PORTUGALIAE PHYSICA

VOLUME 4
FASCÍCULO 1
1 9 6 5

INSTITUTO DE ALTA CULTURA
CENTROS DE ESTUDOS DE FÍSICA DAS UNIVERSIDADES PORTUGUESAS

PORTUGALIAE PHYSICA

Fundadores: A. Cyrillo Soares, M. Telles Antunes, A. Marques da Silva, M. Valadares.

VOLUME 4 1965 FASCÍCULO 1

VOLUMES PUBLICADOS:

Vol. 1 — 1943-45 — 326 pp.
Vol. 2 — 1946-47 — 256 pp.
Vol. 3 — 1949-54 — 173 pp.

Redacção: Laboratório de Física da Faculdade de Ciências — Lisboa-2 (Portugal)

Comissão de redacção:

J. Moreira de Araújo — Carlos Braga — Carlos Cacho — A. Pires de Carvalho — M. Abreu Faro — J. Gomes Ferreira — António Gião — F. Bragança Gil — Manuel Laranjeira Amaro Monteiro — J. Pinto Peixoto — J. da Providência — Lídia Salgueiro — J. de Almeida Santos — José Sarmento — António da Silveira — J. Veiga Simão.

ÍNDICE

(Table des matières)

Editorial 3-6

Sur l'évolution d'un nuage de particules en cours d'accélération vers une distribution statistique limite, par J. ANDRADE E SILVA et G. LOCHAK 7-16

Le rendement de fluorescence du niveau L *du* Ra, par F. BRAGANÇA GIL, C. F. MIRANDA, J. SOUSA LOBO et J. GOMES FERREIRA 17-32

Réactions (p, xn) *et évaporation nucléaire*, par RUI DA SILVEIRA 33-110

Liste des publications reçues actuellement en échange avec Portugaliae Physica 111-112

Instructions pour les auteurs 113

CDU 53 (469) (05)

PORTUGALIAE PHYSICA

VOLUME 4
FASCÍCULO 1
1 9 6 5

EDITORIAL

Portugaliae Physica *reaparece após uma interrupção de onze anos. Foi a única revista portuguesa que, até hoje, se consagrou exclusivamente à publicação de trabalhos de investigação científica no domínio das Ciências Físicas. Nos três volumes publicados entre 1943 e 1954 incluiu nas suas páginas notáveis trabalhos da autoria não só de investigadores portugueses mas também de investigadores estrangeiros de diversos centros científicos.*

O acolhimento feito a Portugaliae Physica *nos meios científicos estrangeiros está bem patente na larga difusão que teve e na troca que estabeleceu com as mais importantes publicações então existentes no domínio das Ciências Físicas, recebendo ainda hoje a redacção grande parte dessas publicações, graças ao espírito de generosa compreensão dos seus editores.*

Poder-se-á perguntar se este reaparecimento será oportuno e se terá algum sentido fazer ressurgir uma revista científica que suspendeu a sua publicação há mais de dez anos. De facto, Portugaliae Physica *surgiu numa época em que a grande maioria dos centros de investigação europeus tinham a sua actividade gravemente comprometida pelos trágicos acontecimentos que ocorriam: estava-se no auge da 2.ª guerra mundial. Os físicos europeus tinham então dificuldades quase insuperáveis para comunicar entre si e para encontrar uma revista em que, regularmente, pudessem publicar os resultados das suas investigações. Mas hoje o número de publicações periódicas no domínio da Física é muito elevado e há mesmo opiniões autorizadas contrárias à sua multiplicação.*

No entanto, todos os físicos conhecem a longa espera que quase sempre têm os seus originais antes que surjam impressos; isto levou mesmo à constituição de periódicos destinados apenas à publicação de

curtas notas, numa tentativa de dar escoamento rápido à enorme quantidade de resultados que constitui a investigação em Física no nosso tempo. Portugaliae Physica *poderá assim dar a sua contribuição útil, neste domínio, aos físicos de todos os países.*

Por outro lado, a investigação no domínio da Física em Portugal dá indícios de vir a retomar o lugar, modesto, mas realmente significativo, que já teve no quadro científico europeu, cerca de duas décadas atrás.

Os centros universitários organizam-se, o número de bolseiros enviados para o estrangeiro aumenta sem cessar e surgem novos centros de investigação, que forçosamente virão a contribuir com trabalhos originais no domínio das Ciências Físicas.

É já hoje um lugar comum afirmar-se que sem investigação nas ciências fundamentais um país não pode atingir a maioridade do ponto de vista cultural e no plano estritamente técnico. Por toda a parte se fundam novos centros dedicados à investigação pura e, simultâneamente, multiplicam-se as Faculdades de Ciências, pois, sem dúvida, são estas instituições os centros criadores e coordenadores da investigação nas ciências fundamentais. E, entre estas, a Física tem um lugar de primeira importância!

Portugaliae Physica *pretende vir a publicar, além de originais estrangeiros que lhe forem enviados, a produção científica dos centros portugueses de investigação nas Ciências Físicas.*

EDITORIAL

Portugaliae Physica *reparaît aujourd'hui, après une interruption d'une dizaine d'années. Elle fut, jusqu'à présent, la seule revue portugaise consacrée exclusivement à la publication de travaux dans le domaine des Sciences Physiques.*

Dans les trois volumes déjà parus (1943-1954) elle a publié d'importantes études réalisées soit par des physiciens portugais soit par des chercheurs étrangers de plusieurs centres scientifiques. L'échange établi entre Portugaliae Physica *et les plus importantes revues de Physique du monde montre bien l'accueil obtenu dans les milieux scientifiques étrangers; la rédaction reçoit encore un certain nombre de ces publications grâce à l'esprit de compréhension et solidarité scientifique de leurs éditeurs.*

*
* *

Portugaliae Physica *resumes now its publication after a long break of eleven years. It has been the only Portuguese review strictly devoted to the publication of scientific work in the field of Physical Sciences.*

Some important papers both by Portuguese and foreign researchers have been included in the volumes already published (1943-1954). Portugaliae Physica *was widely accepted by foreign scientific centers and obtained an important exchange with the best reviews of Physics in the world; some of these publications are still received due to the remarkable understanding of their editors.*

SUR L'ÉVOLUTION D'UN NUAGE DE PARTICULES EN COURS D'ACCÉLÉRATION VERS UNE DISTRIBUTION STATISTIQUE LIMITE (*)

J. ANDRADE E SILVA et G. LOCHAK

(Laboratoire Joliot-Curie de Physique Nucléaire, Orsay, et Institut Henri Poincaré, Paris)

RÉSUMÉ — On montre qu'à l'intérieur d'un faisceau de particules en cours d'accélération dans un accélérateur circulaire dont la h. f. est modulée existent des courants de convection responsables de l'évolution de la densité de répartition des particules dans le faisceau. Cette évolution, qui peut être regardée comme une illustration d'un problème célèbre déjà étudié par Maxwell, tend à rapprocher la composition du faisceau d'une certaine distribution statistique limite.

1. — INTRODUCTION

Si le mouvement d'ensemble d'un paquet de particules dans un accélérateur circulaire, ainsi que les oscillations betatroniques et synchrotroniques sont aujourd'hui assez bien connus, il ne semble pas qu'on puisse en dire autant de la composition interne du paquet lui-même [1]. Bien que cette connaissance puisse s'avérer importante même pour l'étude de certains problèmes pratiques — par exemple pour l'étude de la répartition énergétique des particules reçues sur une cible [2] — on se borne le plus souvent à admettre qu'à l'intérieur du paquet règne une sorte d'homogénéité assez mal définie.

Ce travail a pour but de montrer que l'étude de l'équation classique des oscillations synchrotroniques peut apporter quelques éclaircissements à cette question. En établissant une correspondance entre le mouvement des particules dans le plan de symétrie horizontal de la

(*) Reçu le 10 novembre 1964

machine et les mouvements d'un point représentatif dans l'extension en phase de l'équation des oscillations synchrotroniques nous montrons l'existence d'un mouvement de rotation de toutes les particules du faisceau autour de la particule synchrone. Cela permet de démontrer que la composition du faisceau évolue spontanément vers une distribution statistique d'équilibre qui s'exprime en fonction d'un seul paramètre. Enfin, un dernier paragraphe examine les possibilités d'utilisation pratique de cette analyse théorique.

2. — SUR L'EVOLUTION INTERNE DU FAISCEAU

Nous ferons ici abstraction des oscillations bétatroniques qui ne changeraient rien à cette étude et qu'il suffirait ensuite de superposer aux mouvements que nous allons étudier. La façon la plus naturelle de décrire le faisceau accéléré dans le plan de symétrie horizontal de la machine consiste alors à introduire des coordonnées polaires (r, θ) définies dans ce plan à partir du centre de la machine et d'un rayon fixe arbitraire. Mais nous pouvons tout aussi bien nous placer dans un système de coordonnées qui tourne avec le faisceau et mesurer les angles polaires à partir d'un rayon tournant avec la vitesse angulaire ω_o de la h. f. accélératrice, ω_o étant une fonction donnée du temps pour chaque machine. D'après la définition du déphasage φ d'une particule comme étant l'angle que fait à chaque instant son azimut avec celui de la h. f., cela revient à remplacer les coordonnées (r, θ) par les coordonnées (r, φ).

La définition du déphasage que nous venons de rappeler permet d'écrire, par ailleurs,

$$\frac{d\varphi}{dt} = \dot{\varphi} = \omega\,(r) - \omega_o\,(t) \tag{1}$$

où $\omega\,(r)$, la pulsation d'une particule, est une fonction monotone de r. Vu que la dérivée de ω par rapport à r ne s'annule jamais au cours du mouvement, l'équation (1) établit une relation biunivoque entre $\dot{\varphi}$ et r à chaque instant, relation dont la forme explicite est d'ailleurs assez compliquée.

Considérons alors un espace abstrait de coordonnées cartésiennes $(\varphi, \dot{\varphi})$. La relation (1) nous définit une transformation ponctuelle biunivoque (et conforme) entre l'espace $(\varphi, \dot{\varphi})$ et le plan de l'espace physique qui tourne à la vitesse ω_o dans le plan de symétrie horizontal de la machine. Aux cercles $r = C^{te}$ de l'espace physique correspon-

dent les droites $\dot{\varphi} = C^{te}$ de l'espace $(\varphi, \dot{\varphi})$ et aux rayons $\varphi = C^{te}$ de l'espace physique correspondent les droites $\varphi = C^{te}$ orthogonales aux droites $\dot{\varphi} = C^{te}$. On remarquera qu'à la droite $\dot{\varphi} = 0$ correspond le cercle $r = r_s$ (l'indice s identifiant toujours des grandeurs attachées à la particule synchrone), car alors $\omega = \omega_s = \omega_o$; d'autre part, $\dot{\varphi} > 0$ pour $\omega > \omega_o$ et donc (puisque ω décroit quand r croit) $\dot{\varphi} > 0$ quand $r < r_s$; enfin, $\dot{\varphi} < 0$ quand $r > r_s$.

Nous voyons maintenant qu'au lieu d'étudier le mouvement du faisceau dans le plan tournant à la vitesse ω_o nous pouvons étudier le mouvement de son image que nous venons de définir dans le plan cartésien $(\varphi, \dot{\varphi})$. Mais l'évolution de cette image nous la connaissons bien, car $(\varphi, \dot{\varphi})$ n'est autre que l'extension en phase de l'équation des oscillations synchrotroniques de McMillan-Veksler

$$\frac{E}{K\omega^2}\,\frac{d^2\varphi}{dt^2} + \frac{eV}{\pi}\sin\varphi = \frac{eV}{\pi}\sin\varphi_s \qquad (2)$$

où E représente la valeur relativiste de l'énergie de la particule, e sa charge électrique, V l'amplitude de la chute de potentiel en un tour de machine et K un paramètre exprimé en fonction de l'indice du champ n et de la vitesse v de la particule par la formule

$$K = 1 + \frac{n}{1-n}\,\frac{c^2}{v^2} \qquad (3)$$

Aux trajectoires des particules dans le plan tournant correspondra donc le «portrait de phase» de l'équation (2) dans le plan $(\varphi, \dot{\varphi})$, déterminé de la façon habituelle [3] par l'équation

$$\frac{d\dot{\varphi}}{d\varphi} = \frac{eV}{\pi}\,\frac{K\omega^2}{E}\,\frac{\sin\varphi_s - \sin\varphi}{\dot{\varphi}} \qquad (4)$$

Au lieu d'étudier cette équation, nous pouvons néanmoins nous borner à remarquer qu'un tel portrait de phase est rendu intuitif par l'interprétation mécanique de l'équation (2) comme l'équation d'un pendule simple soumis à un couple extérieur constant. On voit qu'en deçà de la séparatrice des mouvements périodiques et apériodiques les trajectoires dans le plan de phase sont des courbes formées autour du point d'équilibre stable du typo «centre» $\varphi = \varphi_s$, trajectoires qui sont naturellement toutes décrites dans le même sens mais avec des

périodes qui varient d'une trajectoire à l'autre. Cela traduit bien, en effet, le non-isochronisme des mouvements pendulaires périodiques autour de l'état d'équilibre.

La correspondance que nous avons établie montre qu'à une déformation près, définie par notre changement de variables, ces mouvements de l'espace des phases représentent les mouvements vrais des particules dans le système d'axes qui tourne en suivant le faisceau. Ainsi le faisceau se comporte comme une sorte de masse fluide en rotation autour de la particule synchrone. Cette masse fluide est divisée en couches concentriques, chacune étant définie par une amplitude d'oscillation synchrotronique et une période de rotation autour de la particule synchrone. La topologie de ces mouvements internes du faisceau est illustrée par la fig. 1.

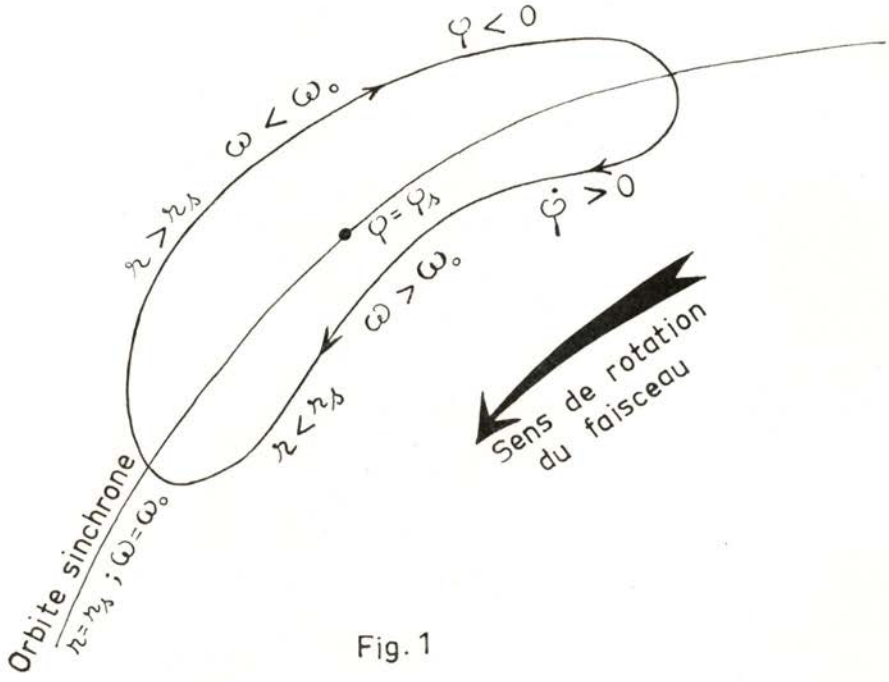


Fig. 1

Nous remarquerons encore à ce propos que, du fait de la variation lente des paramètres de l'équation (2) pendant la durée de l'accélération, ces trajectoires que nous avons représentées comme fermées dessinent en fait des sortes de figures de Lissajous autour du point $\varphi = \varphi_s$ dont la position par rapport à la h. f. accélératrice change elle-même lentement avec le temps.

3. — LES DISTRIBUTIONS D'EQUILIBRE DES PARTICULES DANS LE FAISCEAU

Nous avons mis en évidence au paragraphe précédent l'existence de certains mouvements périodiques des particules à l'intérieur d'un faisceau accéléré. Nous voulons maintenant étudier les conséquences qui peuvent en résulter pour la densité de répartition des particules à l'intérieur du faisceau. Pour cela, nous commencerons par déterminer l'expression des distributions statistiques d'équilibre.

Introduisons l'hamiltonien

$$H = \frac{p^2}{2} + \frac{\varepsilon}{I} (\cos q + q \sin \omega_s); \tag{5}$$

nous vérifions immédiatement que, compte tenu des définitions

$$\varepsilon = \frac{e V}{\pi} , \quad I = \frac{E}{K \omega^2} , \quad p = \dot{\varphi} , \quad q = \varphi \tag{6}$$

les équations canoniques correspondantes

$$\dot{p} = \frac{\varepsilon}{I} (\sin q - \sin \varphi_s), \quad \dot{q} = p \tag{7}$$

sont équivalentes à l'équation des oscillations synchrotroniques (2). Nous allons donc chercher les distributions statistiques d'équilibre correspondantes à l'hamiltonien (5).

