,06.$$

Ces valeurs s'accordent assez bien avec les valeurs présentées dans un travail récent sur le rendement de fluorescence du niveau *L* du  $^{224}\text{Ra}$  (23).

En ce qui concerne les 4 restantes trajectoires de particules  $\alpha$  associées à deux électrons, deux ont pu être interprétés comme dûs à la conversion interne du rayonnement de 169 keV en cascade avec le rayonnement de 84 keV.



Nous remercions vivement Monsieur le Prof. JOSÉ SARMENTO, recteur de l'Université Classique de Lisbonne et directeur du Centre d'Études de Physique de la Faculté de Sciences, pour les facilités de travail qu'il nous a accordées.

Nous exprimons à Madame LÍDIA SALGUEIRO et à Monsieur le Prof. JOSÉ GOMES FERREIRA toute notre reconnaissance pour l'orientation apportée à cet étude aussi bien que pour les nombreux conseils et enseignements qu'ils nous ont dispensé au cours de ce travail.

Nous remercions également Madame MARIA TERESA GONÇALVES pour toute l'aide qu'elle a bien voulu nous apporter.

## BIBLIOGRAPHIE

- (1) ROSENBLUM, S., VALADARES, M., et PEREY, M. — *C. R. Acad. Sci.*, Paris, **222**: 385, 1949
- (2) BELING, FELD et HALPERN — *Phys. Rev.*, **84**: 155, 1951.
- (3) VICTOR, C., TEILLAC, J., FALK-VAIRANT, P., et BOUSSIÈRES, G. — *J. Phys. Rad.*, **13**: 565, 1952.
- (4) BATTEY, MADANSKY et RASETTI — *Phys. Rev.*, **89**: 182, 1953
- (5) ROSENBLUM, S., VALADARES M., et GUILLOT, M. — *J. Phys. Rad.*, **15**: 129, 1954.
- (6) STROMINGER, D., HOLLANDER, J. M., et SEABORG, G. T. — *Rev. Mod. Phys.*, **30**: 585, 1958
- (7) RIOU, M. — Thèse, Paris, 1952.
- (8) ROSE, M. E. — *Internal Conversion Coefficients*, Amsterdam, 1958
- (9) SLIV, L. A., et BAND, I. M. — *Coefficients of Internal Conversion of Gamma Radiations*, Leningrad, 1956 et 1958.
- (10) MOORE — *Am. Soc. Testing Materials*, Specifications Tech. Publ., **238**: 13, 1958.
- (11) PICCIOTTO, E., et WILGARIS, S. — *Anal. Chim. Acta*, **16**: 530, 1957.
- (12) FERREIRA, J. G. — *Gaz. Física*, **3**: 231, 1960
- (13) WILKINS, J. J. — *Range Energy Relations for Ilford Nuclear Emulsions*, Harwell, 1951.
- (14) ROTBLAT, J. — *Nature*, **167**: 550, 1951.
- (15) ROSS, M. A. S., et ZAJAC, B. — *Nature*, **162**: 923, 1948, et **164**: 311, 1949.
- (16) PEAT, S. W., et ROSS, M. A. S. — *Proc. Phys. Soc.*, **68A**: 923, 1955.
- (17) DIONISIO, J. S. — *C. R. Acad. Sci. (Paris)* **254**: 257, 1962.
- (18) MOREIRA, J. A. — *C. R. Acad. Sci. (Paris)*, **255**: 884, 1962.
- (19) GONÇALVES, M. Teresa — Thèse, Lisbonne, 1963.
- (20) CHU, Y. Y., et PERLMAN, M. L. — *Phys. Rev.*, **135**: 319, 1964.
- (21) PEAT, S. W. — Communication particulière.
- (22) BISGARD, K. — *Proc. Phys. Soc.*, **65A**: 677, 1952.
- (23) GIL, F. Bragança, MIRANDA, C. F., LOBO, J. Sousa, et FERREIRA, J. Gomes — *Portgal. Phys.*, **4** (1): 17, 1965.