Si les paramètres I et φ_s de l'hamiltonien pouvaient être regardés comme indépendants du temps, l'énergie du système $H = h$ serait une intégrale première et les distributions d'équilibre statistique s'écriraient sous la forme habituelle

$$\rho = \rho(h) \tag{8}$$

On sait néanmoins qu'une telle hypothèse, tout en étant valable pendant des intervalles de temps qui ne sont pas trop grands par rapport à la période de rotation des ions, devient inexacte si elle est admise, par exemple, pendant la durée de plusieurs oscillations de phase. Dans ce cas il ne peut être question d'admettre la conservation de l'énergie. Les données de fonctionnement des diverses machines nous

apprennent néanmoins que la variation des paramètres I et φ_s est suffisamment lente et régulière (toujours à l'échelle des périodes synchrotroniques) pour qu'on puisse regarder leur changement comme adiabatique. À l'échelle de la durée de vie du faisceau nous devrons donc prendre comme constant, au lieu de l'énergie, l'invariant adiabatique

$$J(h) = \oint p\, dq = 2 \int_{\alpha(h)}^{\beta(h)} \sqrt{2h - \frac{2\varepsilon}{I}(\cos\varphi + \varphi \sin\varphi)}\, d\varphi \quad (9)$$

où $\alpha(h)$ et $\beta(h)$ sont les valeurs extrêmes prises par φ au cours du mouvement. Il s'ensuit naturellement que les distributions d'équilibre statistique du faisceau pour les durées de l'ordre de son temps de vie ne pourront être que de la forme

$$\rho = \rho(J) \quad (10)$$

Autrement dit, la variation lente des paramètres physiques de la machine restreint la forme possible des distributions statistiques d'équilibre du faisceau. Celles-ci correspondent toujours à des répartitions uniformes de points sur chacune des trajectoires $H = h$ de l'espace (p, q) mais dépendent de h à travers la fonction $J(h)$ définie para (9).

4. — LES PROPRIETES D'ERGODISME DE LA DISTRIBUTION INITIALE

Etudions maintenant l'évolution du nuage des particules qui constituent le faisceau, dans le cas général où la distribution statistique d'équilibre n'est pas réalisée au départ. Pour cela, effectuons une transformation de contact sur les variables (p, q) pour décrire le système dynamique à l'aide de la variable d'action J [donnée para (9)] et de sa conjuguée angulaire w. Les équations canoniques s'écriront alors

$$\dot{J} = 0 \qquad \dot{w} = \frac{d\,H(J)}{d\,J} = \nu(J) \quad (11)$$

et la période T de rotation des particules autour de la particule synchrone prendra la forme explicite.

$$T(J) = \frac{1}{\nu(J)} = \frac{dJ}{dH} = \frac{dJ}{dh} = 2 \int_{\alpha}^{\beta} \frac{d\varphi}{\sqrt{2h - \frac{2\varepsilon}{I}(\cos\varphi + \varphi \sin\varphi_s)}} \quad (12)$$

Dans ce nouveau plan de phase qui correspond aux coordonnées polaires (J, w) les mouvements des particules à l'intérieur du faisceau ont maintenant une image très simple: d'après les équations (11) ce seront des cercles concentriques $J = C^{te}$ décrits d'un mouvement uniforme $W = \nu(J)\ t + C^{te}$. La distribution d'équilibre y sera donnée par une répartition uniforme de points sur chacun des cercles et le nombre N de points dans un petit élément de surface, d'aire $J \Delta J \Delta w$ sera simplement donné par

$$N = C\ \rho\ (J)\ J \Delta J \Delta w \tag{13}$$

C étant un facteur de normalisation.

Supposons maintenant que le faisceau ait, au départ, une certaine répartition initiale

$$\rho\ (J_o,\ w_o)\ J_o \Delta J_o \Delta w_o = \rho\ (J,\ w_o)\ J\ d\ J\ d\ w_o \tag{14}$$

et examinons comment cette répartition d'équilibre va évoluer au cours du temps. La réponse est, apparemment, immédiate. Etant donné que sur chaque cercle (correspondant à une certaine valeur de J) tous les points se déplacent à la même vitesse, la répartition initiale sur chaque cercle ne subit qu'un mouvement tournant d'ensemble, de période $T(J)$. On pourrait donc être tenté de conclure que la répartition d'équilibre ne sera jamais atteinte.

Une telle conclusion serait néanmoins parfaitement inexacte d'un point de vue physique. Un instrument de mesure ne pourra jamais distinguer dans le faisceau deux trajectoires suffisamment rapprochées et donc comprises dans un petit intervalle de valeurs $(h,\ h + \delta h)$ de la fonction H. A ce petit continuum correspond dans l'espace (J, w) une mince couronne circulaire comprise entre les cercles $J = C^{te}$ et $J + \delta J = C^{te}$ et c'est cette couronne circulaire et non le cercle de rayon J qui doit être mise en correspondance avec les résultats d'une mesure possible. Il s'ensuit qu'à l'intérieur de ce que, physiquement, on doit appeler un cercle du plan (J, w) il y aura une infinité de fréquences de rotation légèrement différentes; les particules qui s'y trouvaient au départ y resteront mais en se rattrapant et se dépassant les unes les autres et changeant ainsi leur répartition dans la petite couronne.

Comment évoluera alors la distribution initiale? Nous le savons fort bien, puisque c'est là un problème célèbre posé et résolu par Maxwell dans ses recherches classiques sur la structure des anneaux de Saturne [4]. D'autres savants illustres comme Poincaré [5] et BOREL

[6] se sont aussi intéressés à cette question. Nous nous bornerons donc à transcrire la conclusion essentielle de ces travaux qui peut s'énoncer comme suit:

La répartition dans une couronne d'épaisse δJ et quelle que soit sa forme initiale (14) tend avec le temps vers la répartition d'équilibre (13) où

$$\rho\,(J) = \frac{1}{2\,\pi} \int_{o}^{2\,\pi} \rho\,(J,\, w_o)\; d\,w_o \tag{15}$$

Le temps nécessaire à la réalisation de cette répartition d'équilibre statistique, ce qu'on pourrait appeler le temps de relaxation du faisceau, sera bien sur assez variable d'une machine à une autre. En effet, pour une certaine répartition initiale, il dépend à la fois du nombre total d'oscillations synchrotroniques qui ont lieu pendant le temps de vie du faisceau et du déphasage acquis par deux particules voisines au bout de chacune de ces oscillations. En plus, on doit remarquer que la notion même de particules «voisines» ne peut être définie dans chaque cas particulier car elle même dépend de la précision des mesures qu'on se propose de faire sur le faisceau.

5. — CONCLUSIONS

Trois idées essentielles ressortent de cette analyse sur la distribution des particules à l'intérieur du faisceau:

a) Le mouvement des particules dans le faisceau a pour image l'évolution d'un nuage de points dans l'extension en phase de l'équation des oscillations synchrotroniques;
b) Cela met clairement en évidence que son évolution interne résulte de l'existence de courants de convection susceptibles d'être décrits sous une forme analytique très simple;
c) Il existe une distribution statistique d'équilibre dans le faisceau et cette distribution sera effectivement atteinte si le nombre d'oscillations de phase pendant la durée de vie du faisceau est suffisamment grand.

Les deux premières remarques gardent leur valeur dans tous les cas. La composition du faisceau à l'injection (distribution initiale) nous est donnée par une densité ρ qui dépend de deux variables r et θ mais nous pouvons aussi l'exprimer en fonction des variables

φ et $\dot{\varphi}$ ou des variables J et w. Les raisonnements précédents montrent alors comment, à l'aide de l'équation de McMillan et Veksler, on peut trouver la composition du faisceau à un instant ultérieur quelconque. Nous remarquerons en particulier que l'usage des variables J et w facilite beaucoup ce calcul.

En outre, si la machine est telle que le nombre d'oscillations synchrotroniques d'une particule est assez grand, la distribution finale ne dépend que d'un seul paramètre et on peut la trouver par la simple formule (15). Il suffira d'ailleurs dans ce cas de connaître la distribution initiale en fonction de J pour déterminer immédiatement la distribution finale.

Ce travail a été réalisé au Laboratoire Joliot-Curie de Physique Nucléaire dans le cadre du Service «Théories des accélérateurs et Mécanique non-linéaire» dirigé par M. F. Fer.

BIBLIOGRAPHIE

(1) Voir, par exemple, M. S. LIVINGSTON and Y. P. BLEWETT — *Particle Accelerators*, Mc-Graw-Hill, N. Y., 1962.

(2) J. ANDRADE E SILVA et G. LOCHAK — *C. R. Ac. Sc.*, t. 256 (1963), 2308; *Nucl. Inst. Meth.*, 26 (1964), 22.

(3) A. A. ANDRONOW and C. E. CHAIKIN, *Theory of Oscillations*, Princeton Un. Press, 1949.

(4) J. C. MAXWELL — *Phil. Mag.* (1857).

(5) H. POINCARE — *J. Phys. Theor. et Appl.*, 4ème série, t. 5 (1906), 369.

(6) E. BOREL, *Ann. Sc. Ec. Normal Sup.*, t. XXIII (1906), 3.

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 determiné, en étudiant les coïncidences α-X_L émises au cour de la désintégration $^{228}_{90}Th \xrightarrow{\alpha} {}^{224}_{88}Ra$. 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 $^{230}_{90}Th$ (*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

$$^{228}_{90}Th\ (Rd\ Th) \longrightarrow {}^{224}_{88}Ra.$$

Si on réprésente 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),

$$\overline{\omega_L} = \frac{F}{I} \tag{1}$$

Détermination de F. — Nous avons déterminé F en étudiant les coincidences $\alpha - X_L$. 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 ≈ 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 emission 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 energie, 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'instalation expérimentale employée, et $N\alpha$, le nombre des particules α detectées 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

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

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 $^{242}Cm \longrightarrow {}^{238}Pu$, 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* (*Tl*), 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 berylium avec la masse superficielle de $2{,}35 \times 10^{-2}$ g/cm^2. 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'éfficacité du cristal, on vérifie qu'elle est seulement de nature géométrique. En effet, étant donné l'énergie du

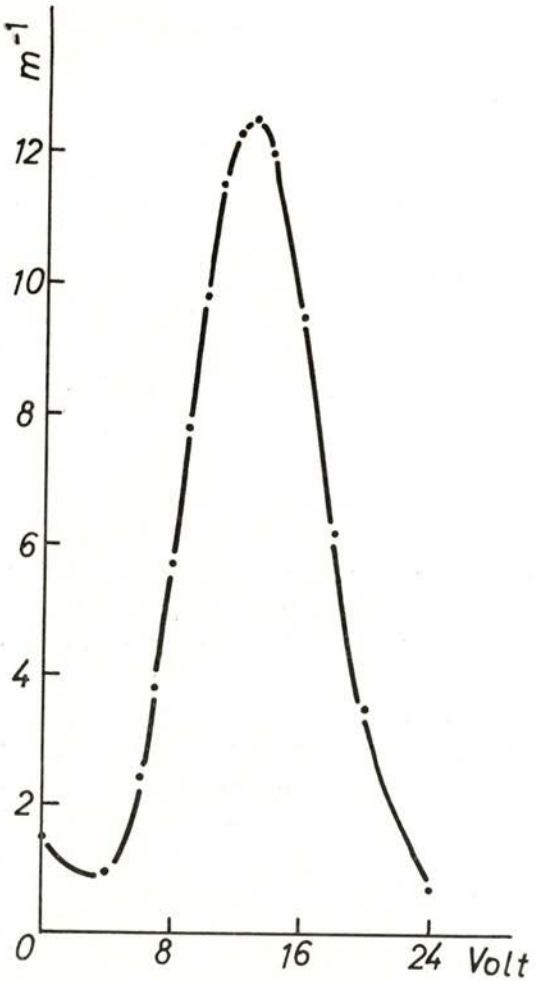


fig. 1

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).

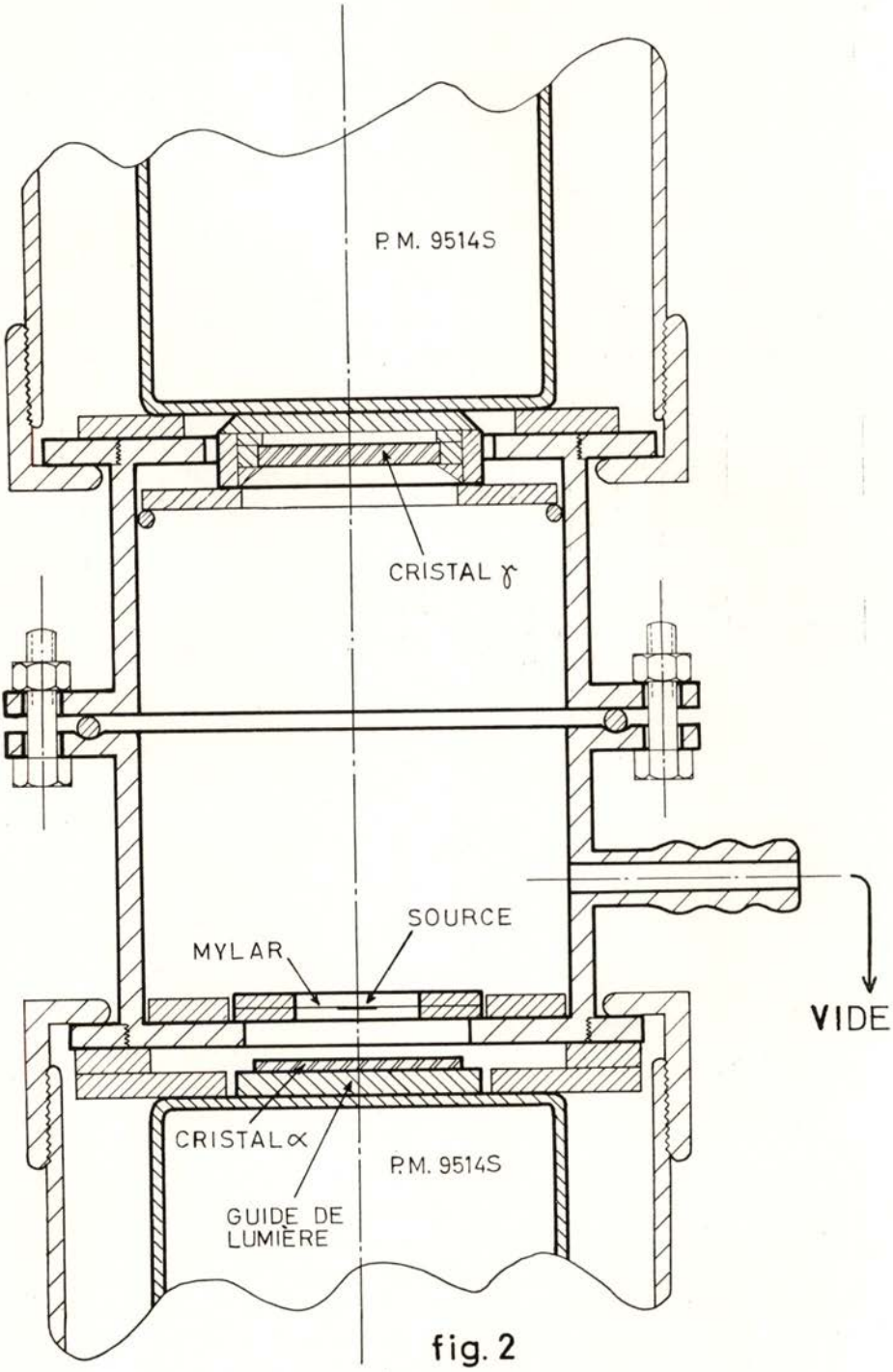

P. M. 9514S
CRISTAL γ
SOURCE
MYLAR
VIDE
CRISTAL α
P.M. 9514S
GUIDE DE
LUMIÈRE

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 μs. 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

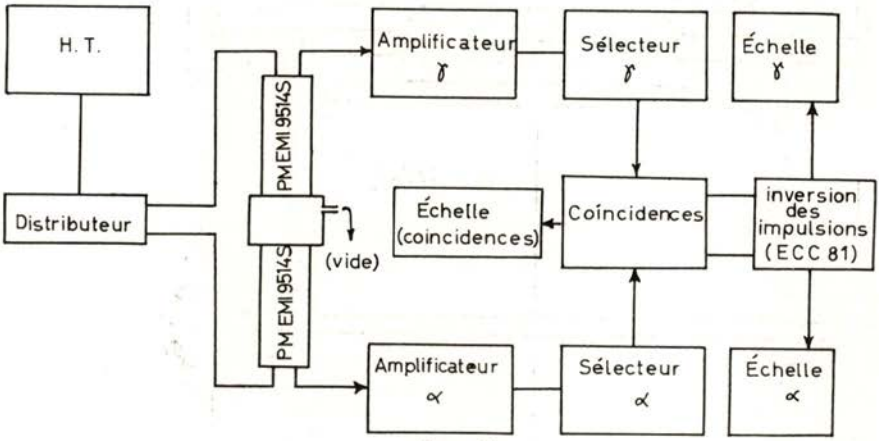


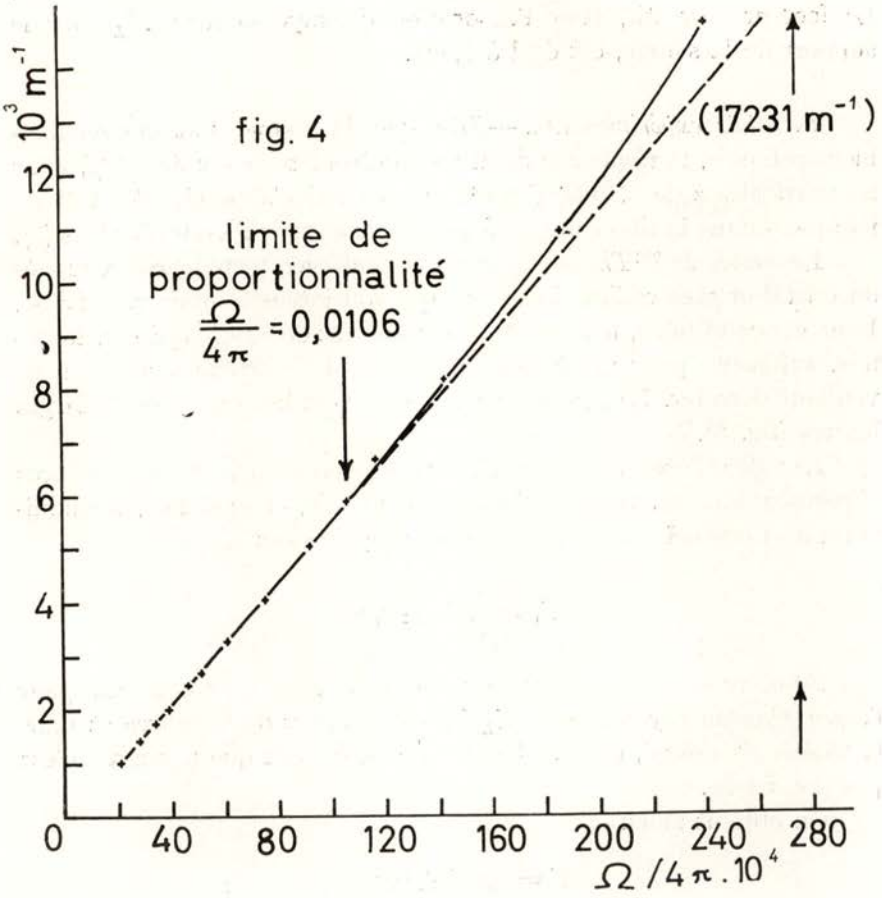
fig. 3

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 dépent 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 (*Ms 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 litérature 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 determinée 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 inclue 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.

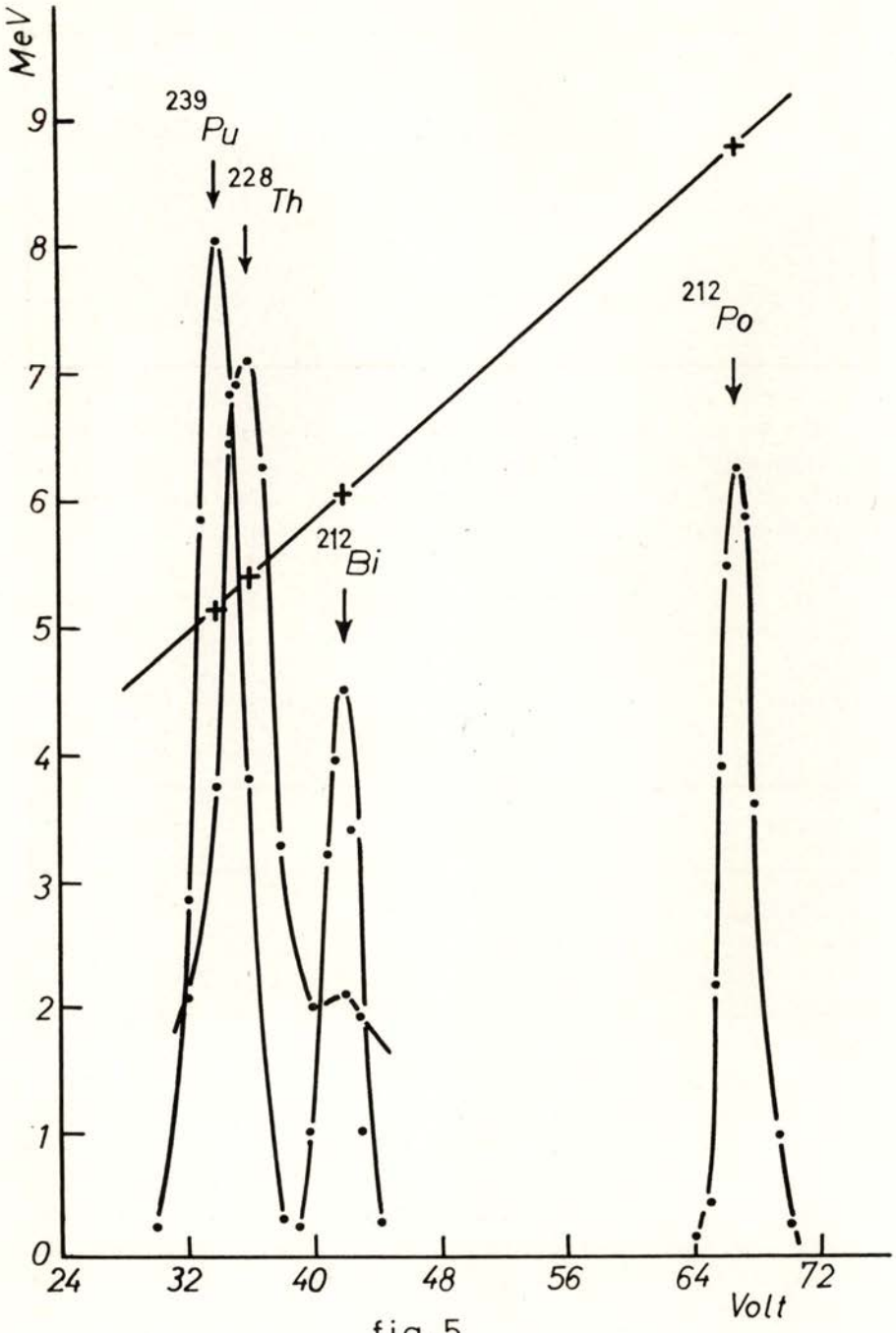

MeV
9
8
7
6
5
4
3
2
1
0
239 Pu
228 Th
212 Bi
212 Po
24
32
40
48
56
64
72
Volt

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—	132 214
253	0,2	4+	169
289	0,03	3—	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	L_I	L_{II}	L_{III}	Σ (M+N+ +O+ ...)	Rayonnement γ émis
ROSENBLUM *et al.*	—	1	0,83	—	
SLIV et BAND ...	0,040	1	0,78	—	0,12
Valeur adoptée....	0,040±0,002	1	0,80±0,04	0,58±0,03	0,12±0,01

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

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

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

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

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

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	$0{,}2850 \pm 0{,}0180$
132 keV	$0{,}0017 \pm 0{,}0002$
169 keV	$0{,}0020 \pm 0{,}0001$
205 keV	$0{,}0003 \pm 0{,}0000_2$
214 keV	$0{,}0023 \pm 0{,}0002$

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, ... n^v_1, n^v_2, n^v_3, 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}		
	L_I	L_{II}	L_{III}
I — 84,5 .	$0{,}0045 \pm 0{,}0004$	$0{,}1112 \pm 0{,}0075$	$0{,}0898 \pm 0{,}0076$
II — 132 ...	0,0000	$0{,}0001 \pm 0{,}0000_1$	$0{,}0001 \pm 0{,}0000_1$
III — 169 ...	0,0000	$0{,}0004 \pm 0{,}0000_3$	$0{,}0003 \pm 0{,}0000_2$
IV — 205 ...	0,0000	0,0000	0,0000
V — 214 ...	0,0000	0,0000	$0{,}0001 \pm 0{,}0000_1$
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 $^{230}_{90}Th \xrightarrow{\alpha} {}^{226}_{88}Ra$. 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.

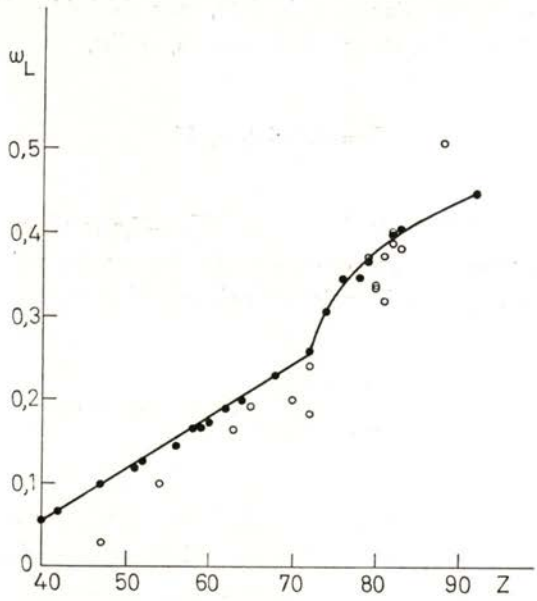


fig. 6

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 $ICCI_I$, 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.

RÉACTIONS (*p*, *xn*) ET ÉVAPORATION NUCLÉAIRE (1) (*)

RUI DA SILVEIRA

RÉSUMÉ — Le formalisme du modèle statistique est appliqué à l'étude de la désexcitation des noyaux issus du bombardement de *Bi*, *Au* et *Tb* par des protons d'énergies comprises entre 50 et 155 MeV.

En partant du modèle d'interaction de Serber, on calcule, d'une part, les rendements des isotopes formés par réactions (*p*, *xn*) — *Bi*, *Tb* — d'autre part, le spectre d'évaporation de particules alpha — *Bi*, *Au*. Outre l'approximation de Jackson, nous examinons d'une façon detaillée l'émission de particules chargées, en utilisant la méthode de Montecarlo.

Les valeurs calculées sont comparées aux données expérimentales et l'on propose quelques modifications dans le calcul de l'évaporation.

INTRODUCTION

L'objet du travail qui va être exposé est de comparer, d'une part, les résultats expérimentaux obtenus sur les réactions (*p*, *xn*) induites par des protons de 50 à 155 MeV sur des cibles de noyaux lourds ou moyens et, d'autre part, les essais de calculs qui peuvent être effectués en se basant sur le modèle de réaction en deux étapes (1): *interaction directe suivie de l'évaporation des noyaux excités*. On sait que ce modèle consiste à considérer d'abord les interactions *rapides* nucléon-nucléon, à déduire du libre parcours moyen des nucléons dans la matière nucléaire la distribution en énergie et en angle des nucléons projetés hors du noyau. Le départ de ces particules «immédiates» laisse le noyau dans un état excité et, à la distribution des énergies cinétiques des particules sortantes, correspond une distribution des énergies d'excitation des noyaux résiduels. A ce stade intervient un deuxième processus, *lent*, au cours duquel l'énergie répartie statistiquement

(1) Thèse présentée à la Faculté des Sciences de Paris (Orsay) pour obtenir le grade de Docteur ès Sciences Physiques.

(*) Reçu le 20 janvier 1965.

sur tous les nucléons peut se trouver concentrée sur un seul nucléon ou groupe de nucléons. Le noyau excité évapore une particule. En raison des énergies d'excitation élevées, le noyau restant est encore suffisamment excité pour émettre une deuxième, puis une $n^{ème}$ particule avant d'atteindre un niveau d'excitation pour lequel la désexcitation par émission gamma devient compétitive.

La première partie des interactions a été traitée par la méthode dite «de Montécarlo» par divers auteurs. Les calculs les plus élaborés, effectués pour trois dimensions, sont dus à METROPOLIS *et al* (2), puis, dans un travail plus récent, à CHEN *et al.* (3). Rappelons seulement ici que dans ces calculs, les chocs de la particule incidente avec les nucléons sont traités dans le cadre de «l'approximation de l'impulsion» selon une méthode initiée par GOLDBERGER (4). Cette méthode consiste à suivre étape par étape le développement des cascades intranucléaires en choisissant au hasard les conditions cinématiques des chocs et en répétant le calcul un grand nombre de fois pour lui donner une signification statistique. Les paramètres décisifs sont la profondeur du puits de potentiel, sa forme, le libre parcours moyen qui dépend des sections efficaces élémentaires de diffusion p-p , p-n et n-n , et la section efficace inélastique totale. Ces calculs nous fournissent la distribution des énergies d'excitation après chaque type d'interaction directe (P, N) $(P, 2N)$ (P, P) (P, PN), etc. ... et la proportion de noyau composé (P, γ) . Nous avons utilisé les résultats plus détaillés fournis par G. FRIEDLANDER à partir du programme METROPOLIS *et al.* Quelques données plus récentes nous ont été communiquées par FRAENKEL et MILLER pour le calcul selon le nouveau modèle (5) de puits de potentiel à bord diffus tenant compte de la réflexion et de la réfraction à l'entrée et à la sortie du noyau.

Le deuxième stade de la réaction nucléaire consiste en l'évaporation de ces noyaux excités. C'est sur ce point que porte une grande partie de ce mémoire car nous avons repris les diverses méthodes de calcul de chaîne d'évaporation effectuées jusqu'ici et nous avons proposé des modifications importantes dans le but de rendre compte des résultats expérimentaux. L'étude de la désexcitation d'un noyau très excité peut être menée par des méthodes statistiques, si nous supposons qu'un très grand nombre d'états peuvent être excités lors de sa formation, et que les transitions possibles peuvent elles aussi conduire à plusieurs niveaux du noyau résiduel.

WEISSKOPF (6) d'abord, et plusieurs auteurs ensuite, ont déduit l'expression qui gouverne l'émission de n'importe quel type de particule préexistant dans le noyau.

D'après lui, la probabilité par unité de temps pour qu'un noyau d'énergie d'excitation E émette une particule de spin s et de masse m avec une énergie comprise entre ε et $\varepsilon+d\varepsilon$ est:

$$P(\varepsilon)\, d\varepsilon = \frac{2s+1}{\pi^2 (h/2\pi)^3}\, m\, \sigma(\varepsilon)\, \varepsilon \frac{\omega(E-B-\varepsilon)}{\omega(E)}\, d\varepsilon \tag{1}$$

où

$\omega(E)$	est la densité de niveaux du noyau de départ.
$\omega(E-B-\varepsilon)$	est la densité de niveaux du noyau résiduel.
B	est l'énergie de liaison de la particule émise.
$\sigma(\varepsilon)$	est la section efficace d'absorption de la particule par le noyau résiduel, en vue de former le noyau de départ dans l'état initial d'énergie d'excitation.

Remarquons que l'établissement de cette équation n'implique que des considérations statistiques. Cependant, un modèle bien défini est nécessaire pour expliciter la densité de niveaux. Avec ce formalisme de base, on va pouvoir calculer la probabilité pour qu'un noyau issu de la phase d'interaction directe avec une certaine énergie d'excitation emette un nombre déterminé de neutrons. Le nombre de neutrons émis directement y, plus ceux évaporés j, détermine alors la masse du produit final. Ce schéma est le point de départ du calcul d'une section efficace particulière.

Considérons en effet dans la réaction $Bi^{209}(p, xn)\, Po^{202}$ un des termes contribuant à la section efficace totale de production de l'isotope 202 du polonium. Soit $P_1(E, N)\, dE$ la probabilité de formation par interaction directe d'un noyau de Po^{209} disposant d'une énergie d'excitation comprise entre E et $E+dE$, et soit $P_2(E, 7n)$ la probabilité d'évaporation à partir de ce noyau de sept neutrons.

Le terme recherché se calculera alors en écrivant:

$$\sigma[Bi^{209}(p, xn)\, Po^{202}] = \sigma_{in} \cdot \int_{E_1}^{E_2} d\sigma = \sigma_{in} \cdot \int_{E_1}^{E_2} P_1(E, N)\, .\, P_2(E, 7n)\, dE$$

Les limites d'intégration comprendront toute la région où P_1 et P_2 sont différents de zéro (fig. 2).

Les résultats expérimentaux comparables aux calculs portent sur deux types d'informations:

a) En premier lieu, nous avons mesuré les sections efficaces de formation d'isotopes de polonium issues des interactions de protons

de diverses énergies et de noyaux de bismuth. Des données obtenues par d'autres auteurs sur le terbium (7) seront également utilisées. Les sections efficaces des polonium peuvent être comparées par exemple au calcul de la somme de toutes les combinaisons possibles des réactions (P, yN, jn) pour lesquelles y neutrons sont projetés par interaction directe et j neutrons évaporés, avec la somme $(y+j)$ égale à la différence entre le nombre A de l'isotope mesuré et le nombre A du noyau composé $(Bi+p) = {}^{210}Po$.

b) Mais nous avons également utilisé pour la comparaison avec les calculs les spectres en énergie des particules α mesurés par MUTO *et al.* (8) et par DUBOST *et al.* (9). Le choix de valeurs correctes pour les paramètres intervenant dans le calcul des probabilités d'évaporation de neutrons et de particules chargées est ainsi contrôlé par la nécessité d'obtenir un accord entre les spectres expérimentaux et les spectres calculés.

CHAPITRE I

METHODES EXPERIMENTALES ET RESULTATS

A — *CONDITIONS D'IRRADIATION*

1 — PREPARATION DES CIBLES

Les lames utilisées comme cibles étaient laminées à partir de lingots de bismuth, spécialement préparé par fusion du bismuth sous un courant d'azote pour éviter l'oxydation, et en le refroidissant brutalement dans l'azote liquide. Le lingot ainsi obtenu est facilement laminable en feuilles. Chaque cible avait une surface de 15 mm × 10 mm et une épaisseur variant, suivant leur masse, entre 0,1 et 0,15 mm. La pureté du bismuth employé, préparé par la méthode de zone fondue, est de 99,99%.

2 — IRRADIATIONS

Toutes nos cibles ont été irradiées au synchrocyclotron à protons de la Faculté des Sciences à Orsay. L'intensité du faisceau, dont l'énergie maximale est 155 MeV, peut atteindre plusieurs micro-ampères.

2.1 — *Irradiation interne*

Le tracé des fonctions d'excitation dans toute la région d'energie en dessous de 155 MeV, a été possible grâce à l'utilisation du faisceau interne. Le point de fusion du bismuth étant relativement bas, nous avons dû prendre des précautions particulières pour éviter la déformation des cibles par la chaleur dégagée. Pour diminuer l'intensité du flux de protons reçu par la cible, nous avons utilisé un écran

d'aluminium de 0,5 mm d'épaisseur et débordant la cible de bismuth de 3 mm. Le bord de l'écran est placé à une distance r du centre de la chambre d'accélération, qui définit, avec l'induction magnétique B, l'énergie des protons. Il faut toutefois remarquer que l'énergie nominale ainsi définie n'est pas exactement celle des protons qui frappent la cible. En raison des oscillations de phase et oscillations bétatroniques, la plage irradiée reçoit des protons qui, provenant d'orbites différentes, présentent une certaine dispersion en énergie. Ce phénomène a fait l'objet au laboratoire d'une étude expérimentale détaillée sur le faisceau du synchrocyclotron (10, 11). Nous retiendrons les conclusions suivantes:

1) Si l'on irradie sans écran, entre 60 et 120 MeV, l'énergie reçue par la cible est en moyenne 8% inférieure à la valeur définie par la distance du bord au centre de la chambre.

2) Lorsqu'on utilise un écran, la cible, qui se trouve en retrait, reçoit un flux beaucoup plus faible de protons, mais leur énergie est mieux définie que précédemment, et décalée d'environ 10% par rapport à l'énergie nominale qui correspondrait au produit Br.

2.2 — *Irradiation externe*

L'irradiation à l'extérieur de la machine permet l'utilisation d'un faisceau extrait bien défini en énergie, mais moins intense. La cible est placée sur la section droite du faisceau dans la zone du flux principal de protons. Cette région est repérée par autoradiographie d'une plaque d'aluminium irradiée.

3 — MONITORAGE

La détermination absolue des sections efficaces a été effectuée en plaçant contre la cible une deuxième cible de graphite on d'aluminium. Nous avons utilisé deux réactions, dont les sections efficaces ont été récemment l'objet d'une redétermination précise (12). La première, C^{12} $(p,3p3n)$ Be^{7}, induite dans le graphite, a été choisie pour la zone d'énergie de 50 à 80 MeV. Au delá de 80 MeV, nous nous sommes servis de la réaction Al^{27} $(p, 3pn)$ Na^{24}.

4 — PREPARATION DES SOURCES

Après irradiation, le bismuth était dissous dans 0,3 cm³ d'acide nitrique concentré et la solution étendue à 30 cm³ environ, par adjonction d'acide chlorydrique 0,5 N saturé en hydrazine. Le dépôt spon-

tané de polonium sur lame d'argent peut être fortement accéléré en portant la température au delà de 50° C, ce qui est souvent nécessaire pour la mesure des isotopes à période courte. Le milieu réducteur de la solution, en empêchant l'oxydation des lames, améliore le rendement et permet l'obtention de sources bien adaptées à la mesure des émetteurs alpha. Suivant les besoins de chaque irradiation, nous obtenions par cette méthode plusieurs sources. Le rendement d'extraction était mesuré à l'aide de l'isotope 206 de période assez longue pour procéder à plusieurs dépôts successifs.

B — *APPAREILLAGES DE MESURE*

Les divers nucléides formés furent mesurés par leur activité α ou γ, à l'aide de dispositifs classiques.

Mesures α — L'activité α a été mesurée à l'aide d'une chambre d'ionisation à collection électronique de géométrie 2π. Le gaz de remplissage était un mélange d'argon et de 3% de gaz carbonique, à une pression de 4 atmosphères.

Mesures γ — Pour les mesures de spectrométrie gamma, nous avons utilisé un cristal de *INa* activé au thalium monté sur photomultiplicateur. L'étalonnage de l'efficacité avait été fait (12) pour différentes positions géométriques des sources par rapport au cristal, à l'aide de divers rayonnements γ (^{203}Hg , ^{198}Au , ^{22}Na , ^{137}Cs, ^{144}Pr , ^{209}At). Les impulsions, provenant soit du photomultiplicateur soit de la chambre, étaient analysées après amplification par un sélecteur d'amplitudes multicanaux.

C — *RESULTATS*

Si nous supposons que les cibles (Bi+moniteur) sont suffisamment minces pour qu'on puisse négliger la diminution du flux de protons incidents par les réactions nucléaires, la section efficace d'un isotope donné s'écrit:

$$\sigma_{Po} = \sigma_M \frac{N_{Po}}{N_M} \frac{A_{Bi}}{A_M} \frac{P_M}{P_{Bi}}$$

σ_M est la section efficace du moniteur et N_M et N_{Po} , respectivement, le nombre d'atomes de ce dernier et de l'isotope en question. P_{Bi} , A_{Bi} et P_M , A_M désignent, pour les deux cibles, leurs poids et nombre atomique.

MESURE DES DIFFERENTS ISOTOPES

1 — MESURES α

Les différents isotopes du polonium se désintègrent par émission alpha, ou par capture électronique, ou par les deux processus. Les mesures d'intensité du rayonnement X_K au moyen d'un scintillateur *INa* effectuées par BELL et SKARSGARD (13) ont pu conduire à d'importantes erreurs sur le nombre de désintégrations dans la mesure où leur détecteur ne fonctionnait pas dans 4π et la proportion d'électrons de conversion des désexcitations gamma n'est pas connue avec précision. Aussi, lorsque la mesure d'après l'embranchement α était impossible, nous avons recherché les rayonnements gamma soit du polonium soit des produits de filiation, pour lesquels la proportion est connue. La plupart des isotopes ont été mesurés par leur embranchement alpha. Les énergies des particules alpha étaient trop voisines, et nous avons donc construit des courbes de décroissances en comptant à chaque mesure le nombre total de désintégrations. L'identification de chaque isotope par sa période est alors obtenue par décomposition graphique de cette courbe. Etant donné les écarts importants entre les diverses périodes en présence, cette décomposition n'a pas posé de problème particulier.

$$Bi^{209}\,(p,\,2n)\,Po^{208}$$

Le Po^{208} est un émetteur α 100% ($E = 5{,}21\ MeV$) qui décroît avec une période du 2,93 ans. Dans ce cas, nous avons attendu plusieurs mois pour faire nos mesures, ce qui permettait de négliger l'apport du rayonnement α dû au Po^{208} dont la période est de 9 jours.

$$Bi^{209}\,(p,\,4n)\,Po^{206}$$

Plusieurs valeurs sont indiquées dans la littérature pour l'embranchement α de 5,2 MeV du Po^{206}. Les mesures effectuées au laboratoire par LE BEYEC (14) sur la proportion de particules α émises par rapport aux captures électroniques détectées à 90% à l'aide d'un cristal puits 4π ont conduit à une valeur d'embranchement de 5,5% que nous avons adoptées. La période est de 9 jours.

$$Bi^{209}\,(p,\,6n)\,Po^{204}$$

Le Po^{204} a une période de 3,8 heures. La seule indication dans la littérature sur l'embranchement α de cet isotope est assez grossière, ~ 1%. LE BEYEC (14) a comparé la section efficace calculée avec cette valeur, avec celle qu'il obtient par la mesure du Bi^{204} issu de la capture électronique. Cette comparaison conduirait à un embranchement de 0,7%.

$$Bi^{209}\,(p,\,8n)\,Po^{202}$$

Le Po^{202}, dont la période est de 47 minutes, émet un rayonnement α de 5,61 MeV, qui correspond à 2% du nombre total de désintégrations.

$$Bi^{209}\,(p,\,9n)\,Po^{201}$$

La période de cet isotope est de 17 minutes et l'embranchement α de 0,8% (15). Etant donné la période très voisine des isotopes de masse 200 (9 mn) et 199 (11 mn), nous n'avons pu mesurer le Po^{201} que dans la régions où l'apport de ces deux derniers était peu important. Postérieurement, la mesure des isotopes du polonium à période courte, depuis la masse 202 jusqu'à 196 a fait l'objet d'un travail de Mme BRUN et M. LEFORT (16). Les rendements de ces nucléides ont pu être mesurés à l'aide d'une chambre à détecteur solide, de meilleur pouvoir de résolution que la chambre d'ionisation.

2 — MESURES γ

$$Bi^{209}\,(p,\,3n)\,Po^{207}$$

Le Po^{207} a une période de 5,6 heures et décroît par capture électronique (99%). Pour suivre la décroissance de cet isotope, nous avons dû éliminer les divers produits de filiation dont la richesse en rayonnement gamma rendait difficile la décomposition des spectres. Avant chaque mesure, nous faisions tourner la lame d'argent qui nous servait de source, dans une solution de NO_3H 0,5 N, pendant une minute environ. Le bismuth et le plomb passent rapidement et complètement en solution. L'intensité absolue des divers rayons γ qui composent le schéma de désintégration de cet isotope n'est pas connue. Nous avons fait nos mesures en utilisant le pic photoélectrique de 990 keV, qui est le plus intense de son spectre (17). La section

efficace obtenue semble indiquer que cette raie doit correspondre à peu près au nombre total de désintégrations.

$$Bi^{209}\,(p,\,5n)\,Po^{205}$$

Le Po^{205}, dont la période est de 1,8 heure, a été mesuré par son descendant, le Bi^{205}, obtenu par capture électronique 99,93%. Le Bi^{205}, dont la période est de 15 jours, a été mesuré en comptant l'ensemble des raies γ d'énergie 1,863 MeV, 1,777 MeV et 1,766 MeV, qui correspondent à 35,4% (18) du nombre total de désintégrations.

$$Bi^{209}\,(p,\,7n)\,Po^{203}$$

Le Po^{203}, dont la période est de 47 minutes, fut mesuré par son descendant, le Pb^{203}, issu de la filiation suivante:

$$Po^{203}\,(47\text{ mn}) \rightarrow Bi^{203}\,(12\text{ h}) \rightarrow Pb^{203\,m}\,(61\text{ s}) \rightarrow Pb^{203}\,(53\text{ h})$$

Le Pb^{203} émet un rayonnement γ de 375 keV, qui correspond à 98% du nombre total de désintégrations. La correction due à la conversion interne est importante dans ce cas. Le coefficient de conversion total de ce γ en électrons K, L, etc., est 0,21 (19).

Dans le cas des mesures faites sur les descendants Bi^{205} et Pb^{203}, le calcul du nombre d'atomes de polonium, dont ces isotopes étaient issus, se rapportait non à l'heure où l'irradiation avait pris fin, mais au moment où la lame d'argent sur laquelle ce polonium s'était déposée quittait la solution. Le Bi^{205} et Pb^{203} provenaient de la décroissance des atomes de Po^{205} et Po^{203} existants sur la lame à ce moment-là. Le temps écoulé entre la fin de l'irradiation et la fin de la séparation n'était pas négligeable devant la période de ces deux isotopes.

3 — VALEURS DES SECTIONS EFFICACES ET PRECISION DES RESULTATS

Parmi les erreurs faites, nous distinguons celles qui sont particulières à chaque mesure et celles qui, étant systématiques, affectent l'ensemble des résultats. Nous énumérerons les plus importantes, mais nous ne tiendrons compte, dans une comparaison des résultats entre eux, que des erreurs accidentelles. Parmi ces dermières, celle portant sur la pesée des cibles est négligeable, le comptage du nombre de désintégrations conduit à une incertitude de 1 à 3%, de même que

$(p, 6n)\ Po^{204}$

Ep ± 1 MeV	σ mb
57	590±75
62	560±70
67	382±50
72	250±32
77	195±25
82	137±18
87	110±14
102	81±10
117	68±8,8
155	56±7,3

$Bi^{209}\ (p, 7n)\ Po^{203}$

Ep ± 1 MeV	σ mb
57	25± 3,8
72	340±51
77	230±35
87	138±21
102	70±10,5
155	50± 7,5

$Bi^{209}\ (p, 8n)\ Po^{202}$

Ep ± 1 MeV	σ mb
67	15± 1,4
72	75± 9
77	120±14
82	160±19
87	190±23
97	120±14
102	91±11
117	53± 6,3
155	52± 6,2

$Bi^{209}\ (p, 9n)\ Po^{201}$

Ep ± 1 MeV	σ mb
77	10± 2
82	50±10
87	85±17
97	180±35
102	150±30

A	155 MeV	77 MeV
208	45± 5	18±2
207	54± 8	25±4
206	91± 8	36±3
205	110±12	47±6
204	195±25	56±7
203	230±34	50±7,5
202	120±14	52±6
201	10± 2	

la mesure du rendement de séparation du polonium. Par contre, la décomposition des pics photoélectriques γ et des courbes de décroissance α peuvent conduire, dans certains cas, à des erreurs pouvant atteindre 13%. Enfin, pour l'alignement des cibles et moniteurs, nous pouvons estimer l'erreur à 5%.

Les erreurs non systématiques peuvent donc varier de 8 à 20% environ.

Parmi les sources d'erreurs systématiques, nous retiendrons en particulier les schémas de désintégrations et l'étalonnage en valeur absolue des ensembles de comptage, qui affectent différemment la détermination des diverses sections efficaces. La première de ces deux causes peut conduire à des erreurs importantes, mais souvent difficiles à estimer (Po^{207}). Quant à la deuxième, l'erreur qu'elle introduit peut être évaluée à 5%. On tiendra compte finalement de l'incertitude sur la section efficace du moniteur déterminée à 5% près. La marge d'erreur totale peut donc varier, suivant les cas, de 12 à 30% environ.

COMPARAISON DES RESULTATS AVEC LES VALEURS CALCULEES

CHAPITRE II

CALCULS D'EVAPORATION PAR L'APPROXIMATION DE JACKSON

Les premiers travaux systématiques sur les réactions (p, xn) dans les noyaux lourds, pour des valeurs de x relativement élevées, furent l'object des travaux de BELL et SKARSGARD (13) sur le bismuth et le plomb. Avec l'énergie maximale de protons de 83 MeV, ces auteurs ont pu étudier les réactions (p, xn) jusqu'au niveau de $x = 7$, conduisant à Po^{203} à partir de cibles de bismuth, et à Bi^{201} à partir de cibles de plomb. Mais l'hypothèse émise, selon laquelle la réaction $(p, p\,(x - 1)\,n)$ est négligeable devant la réaction (p, xn), a conduit ces auteurs à n'effectuer aucune séparation chimique et à compter souvent la somme des isobares de bismuth et de polonium. Or l'expérience nous a montré que les sections efficaces des réactions (p, pxn) atteignent, même à 60 ou 80 MeV, des valeurs de plus de 100 mb.

Faisant suite à ces expériences, JACKSON (20) propose un schéma de calcul très simplifié qui permet d'obtenir les probabilités d'émission d'un nombre quelconque de neutrons.

Nous exposerons brièvement la méthode, à laquelle nous n'avons apporté que des modifications de détail.

Plusieurs simplifications sont proposées, dont la première consiste à supposer que, du moins pour les noyaux lourds, l'émission de particules chargées peut être négligée.

Nous verrons plus tard que cette hypothèse n'est justifiée que si nous nous bornons à l'étude de la désexcitation de noyaux n'ayant que très peu d'énergie d'excitation.

L'expression (1) reste le point de départ, et, pour l'expliciter, nous supposerons d'abord que la section efficace de capture de neutrons est constante, ce qui dans les noyaux lourds est une bonne approxition pour des énergies cinétiques supérieures à 1 MeV environ.

L'application au noyau du formalisme de la thermodynamique statistique permet d'expliciter la densité de niveaux sous la forme:

$$\rho \sim e^{\frac{E}{T(E)}}$$

La température nucléaire T et l'énergie d'excitation se trouvent liées par l'équation d'état:

$$E = aT^2$$

où a est le paramètre de densité de niveaux.

Le spectre de neutrons peut alors s'écrire

$$P(\varepsilon)\, d\varepsilon = Cte \,.\, \varepsilon\, e^{-\frac{\varepsilon}{T(E-B-\varepsilon)}}\, d\varepsilon \tag{2}$$

Cette expression établie, on va s'attacher à calculer la probabilité pour qu'un noyau disposant d'une énergie d'excitation E évapore un nombre j de neutrons.

La solution analytique proposée par JACKSON (20) comporte en plus l'hypothèse de la constance de la température nucléaire. De ce fait, le choix de cette température devient l'objet d'une attention particulière.

Nous allons maintenant évaluer la probabilité recherchée en écrivant que la probabilité d'évaporer exactement j neutrons est la différence entre les probabilités d'émission d'au moins j neutrons, et celle d'en émettre au moins $j+1$. Avec le spectre (2) normalisé, la probabilité d'émission d'au moins j neutrons s'écrit:

$$p(E, j) = \int_0^{E-\sum Bj} \int_0^{E-\sum Bj-\varepsilon_1} \cdots \int_0^{E-\sum Bj-\sum \varepsilon_{j-1}} \frac{\varepsilon_1}{T_1^2}\, exp\,(-\frac{\varepsilon_1}{T_1}) \ldots (d\varepsilon_1 \ldots d\varepsilon_{j-1}) \tag{3}$$

Les bornes supérieures représentent les énergies cinétiques disponibles pour les j premiers neutrons. La probabilité d'émettre exactement j neutrons est alors

$$P(E, j) = p(E, j) - p(E, j+1) \tag{4}$$

un calcul élémentaire conduit finalement à

$$(5) \qquad P(E, j) = e^{-\Delta_j} \sum_{o}^{2j-3} \frac{\Delta_j^n}{n!} - e^{-\Delta_j+1} \sum_{o}^{2j-1} \frac{(\Delta j+1)^n}{n!}$$

$$\text{avec} \qquad \Delta_j = \frac{E - \Sigma B_j}{T}$$

Si, comme l'a fait JACKSON, nous négligeons des termes d'ordre supérieur à $\bar{e}^{B/T}$, ce qui suppose la température nucléaire petite devant l'énergie de liaison des neutrons, l'expression (5) peut s'écrire:

$$P(E, j) = I(\Delta j, 2j - 3) - I(\Delta j+1, 2j - 1)$$

$$\text{où} \qquad I(Z, n) = \frac{1}{n!} \int_{o}^{Z} Y^n \, e^{-Y} \, dY,$$

est une fonction gamma incomplète.

On peut cependant faire le calcul exact à partir de l'équation (5). C'est ce que Mr. LEFORT et collaborateurs ont fait à l'aide d'une calculatrice *IBM* 650. Les $p(E, j)$ furent ainsi calculées pour toutes les valeurs utiles de Δj, de MeV en MeV (fig. 1).

L'application à chaque cas particulier du formalisme exposé implique maintenant le choix de plusieurs paramètres, dont la température nucléaire et la constante de densité de niveaux retiendront plus particulièrement notre attention.

A — *CHOIX DES PARAMETRES*

Les calculs que nous venons d'exposer, tels qu'ils furent présentés par JACKSON (20), avaient pour but l'interprétation des réactions nucléaires induites dans le *Bi* et le *Pb* par des protons dont l'énergie maximale ne dépassait pas 83 MeV.

La comparaison théorie-expérience s'arrêtait donc aux réactions ne conduisant qu'à l'émission de 7 neutrons au maximum. Dans ces conditions, le fait de prendre une énergie de liaison moyenne, ainsi qu'une température nucléaire indépendante de l'énergie d'excitation, s'avérait une approximation raisonnablement justifiée.

Il en est cependant tout autrement si les énergies d'excitation en jeu sont telles que le nombre de neutrons pouvant être émis est de 14 ou 15. On a donc tenu compte de l'énergie de liaison du dernier neutron pour chaque noyau au cours de l'évaporation, et les valeurs utilisées sont celles tabulées par SEEGER (21). Quant à la température nucléaire, on a raisonné de la façon suivante:

Au cours de l'émission de j neutrons, le noyau voit son énergie d'excitation décroître dès sa valeur initiale, jusqu'à une valeur inférieure au seuil d'émission du $(j+1)$ ième neutron et, par conséquent, la température nucléaire des j noyaux résiduels se trouve elle aussi diminuée.

Tout en gardant un modèle à température constante, il est alors plus réaliste de prendre, comme l'a proposé TARRAGO (22), une température correspondant à la moitié de l'énergie d'excitation initiale. On pourrait rechercher une température moyenne par des aproximations plus poussées, mais la différence dans le résultat est si faible que cela ne justifie pas la complication du calcul.

Il reste maintenant à fixer chaque valeur particulière de T, à travers le choix de la constante de densité de niveaux a. Nous nous sommes bornés tout d'abord à prendre la valeur indiquée par BLATT et WEISSKOPF (23), c'es-tà-dire $a = A/19$. Cette valeur avait en effet donné des résultats jugés satisfaisants dans l'étude menée par SIMONOFF (24) sur la spallation par protons du thorium à 155 MeV.

Enfin, divers essais menés dans ces conditions suggèrent encore l'adjonction d'un terme d'ordre supérieur dans la relation liant l'énergie d'excitation et la température nucléaire (52). On peut en effet l'écrire avec ce deuxième terme sous la forme:

$$E = aT^2 + bT^4$$

la valeur $A/19$ étant retenue pour le premier paramètre, a, nous avons adopté pour b la valeur $A/100$, dont le choix, tout en étant empirique, était suggéré par le résultat obtenu en utilisant le modèle de gaz de Fermi avec un bord diffus, BEARD (25).

Dans tout ce que nous venons d'exposer, il n'a pas été fait mention du rôle de la parité du nombre des nucléons, dont on connaît pourtant l'influence sur les énergies de liaison et les densités de niveaux.

Pour traduire cet effet, HURWITZ et BETHE (26) proposent de déplacer l'énergie du niveau fondamental de chaque noyau excité, en fonction de la parité du nombre de neutrons et de protons. La densité de niveau se rapportera alors, non au niveau d'énergie d'exci-

tation E, mais à un niveau décalé de δ par rapport au premier. Ce terme δ est appelé énergie de «pairing». La densité de niveau s'écrit alors:

$$\omega = e^{\frac{E-\delta}{T}} \quad \text{avec}$$

$\delta = 0$ pour les noyaux impair-impair,
$\delta < 0$ dans tous les autres cas.

Nous avons tenu compte de cet effet dans nos calculs, et utilisé les valeurs de δ tabulées par CAMERON (27).

B — *CALCUL DES SECTIONS EFFICACES*

Avec l'ensemble des paramètres dont nous venons d'indiquer le choix, nous avons calculé les probabilités $P(E, j)$ pour tous les noyaux issus de la phase d'interaction directe, conduisant aux isotopes du polonium. Il reste à considérer la répartition des énergies d'excitation de ces mêmes noyaux.

Nous avons utilisé les résultats détaillés des calculs de METROPOLIS *et al.* suivant la méthode de Montécarlo, communiqués par G. FRIEDLANDER.

On dispose, d'une part, des données sur l'uranium pour des énergies de proton incident de 82 et 155 MeV et, d'autre part, de celles concernant le bismuth, mais pour la seule valeur de 82 MeV. On peut cependant avancer que l'allure relative des résultats uranium-bismuth se maintient à 155 MeV et reproduire alors à cette énergie les différences trouvées à 82 MeV.

Pour ce qui est maintenant des énergies comprises entre ces deux valeurs, on peut, à l'aide d'autres résultats et moyennant certaines approximations, essayer de reproduire la façon dont les divers types de cascades varient en fonction de l'énergie du proton incident. JACKSON (20) a rapporté dans un article certains résultats d'interaction directe dus à MAC MANUS *et al.* (28), effectués cependant sur des bases moins élaborées que ceux de METROPOLIS *et al.*. On y constate une variation assez lente de l'importance de chaque type de cascade, à partir de 70 MeV environ. Suivant alors l'allure de ces courbes on a pu obtenir quelques points entre 60 et 110 MeV par extrapolation des données à 82 MeV.

On peut très difficilement poursuivre ces approximations au delà d'une centaine de MeV, car le nombre de phénomènes en compétition devient alors très important.

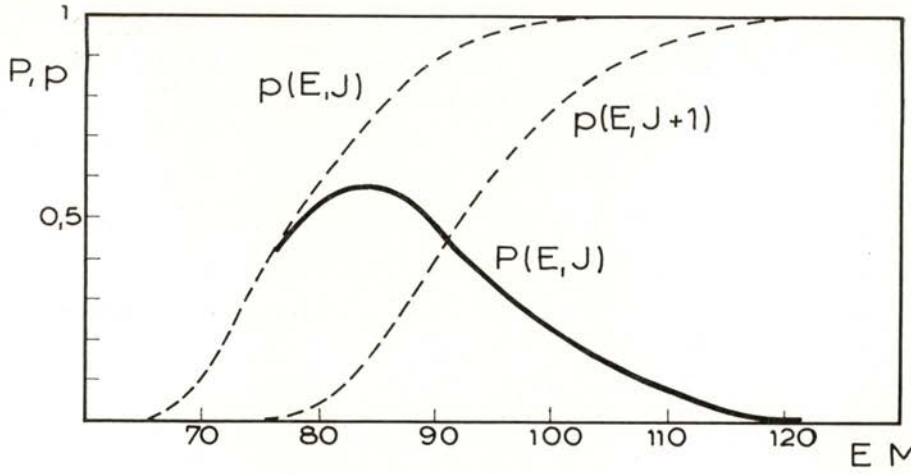


fig.1.

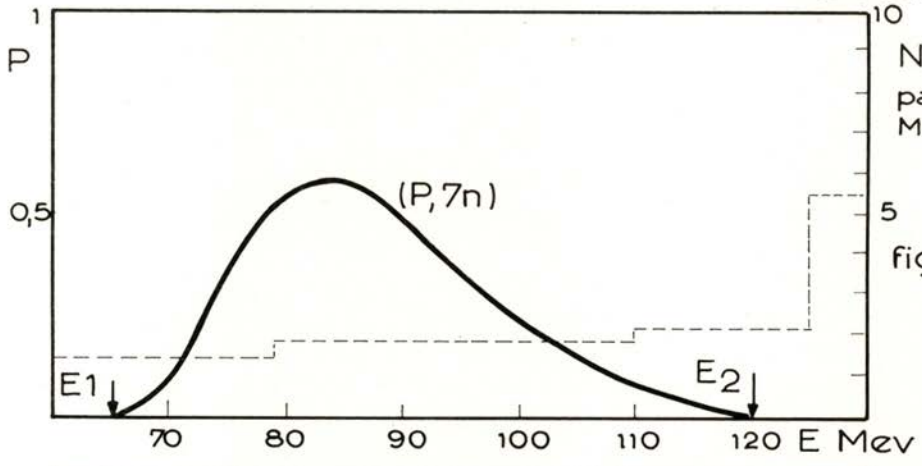


fig.2.

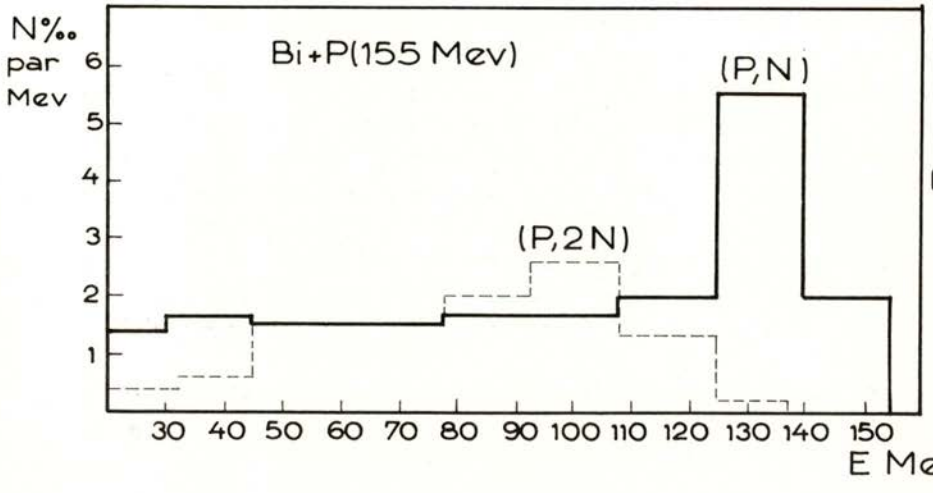


fig.3.

A partir de ces éléments, on peut maintenant calculer les divers termes qui contribuent à la section efficace totale d'un isotope donné.

Chacune des sections efficaces partielles furent, en pratique, calculées en remplaçant l'intégrale par une somme de termes correspondant à des intervalles d'énergie de 1 MeV. A chacun de ces intervalles on fait alors correspondre une valeur moyenne de la probabilité d'évaporation $P(E, j)$. Quant aux résultats de cascades, ils se présentent sous forme de pourcentage de nombre d'événements d'un type donné, conduisant à un isotope dont l'énergie d'excitation se trouve répartir à l'intérieur d'un intervalle large, suivant les cas, de 9 ou 15 MeV environ (fig. 3).

On les traduit alors aisément sous forme de probabilité par unité d'énergie, que l'on multiplie par la valeur de $P(E, j)$ correspondant à la même énergie d'excitation.

C — *COMPARAISON AVEC L'EXPERIENCE*

Sur les figures (4) et (5) on a rassemblé, sous deux aspects différents, les résultats théoriques et expérimentaux. On voit d'abord sur la première la variation des sections efficaces à 155 MeV, en fonction du nombre de masse des divers isotopes, et sur la deuxième les fonctions d'excitation des réactions $(p, 6n)$, $(p, 7n)$, $(p, 8n)$ et $(p, 9n)$.

Nous constatons immédiatement, en examinant ces figures, que malgré l'incertitude sur les valeurs calculées[1], ces dernières se trouvent systématiquement en-dessus des points expérimentaux correspondants. Une différence analogue, mais moins prononcée, était déjà constatée par SIMONOFF (24) au cours de l'étude des réactions du même type, induites dans le thorium à 155 MeV.

Il faut toutefois remarquer que, dans ce cas, l'importance de la fission pouvait contribuer, compte tenu de l'imprécision sur les rapports Γ_n/Γ_f, à masquer l'interprétation de ce désaccord.

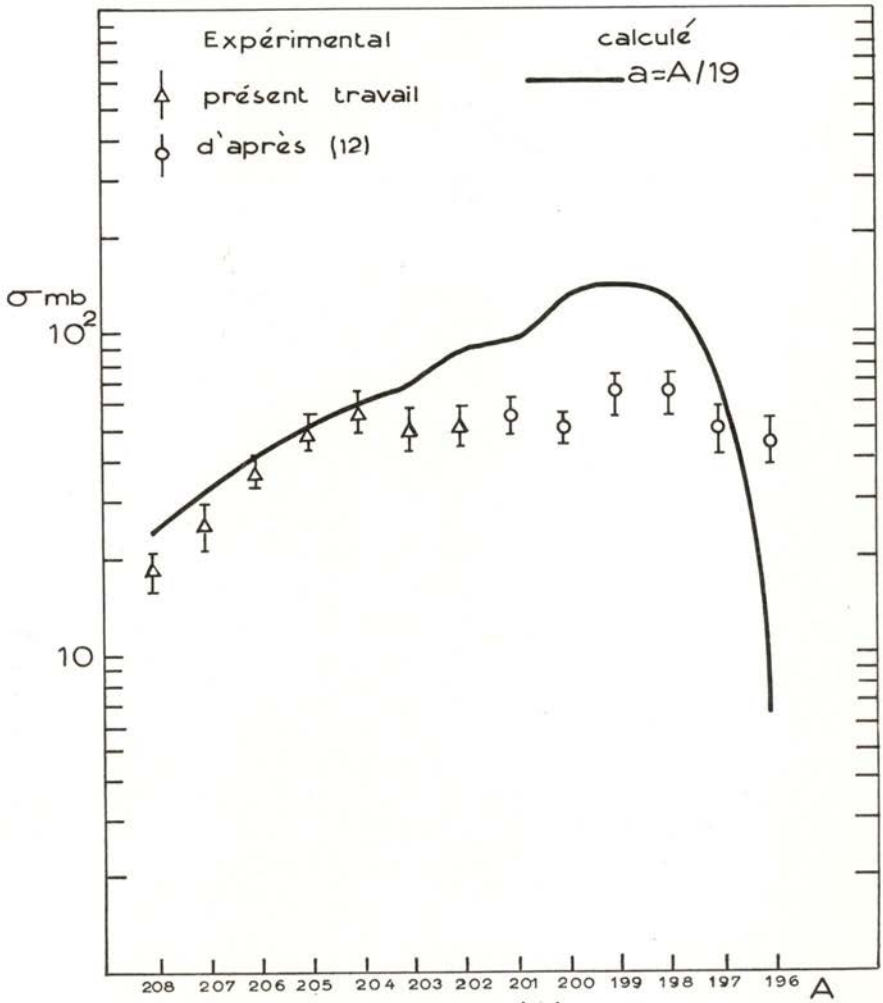
Nous avons essayé d'évaluer l'importance de ce phénomène dans le cas du bismuth. Les rapports Γ_n/Γ_f pour les différents noyaux ont été calculés selon l'expression déduite par FUJIMOTO et YAMAGUCHI (29).

$$\frac{\Gamma_n}{\Gamma_f} = \frac{TA^{2/3}}{10} \exp\left[(B_f - B_n)/T\right]$$

[1] Compte tenu du nombre d'événements de chaque type de cascade, l'imprécision sur les valeurs calculées est de l'ordre de 20% en moyenne.

avec les seuils de fission B_f évalués selon l'expression proposée par SWIATECKI (30) à partir du modèle de la goutte liquide.

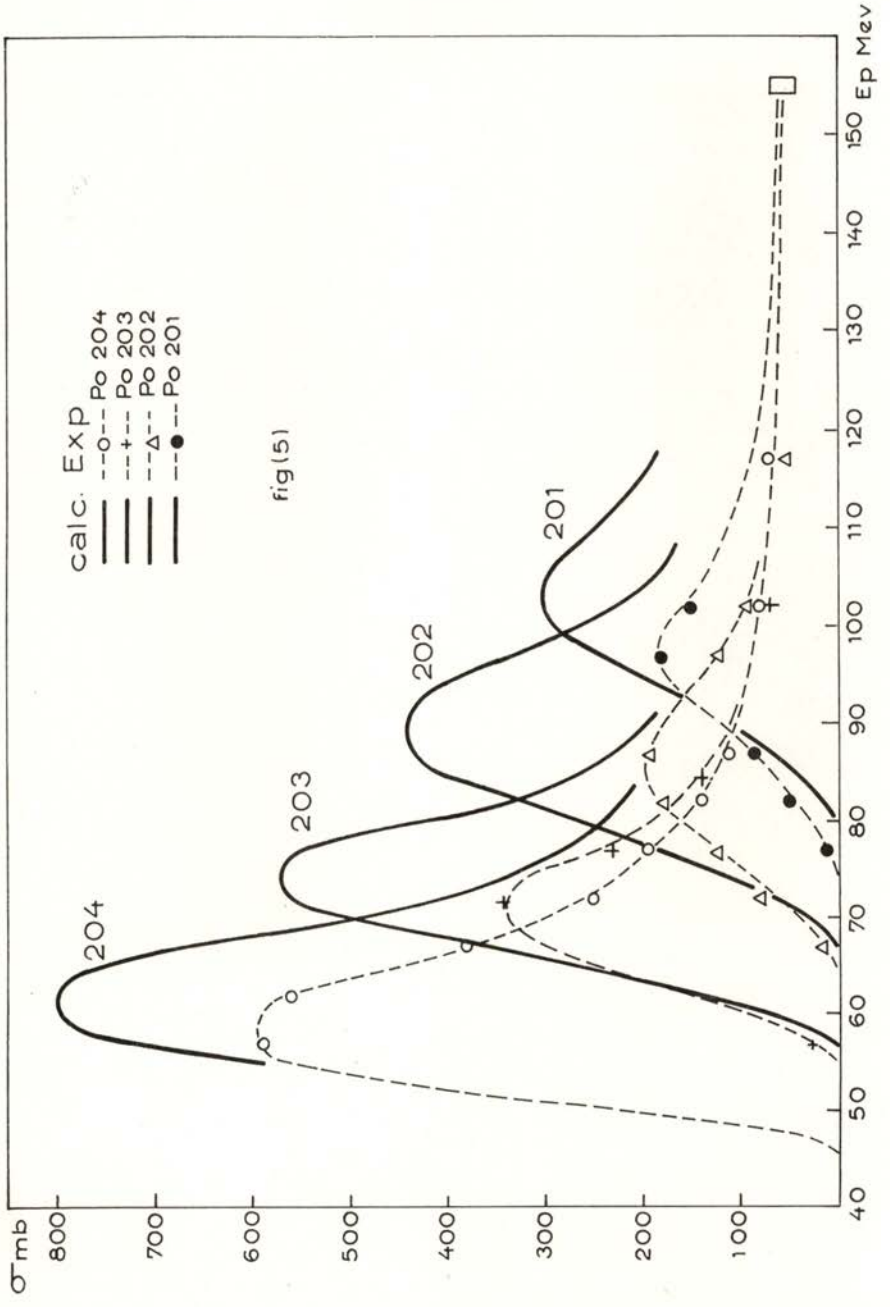
Les rapports $\Gamma_n/(\Gamma_n+\Gamma_f)$ ainsi calculés sont alors incorporés, selon l'idée de VANDENBOSCH et SEABORG (31), à chaque étape de l'évaporation. Cependant, les seuils de fission ne deviennent compara-



fig(4)

bles aux énergies de liaison des neutrons que pour les noyaux qui en sont très déficients. La fission va donc intervenir de préférence dans les noyaux issus de l'évaporation d'un grand nombre de neutrons, et c'est ainsi que l'on trouve des corrections de l'ordre de 10% seule-

ment, à partir de $(p, 12n)$. Si l'effet n'est pas négligeable à 155 MeV, où la section efficace expérimentale de fission est 126 mb (32), il ne



permet pas pour autant d'expliquer ou de réduire le désaccord constaté aux énergies plus basses.

Reste à examiner le rôle de l'évaporation de particules chargées que nous avons négligé dans nos calculs. Malgré les hypothèses de départ, il est cependant possible d'en tenir compte suivant un schéma analogue à celui utilisé pour la fission, en incluant la compétition Γ_n/Γ_p, par exemple, à chaque stade de l'évaporation. Cependant, si l'émission de particules chargées devait expliquer le désaccord expérience-théorie, elle serait alors beaucoup trop importante pour qu'on se limite à l'évaluer d'une façon approximative. Pour tenir compte de ce dernier aspect, il faut alors réexaminer les hypothèses de départ, ainsi que tout le formalisme qui en découle.

C'est ce dont nous allons nous occuper dans le chapitre suivant.

CHAPITRE III

CALCULS D'EVAPORATION PAR LA METHODE DE «MONTECARLO»

Il ressort des nombreuses expériences de détection de particules émises, lors du bombardement de divers noyaux lourds, que le spectre «arrière» des particules chargées conduit à une valeur globale de l'évaporation qui est loin d'être négligeable. Avec des protons comme projectiles, nous disposons pour le bismuth, entre autres, des résultats concernant les spectres de particules alpha.

Ces travaux, de MUTO *et al.* (8) par la technique des émulsions avec des protons de 56 MeV, et ceux de DUBOST *et al.* (9) à 155 MeV utilisant les détecteurs solides, donnent, pour la part atribuée à l'évaporation des particules alpha, les valeurs de 8 ± 1 et 45 ± 7 mb, respectivement. Ces résultats incitent à penser que d'autres particules chargées, telles que les protons, doivent être émises au cours du processus d'évaporation. En effet, si l'énergie de liaison d'une particule alpha dans le polonium est inférieure à celle d'un proton d'environ 8 MeV, la barrière de potentiel plus basse de 10 MeV va favoriser l'émission des protons.

L'importance de l'évaporation de protons est aussi suggérée, bien qu'indirectement, par les résultats de mesure des sections efficaces (p, pxn) induites dans certains noyaux lourds proches du bismuth, tels que l'or [BELL *et al.* (33)], le tanthale [RAO *et al.* (34)] ainsi que dans le bismuth même [LE BEYEC (14)]. Dans ce dernier élément, des valeurs de plus de 100 mb sont obtenues déjà pour une énergie de 55 MeV, pour la réaction (p, $p4n$). On peut tenter d'expliquer les sections efficaces élevées des réactions (p, pn) ou, à l'extrême rigueur, (p, $p2n$), par l'intervention du processus de pick-up, mais les noyaux de bismuth formés par des réactions de type (p, p4n) doivent être attribués soit à des cascades (P, P) ou (P, PN) suivies de l'évaporation de quelques

neutrons, soit au noyau composé et aux cascades (P, N) et $(P, 2N)$ suivies de l'évaporation d'un proton et de quelques neutrons. Il apparaît que les résultats sur les distributions des cascades conduisent toujours à une proportion insuffisante de cascades (P, P) pour expliquer les sections efficaces des isotopes de bismuth, et l'on doit donc examiner avec soin le stade de l'évaporation.

Ces considérations, ainsi que les conclusions auxquelles nous sommes arrivés lors de l'étude exposée dans le précédant chapitre, font ressortir l'intérêt d'une analyse détaillée du processus d'évaporation, compte tenu de l'émission de particules chargées. Une solution analytique de ce type de probléme est vite abandonnée, vu les difficultés mathématiques auxquelles on se heurte. Par contre, une suite de processus dotés d'une distribution statistique propre s'adapte particulièrement bien à l'emploi de la méthode de Montécarlo, comme cela était déjà le cas pour l'interaction directe. Nous avons adopté cette voie et suivi dans les lignes générales le schéma proposé par DOSTROVSKY *et al.* (35) dans leur analyse de l'évaporation par cette méthode.

A — *PRINCIPALES ETAPES DU CALCUL*

Schématiquement, la suite du calcul peut se résumer comme suit:

1 — Choix de la particule émise.
2 — Calcul de l'énergie cinétique de la particule émise.
3 — Fixation des nouvelles conditions, c'est-à-dire, identification du noyau résiduel et calcul de son énergie d'excitation.

L'ensemble de ces opérations est répété, tant que le noyau résiduel obtenu dispose d'une énergie d'excitation supérieure au seuil d'émission de la particule la plus faiblement liée.

1 — CHOIX DE LA PARTICULE EMISE

On envisage habituellement la possibilité d'émission, par évaporation, de plusieurs particules, autres que les simples nucléons, neutrons et protons. Nous supposerons toujours que des ensembles de nucléons, tels que le deuton, le triton, l'hélium 3 et l'alpha, peuvent se présenter en surface du noyau à chaque étape de l'évaporation.

Nos connaissances sur leur probabilité de présence, du moins dans les noyaux lourds, sont à l'heure actuelle très rudimentaires. Ce problème est cependant plus compliqué dans le cas de l'interaction directe, ou l'étude de l'émission d'une particule alpha par exemple, par ce type de mécanisme, implique la formulation d'hypothèses concernant sa localisation et sa quantité de mouvement. Nous remarquerons enfin que, si la densité de niveau d'un noyau donné est déterminée par la façon dont l'ensemble des groupes de particules qui le constituent se trouve organisé, l'expression (1) reste indépendante du nombre de particules peuplant chacun de ces groupes.

Ces considérations faites, nous allons maintenant reprendre cette expression et examiner d'une façon détaillée les différents facteurs qui la composent.

1.1 — *La densité de niveaux*

Différentes expressions, reflétant chacune un aspect particulier du modèle statistique, sont proposées par divers auteurs [BLATT et WEISSKOPF (23), BETHE (36)]. En l'absence d'argument expérimental net permettant de décider d'un résultat plutôt que d'un autre, nous avons choisi comme il est couramment fait, et dans le souci de rendre maniables les formules mathématiques qui en découlent, l'expression

$$\omega(E) \sim c \exp(2\sqrt{aE})$$

Cette formule contient déjà une approximation par rapport au résultat exact du modèle de gaz de Fermi à puits carré. Nous avons en effect remplacé le terme pré-exponentiel dépendant de E par une constante, car le même terme introduit une différence négligeable aux énergies qui nous intéressent. L'effet de la parité du nombre de nucléons, tel qu'il est proposé par HURWITZ et BETHE (26), y intervient comme nous l'avons déjà décrit (chapitre II). δ étant l'énergie de «pairing», ω devient

$$\omega(E) \sim c \exp[2\sqrt{a(E-\delta)}].$$

Nous avons regardé aussi l'effet d'autres hypothèses concernant ce même sujet.

WEISSKOPF et EWIG (37) proposent d'en tenir compte à travers le coefficient pré-exponential C. Suivant la parité du nombre de neutrons et de protons, on a alors:

$$C_{ip,ip} = 4\, C_{p,p}$$

$$C_{ip,p} = C_{p,ip} = 2\, C_{p,p}\ .$$

L'influence du paramètre de densité de niveaux a a fait l'objet d'une étude de LE COUTEUR (38), qui propose de tenir compte à travers lui de l'excès de neutrons:

$$a_n = a\,(1 - 1{,}3\ \theta/A)^2 \qquad a_p = a\ (1+1{,}3\ \theta/A)^2$$

$$a_d = a\,(1 - 1/2A)^2 \qquad a_t = a\ (1 - 1/A - 1{,}3\ \theta/A)^2$$

$$a_{He^3} = a\ (1 - 1/A+1{,}3\ \theta/A)^2 \qquad a_\alpha = a\ (1 - 3/2A)^2$$

$$\text{où} \qquad \theta = (N - Z)/A.$$

Nous avons fait l'essai d'en tenir compte, mais pour des noyaux lourds l'influence est si minime que cette complication a été abandonnée.

12 — *La section efficace inverse*

La théorie du continum fournit une base permettant de trouver une expression correcte de $\sigma\,(\varepsilon)$.

Remarquons cependant que les résultats obtenus ainsi ne concernent que l'absorption de particules par des noyaux à l'état fondamental. Le comportement d'un noyau excité vis-à-vis du même phénomène reste, du moins directement, inaccessible à l'expérience. Il est cependant possible d'introduire séparément des corrections dont la théorie citée plus haut ne tient pas compte à l'état actuel de son développement. Cette question fera l'objet d'une discussion plus détaillée lors de l'étude du spectre d'évaporation de particules chargées.

Nous nous contenterons maintenant de prendre, comme section efficace inverse, la section efficace inélastique totale pour des particules heurtant le noyau dans son état fondamental.

A partir des résultats numériques détaillés de la théorie du continum objet des travaux de BLATT et WEISSKOPF (23) et SHAPIRO (39), DOSTROVSKY *et al.* (35) proposent les expressions empiriques suivantes:

Pour les neutrons

$$\sigma_c = \sigma_g \,.\, \alpha\,(1+\beta/\varepsilon)$$

où

$$\sigma_g = \pi R^2 \qquad R = r_o\, A^{1/3} \qquad \text{et}$$

$$\alpha = 0{,}76+2{,}2\ A^{-1/3} \qquad \beta = (2{,}12\ A^{-2/3} - 0{,}05)\,/\,(0{,}76+2{,}2\ A^{-1/3})$$

Pour les particules chargées

$$\sigma_c = 0 \qquad \text{pour} \qquad \varepsilon < K_j\ V_j$$

$$\sigma_c = \sigma_g(1+C_j)\left(1-\frac{K_j\ V_j}{\varepsilon}\right) \qquad \text{pour} \qquad \varepsilon \geqslant K_j\ V_j \tag{6}$$

Les barrières V_j sont calculées suivant la formule

$$V_j = \frac{Z\ e^2}{r_o\, A^{1/3} + \rho_j} \quad ,$$

avec $\rho_j = 1{,}2\ 10^{-13}$ cm [BLATT et WEISSKOPF (23)] pour toutes les particules chargées sauf le proton. Les coefficients C_j et K_j furent tabulés par DOSTROVSKY *et al.* (35), et se trouvent rassemblés dans le tableau (*I*) pour les valeurs de Z qui nous intéressent.

TABLEAU I

$Z > 70 \qquad r_o = 1{,}5$

Particule	C	K
Proton	0,1	0,8
Deuton	0,05	0,86
Triton	0,03	0,92
Hellium 3	0,08	0,92
Alpha	0,06	0,98

Les expressions de $\omega(E)$ et de $\sigma(\varepsilon)$ étant établies, le spectre (1) s'écrit:

pour les neutrons

$$P_n(\varepsilon)d\varepsilon = C\,(2s+1)\,m_n\,\varepsilon\,.\,\alpha\,(1+\frac{\beta}{\varepsilon})\,\exp\,\left\{2[a\,(E-B_n-\varepsilon)]^{1/2}\right\}$$

et pour les particules chargées

$$(7)\quad P_j(\varepsilon)\,d\varepsilon = C\,(2s+1)\,m_j\varepsilon\,(1+c_j)\,(1-K_j\,V_j/\varepsilon)\,\exp\,\left\{2\,[a(E-B_j-\varepsilon)]^{1/2}\right\}$$

Les largeurs totales de niveau se calculeront maintenant en intégrant ces deux équations entre zéro et l'énergie maximale pouvant être acquise pour chaque particule. B_j étant l'énergie de liaison de la particule j, la borne supérieure s'écrit:

$$\varepsilon_{max} = E - B_j$$

on a donc:

$$\Gamma_n = \int_o^{E-B_n} P_n(\varepsilon)\,d\varepsilon \qquad \text{pour les neutrons}$$

$$\Gamma_j = \int_o^{E-B_j} P_j(\varepsilon)\;d\varepsilon = \int_{K_j V_j}^{E-B_j} P_j(\varepsilon)\,d\varepsilon \qquad \text{pour les particules chargées.}$$

Le calcul conduit à

$$\Gamma_n = C\,\frac{2\alpha}{a^2}\,\{\,a\,R_n[2\,\exp\,(2\,(aR_n)^{1/2})+1] - (3-2a\beta)\,(aR_n)^{1/2}$$

$$.\,\exp\,[2\,(aR)^{1/2}] - \frac{1}{2}\,(3-2a\beta)\,[1-\exp\,(2\,(aR_n)^{1/2})]\,\}$$

$$\text{avec}\quad R_n = E - B_n\,,\ \text{et}$$

$$\Gamma_j = C\,(2s_j+1)\,\frac{1+C_j}{a^2}\,\{\,a\,R_j[2\,\exp\,(2\,(a\,R_j)^{1/2})+1] - 3\,(aR_j)^{1/2}$$

$$.\,\exp\,[2(aR_j)^{1/2}] - \frac{3}{2}\,[1-\exp\,(2(aR_j)^{1/2})]\,\}$$

$$\text{avec}\quad R_j = E - B_j - K_j V_j$$

Les énergies R_n et R_j étant toujours de plusieurs MeV, on a alors $\exp\ [2\ (a\ R_n)^{1/2}] >> 1$ et $\exp\ [2\ (a\ R_j)^{1/2}] >> 1$. On peut donc écrire avec une bonne approximation:

$$\Gamma_n \simeq C\,\frac{2\alpha}{a^2}\left\{2a\,R_n - \left(\frac{3}{2} - a\beta\right)\,[2\,(aR_n)^{1/2} - 1]\right\}\,\exp\,[2\,(aR)^{1/2}] \quad \text{et}$$

$$\Gamma_j \simeq C\,\frac{(2s_j+1)\ (1+C_j)}{a^2}\left\{2a\,R_j - \frac{3}{2}\,[2\,(aR_j)^{1/2} - 1]\right\}\,\exp\,[2\ (aR_j)^{1/2}].$$

Il est donc possible maintenant, à l'aide de ces probabilités relatives, de décider de la particule émise, par la comparaison de ces largeurs normalisées avec un chiffre tiré au hasard entre zéro et un. X_1 étant ce chiffre, nous disons alors que:

si $\quad \dfrac{\Gamma_n}{\Sigma\,\Gamma} \leqslant X_1 < \dfrac{\Gamma_n + \Gamma_p}{\Sigma\,\Gamma_i}$ un proton est émis

$$\vdots \qquad \vdots \qquad \vdots$$

si $\quad \dfrac{\Gamma_n+\Gamma_p+\Gamma_d+\Gamma_t+\Gamma_{He3}}{\Sigma\,\Gamma_i} \leqslant X_1 < 1$ une particule alpha est émise.

2 — CALCUL DE L'ÉNERGIE CINÉTIQUE DE LA PARTICULE ÉMISE

Nous savons séjà quelle particule est évaporée au premier stade de la chaîne. Pour pouvoir maintenant poursuivre l'étude de la désexcitation jusqu'au noyau final, il nous faut connaître l'état du noyau que nous venons d'obtenir, ce qui implique le calcul de l'énergie cinétique emportée par la particule émise.

La distribution en énergie des particules évaporées est donnée par l'équation (7). Nous allons normaliser ce spectre introduisant auparavant le changement de variable:

(8) $\quad \xi = \varepsilon - V \quad$ avec $\quad V = -\beta \quad$ pour les neutrons

et $\quad V = K_j V_j \quad$ pour les particules chargées,

qui rendra plus simples sa forme.

Avec cette transformation, l'abscisse du maximum s'écrit:

$$\xi_{max} = \frac{1}{a}\left[(aR + 1/4)^{1/2} - \frac{1}{2} \right]$$

et si nous fixons $P(\xi_{max}) = 1$ on a

$$P(\xi) = \frac{\xi}{\xi_{max}} \exp\, 2\left\{[a\,(R - \xi)]^{1/2} - a\,\xi_{max}\right\}$$

avec $R = R_j$ dans le cas des particules chargées et $R = R_n + \beta$ dans le cas des neutrons. Compte tenu du changement de variable exprimée par (8), R est la valeur maximale de ξ. Une valeur ζ bornée supérieurement par R est alors obtenue avec un nouveau chiffre $0 \leqslant X_2 < 1$ pris au hasard.

$$\xi = X_2\ R$$

La probabilité pour que cette valeur particulière soit retenue est $P(\xi)$, celle d'en être refusée est naturellement $1 - P(\xi)$.

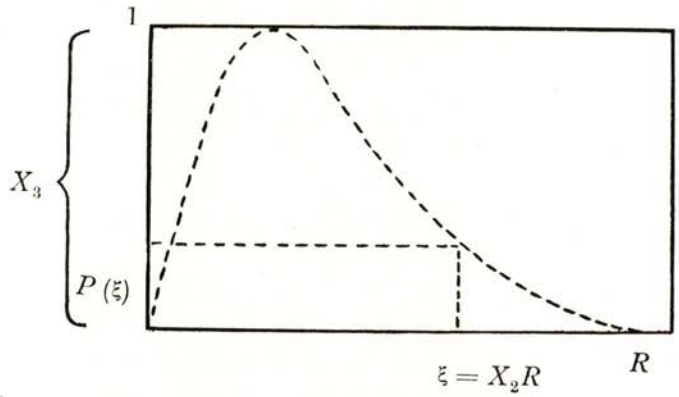


fig. 6

Un troisième chiffre X_3, $(0 \leqslant X_3 < 1)$ permet d'en décider suivant le critère évident (fig. 6):

ξ n'est retenu que si

(9) $$P(\xi) > X_3$$

Au cas où cette valeur se trouverait refusée, nous reprenons le calcul après le choix d'un nouveau ξ, jusqu'à ce que la condition traduite par (9) soit vérifiée. Nous revenons alors à l'énergie cinétique

de la particule, par la relation (8). Une remarque reste à faire. Dans le cas des neutrons, le choix de ξ doit tenir compte du fait que pour $\xi < \beta$ on est conduit à une énergie cinétique négative. Le spectre se trouve alors décalé de cette quantité par rapport à l'origine. Pour $A \simeq 200$, β est cependant très petit ($\simeq 0{,}01$) et la différence est donc négligeable.

3 — FIXATION DES NOUVELLES CONDITIONS

Chaque particule évaporée conduit à un élément ou à un isotope de cet élément, différent. Il faut donc définir le A et le Z caractérisant le noyau résiduel et calculer son énergie d'excitation. Si l'énergie de liaison de la particule évaporée dans le noyau de départ est B_j , et si l'énergie cinétique emportée est ε_j , l'énergie restante s'écrit:

$$E_r = E - B_j - \varepsilon_j$$

Avant de reprendre le calcul des largeurs de niveau avec les conditions que nous venons de définir, il faut s'assurer que pour chaque particule, l'inégalité

$$E_r > B_j \quad \text{se vérifie.}$$

La particule ou les particules dont les énergies de liaison ne satisfont plus à cette condition, sont éliminées de la compétition qui va suivre.

La cascade se terminera dès que E_r est égal à ou plus petit que l'énergie de liaison de la particule la moins liée.

Pour pouvoir mener l'étude de cette désexcitation aussi loin que l'énergie maximale de 155 MeV le faisait prévoir, nous avons dû tenir compte des énergies de liaison [SEEGER (21)] des diverses particules en compétition, dans tous les isotopes pouvant être obtenus à partir du noyau composé.

A et Z étant respectivement les nombres de masse et atomiques de ce dernier, nous avons prévu comme noyau résiduel le plus éloigné, celui qui est caractérisé par les nombres $A - 20$, $Z - 5$.

B — *CHOIX DES PARAMÈTRES*

Plusieurs hypothèses et approximations sont à la base des calculs théoriques que nous avons exposés. C'est ainsi que l'on a pu adopter les expressions de la section efficace inverse et de la densité

de niveaux d'un noyau excité. Cependant, ces mêmes expressions ne sont déterminées d'une façon univoque qu'après de nouvelles hypothèses déterminant le choix de paramètres dont elles dépendent directement ou indirectement. Ce problème occupe ici une place plus importante que dans le précédent chapitre, et ceci pour deux raisons. Le choix du paramètre de densité de niveaux dans l'aproximation qui consiste à négliger l'émission de particules chargées n'influence que la place en énergie des diverses fonctions d'excitation, tandis qne maintenant, tout en conservant ce rôle, il va aussi jouer sur la valeur relative des probabilités d'émission des différents types de particules en compétition.

Le rayon nucléaire pour sa part, tout en définissant de la même façon la section efficace géométrique, va intervenir indirectement à travers la section efficace inverse.

D'un point de vue strictement théorique, deux paramètres comme ceux dont on vient de parler se trouvent en principe liés. En effet, on conçoit aisément que la densité de niveaux d'un noyau donné soit en rapport avec sa forme et ses dimensions. Cependant, les résultats dont on dispose se basant sur un modèle assez simpliste, il semble actuellement que la voie empirique reste, dans certaines limites, un bon moyen pour les déterminer.

1 — LA CONSTANTE DE DENSITÉ DE NIVEAUX

A ce sujet, nous disposons, en plus des résultats théoriques, d'une collection importante de résultats expérimentaux. Or, l'exploitation de ces derniers, pour ce qui est de la détermination du paramètre en question, exige la formulation d'un certain nombre d'hypothèses.

Un cas typique est celui de la détermination de a (au cas où la forme de la densité de niveaux est celle adoptée dans ce chapitre), ou de T (si ce même choix est celui du chapitre antérieur) à partir des spectres de particules émises par des noyaux excités. La détermination en question implique qu'on connaît, d'une part, l'énergie d'excitation du noyau résiduel et, d'autre part, la façon dont la section efficace inverse varie en fonction de l'énergie cinétique de la particule. Le premier de ces deux problèmes est assez délicat car l'énergie d'excitation résiduelle n'est connue sans ambiguïté, que dans le cas où il n'y a qu'une seule particule d'émise. Dans ces conditions, seuls les résultats expérimentaux concernant les noyaux peu excités sont alors utilisables. En particulier, l'idée d'une variation de a avec l'énergie

d'excitation devient difficilement exploitable par cette méthode, en raison de cette restriction. Quant à la section efficace inverse, elle soulève un problème très différent suivant qu'il s'agit d'un spectre de particules chargées ou de neutrons. En effet, dans ce dernier cas, l'approximation qui consiste à remplacer $\sigma(\varepsilon)$ pour une constante est justifiée, du moins pour des valeurs de ε supérieures à 1 MeV environ.

L'effet de la variation très lente de $\sigma(\varepsilon)$ doit se traduire par une montée très raide des spectres de neutrons, ce qui est confirmé par l'expérience. Dans le cas des particules chargées, l'adoption d'une expression pour $\sigma(\varepsilon)$ complique beaucoup le problème en raison de sa sensibilité au choix du rayon nucléaire unité. Il serait cependant intéressant de pouvoir analyser par cette méthode les résultats de spectres de différents types de particules issus d'un même noyau, car on aurait là un bon moyen d'étudier l'influence de la parité du nombre de nucléons.

De l'ensemble de ces considérations, il ressort que les renseignements que l'on peut obtenir par cette voie sur le paramètre de densité de niveaux, aient surtout une valeur indicative. Les essais faits dans ce but, avec plusieurs types de particules et de noyaux, font apparaître un résultat commun qui est assez important: la dépendance $\omega(E)$ sous la forme

$$\omega \sim \exp f(E).$$

Avec $f(E) = 2\sqrt{aE}$ ou $f(E) = \frac{E}{T}$, on trouve un accord très satisfaisant.

La valeur de a, déterminant aussi la place en énergie des fonctions d'excitation théoriques, la comparaison avec l'expérience va nous fournir un autre élément susceptible de nous guider dans son choix. Nous avons finalement adopté la solution qui consiste à essayer des valeurs de a assez différentes On peut en particulier juger de la sensibilité des divers résultats aux variations de ce paramètre. Les valeurs A/20 et A/10, jugées extrêmes, furent retenues.

2 — LE RAYON NUCLÉAIRE UNITÉ

Pour ce qui est des dimensions d'un noyau à l'état fondamental, la détermination du rayon nucléaire unité à travers l'expression $R = r_0 A^{1/3}$, la sphéricité admise, dépend du type d'expérience choisi. Nous remarquerons cependant que les données les plus récentes

[HOFFSTADTER (40)] s'accordent pour des valeurs plus petites que celles utilisées auparavant: 1,4 et même 1,5 f. Nous avons ainsi adopté, pour ce qui est du calcul de la section efficace inélastique totale, la valeur $r_0 = 1{,}3$ f, comme dans le chapitre précédent. Quant au choix de r_0 intervenant dans les sections efficaces inverses, le problème est plus compliqué, car nous manquons de renseignements concernant les dimensions d'un noyau excité. Cependant, dans le but de tester les hypothèses qui sont à la base du calcul des largeurs de niveaux proposées par DOSTROVSKY *et al.* (35), nous avons conservé la valeur $r_0 = 1{,}5$ f utilisée par ces auteurs.

Enfin, pour ne pas avoir à juger simultanément d'un ensemble trop grand de paramètres, nous avons préféré à ce stade ne pas tenir compte de la parité du nombre de nucléons. Ceci dit, l'ensemble des opérations décrites plus haut a été effectué à l'aide d'ordinateurs électroniques très rapides. Après quelques essais, faits avec une CAB 500 au Laboratoire Joliot-Curie à Orsay, le programme définitif a été exploité successivement avec une IBM 7090 du Centre de Recherches de l'Electricité de France, et avec une UNIVAC 1107 du groupe de Hautes Energies à Orsay. Les probabilités d'émission de 1,2... , x neutrons furent ainsi calculées pour des énergies d'excitation allant de 10 à 160 MeV, avec des intervalles de 5 MeV. La désexcitation des noyaux issus de la phase d'interaction directe fut étudiée avec le même détail, de façon à pouvoir calculer correctement les divers termes contribuant à la section efficace totale de chaque isotope. Pour chaque énergie, nous avons collectionné de 200 à 250 événements. Ce chiffre réalisait en effet le compromis entre un temps de calcul raisonnable et une statistique satisfaisante. L'énergie cinétique de chaque particule émise est enregistrée afin de permettre de tracer le spectre, dont la comparaison avec l'expérience est un des éléments importants dans le choix des hypothèses de départ.

C — *RESULTATS DE CALCUL*

1 — EFFET DE L'ÉMISSION DE PARTICULES CHARGÉES

Sur la fig. 7 nous avons rassemblé les résultats concernant le *Bi*, *Au*, *Tb* et *Y*. Les différentes courbes représentent, pour chacun de ces éléments, la probabilité d'obtention à partir du noyau composé $(X_Z^A + p)$, d'un isotope issu de l'émission de neutrons seulement. En d'autres termes, il s'agit de la proportion des chaînes d'évaporation au cours desquelles il n'y a émission d'aucune particule chargée. Dans

le cas de l'yttrium, qui est un noyau de masse moyenne ($A = 89$), on constate qu'au-delà de 110 MeV environ, la probabilité d'obtention d'un isotope de Zr à partir du noyau composé est rapidement négligeable.

Expérimentalement (41), et à 60 MeV, la somme

$$\sum_{x=1}^{4} \sigma\,(p, xn)$$

ne dépasse déjà 35% de la section efficace inélastique totale ($r_0 = 1{,}3$). L'influence très marquées du paramètre a sur la proportion de particules chargées émises, est visible dans le cas du Bi et Au, sur la fig. 8. Dans ces deux éléments cette proportion varie d'un facteur 2 à 160 MeV, suivant que l'on prend A/10 ou A/20. L'émission de particules chargées apparaît sensiblement plus favorisée à partir des polonium qu'à partir des mercure, surtout aux grandes énergies. Expérimentalement, on trouve en effet des sections efficaces de formation des mercure (42) par réaction $Au\,(p, xn)\,Hg$ plus élevées que celles des polonium obtenues par le même type de réaction sur le bismuth.

2 — NOMBRE MOYEN DE PARTICULES EMISES PAR CASCADE

Nous avons tracé, en fonction de l'énergie d'excitation, la variation du nombre moyen de particules émises au cours de la désexcitation des noyaux de Po^{210} et Hg^{198}. Seules sont représentées les courbes concernant les neutrons, protons et alpha, les autres particules étant beaucoup moins fréquentes (figs. 9, 10 et 11).

3 — FORMATION DE DIVERS ÉLÉMENTS AU COURS DE L'ÉVAPORATION

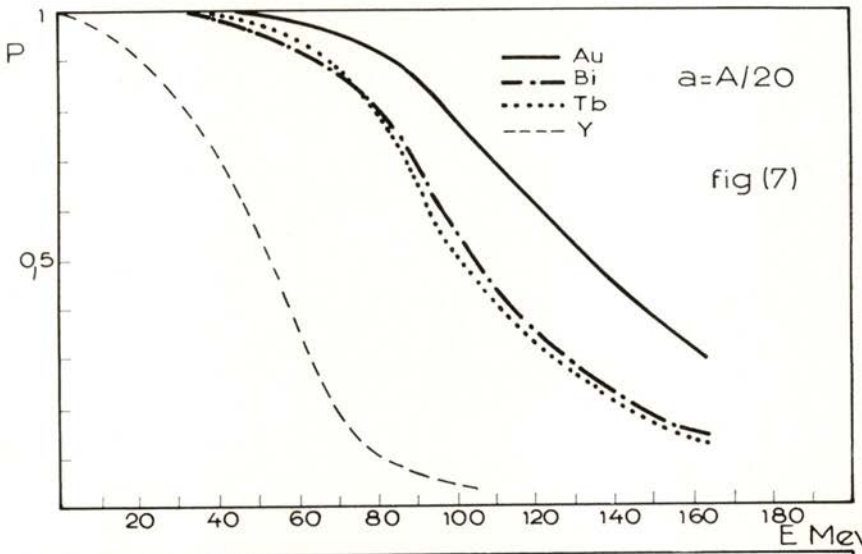
L'émission conjugée de neutrons et particules chargées, par évaporation, conduit à la formation de plusieurs éléments. Sur les figs. 12 et 13 on a tracé les courbes de probabilité de formation de Po, Bi, Pb et Tl par désexcitation du Po^{210}.

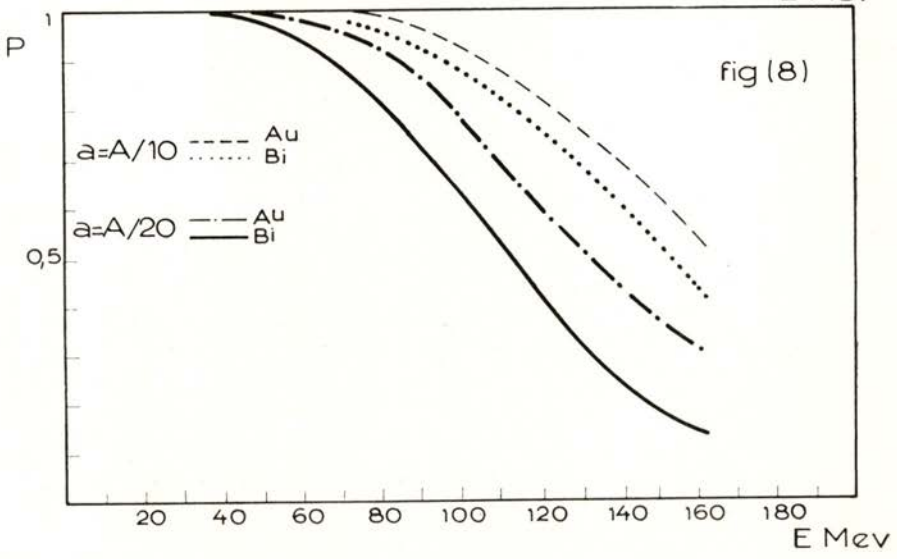
On remarquera que la formation de Pb devient plus importante que celle de Bi. En effet, on obtient le premier de ces deux éléments, à la fois par l'émission de deux protons, deux deutons, deux tritons, un héllium 3 ou un alpha.

L'émission de protons doit contribuer, en particulier, aux réactions (p, pxn). Sur la fig. 14 on voit l'apport du noyau composé Po^{210} à la formation de Bi^{204} et Bi^{203}.

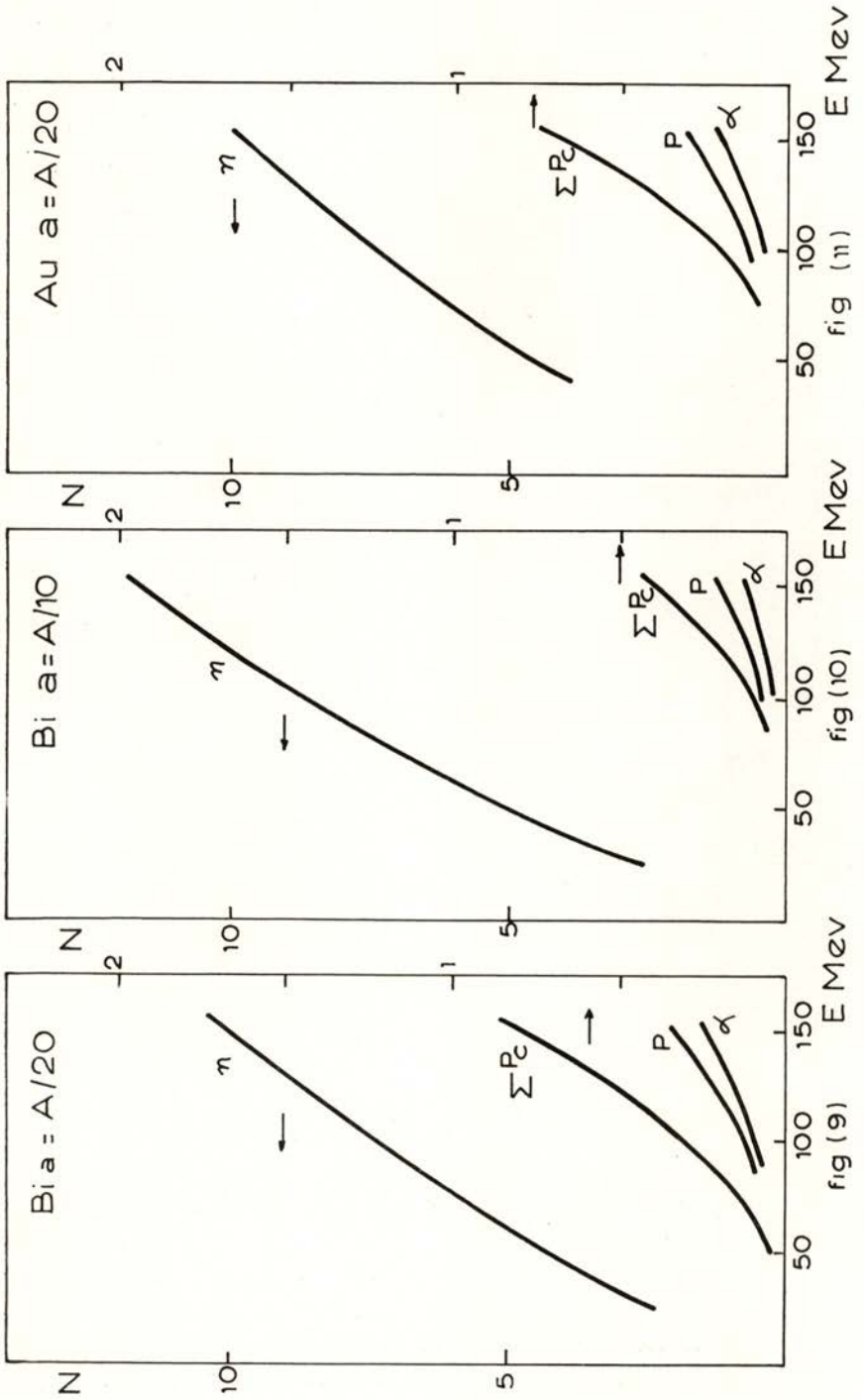
4 — PROBABILITE D'ÉMISSION D'UN NOMBRE X DE NEUTRONS

Comme première étape du calcul des rendements de formation des divers isotopes par la réaction (p, xn), on a tracé les courbes de



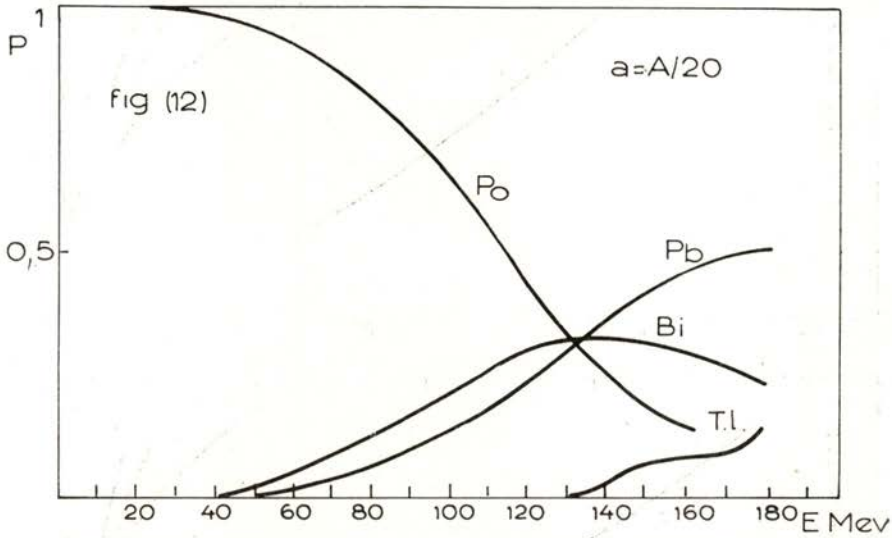


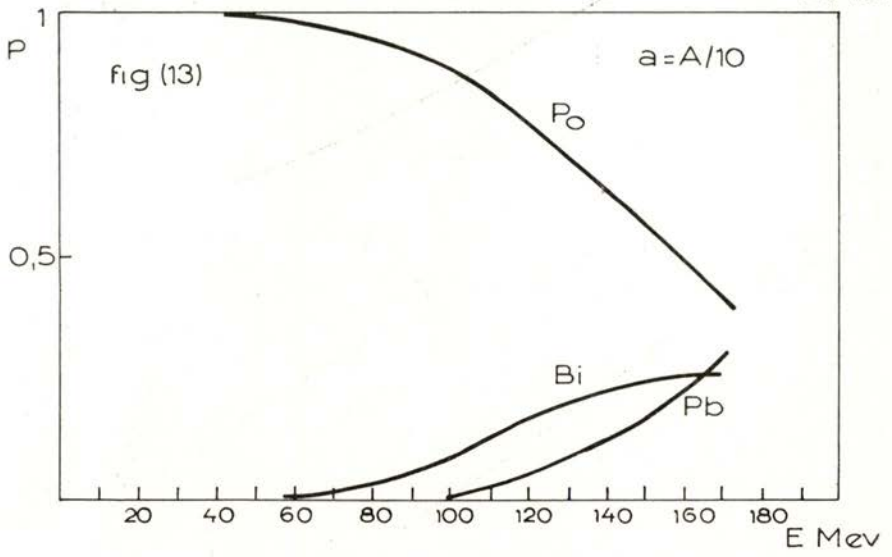
probabilité d'émission d'un nombre x de neutrons, en fonction de l'énergie d'excitation. On a rassemblé dans les figs. 15 et 16 quelques résultats concernant le *Bi* et le *Tb*. Les courbes, représentent la probabilité d'obtention par désexcitation des noyaux de Po^{210} et


Bi a = A/20
Bi a = A/10
Au a = A/20
N
E Mev
fig (9)
fig (10)
fig (11)
Σ^{P_c}
P
α
η

Dy^{160} des isotopes de ces éléments, de nombre de masse A-8, A-9, et A-10.

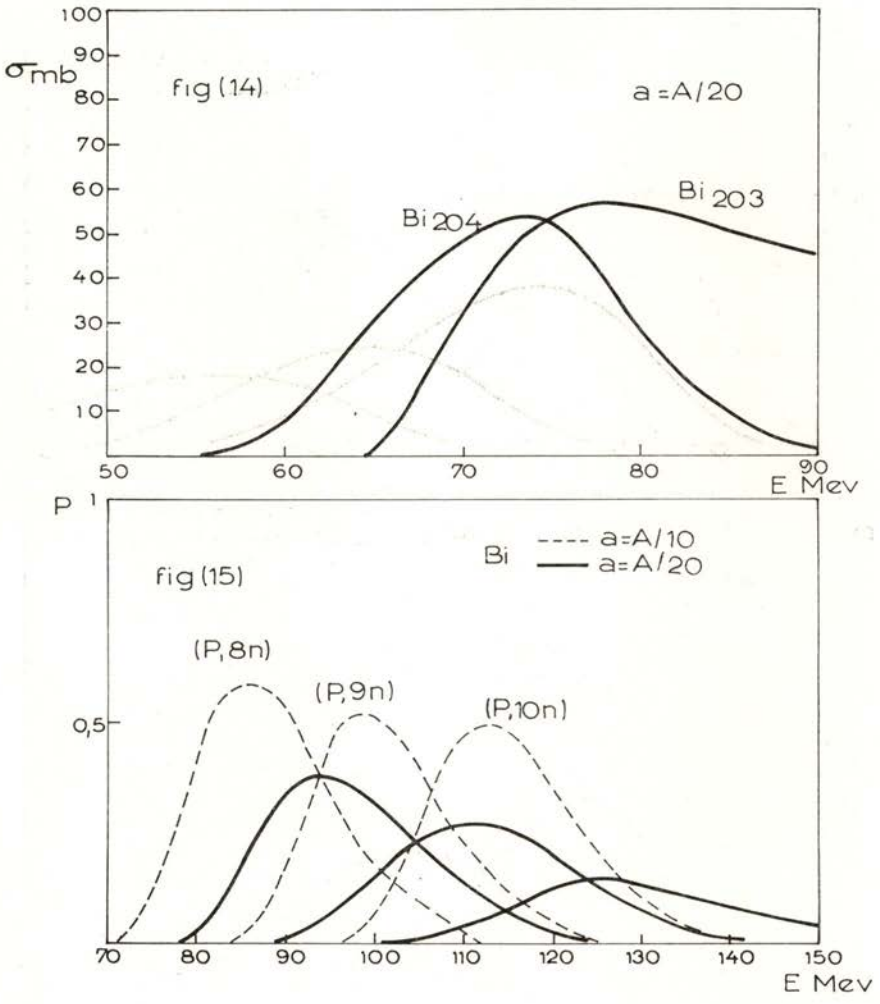
L'influence du paramètre a y apparaît très nettement, à la fois sur la place et l'amplitude de chaque courbe. Il est intéressant aussi





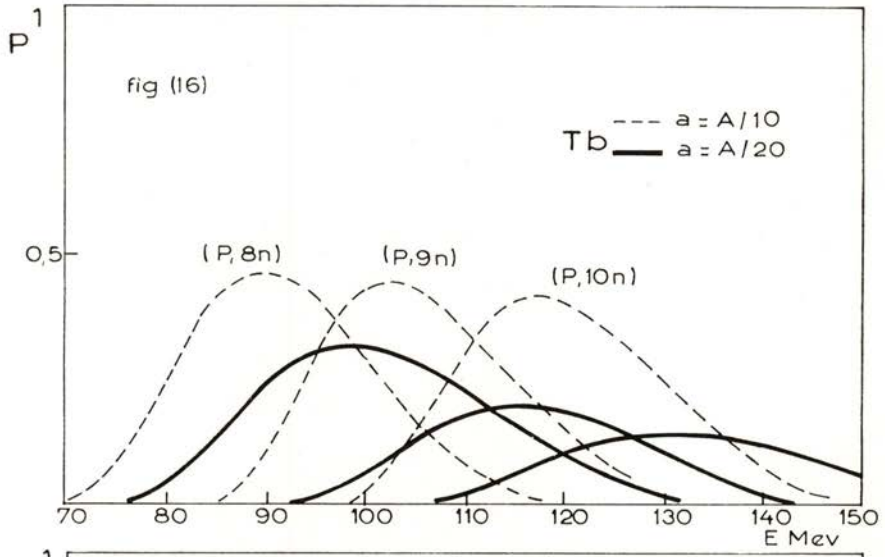
de comparer, sous cette forme, les résultats que l'on obtient suivant que l'émission de particules chargées est négligée ou non. La fig. 17 montre clairement la différence entre les résultats obtenus avec chacune de ces deux hypothèses. On y voit d'une part, en traits pleins,

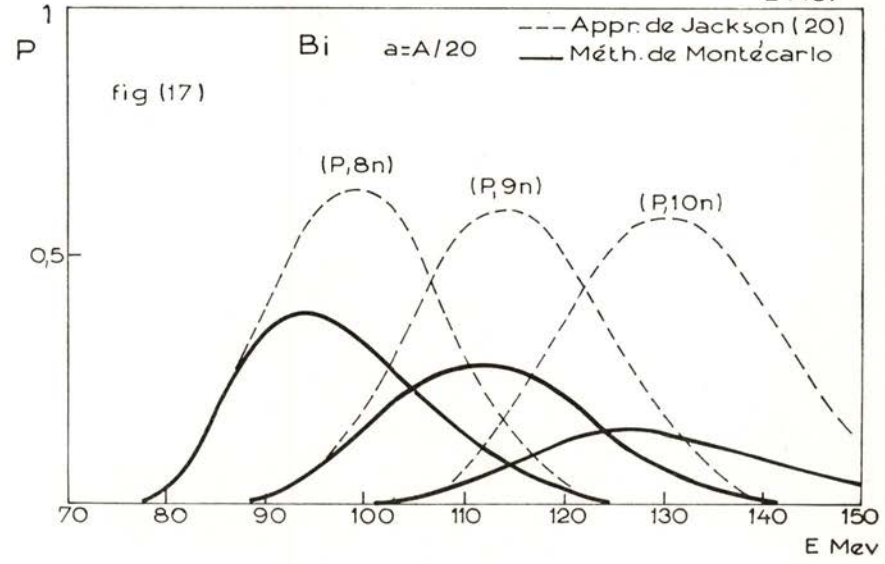
les courbes qui figuraient sous la même forme dans la fig. 15 et, d'autre part, celles que l'on obtient, pour les mêmes isotopes, à partir de l'expression (4) [chapitre II]. La valeur de a est la même dans les deux cas.

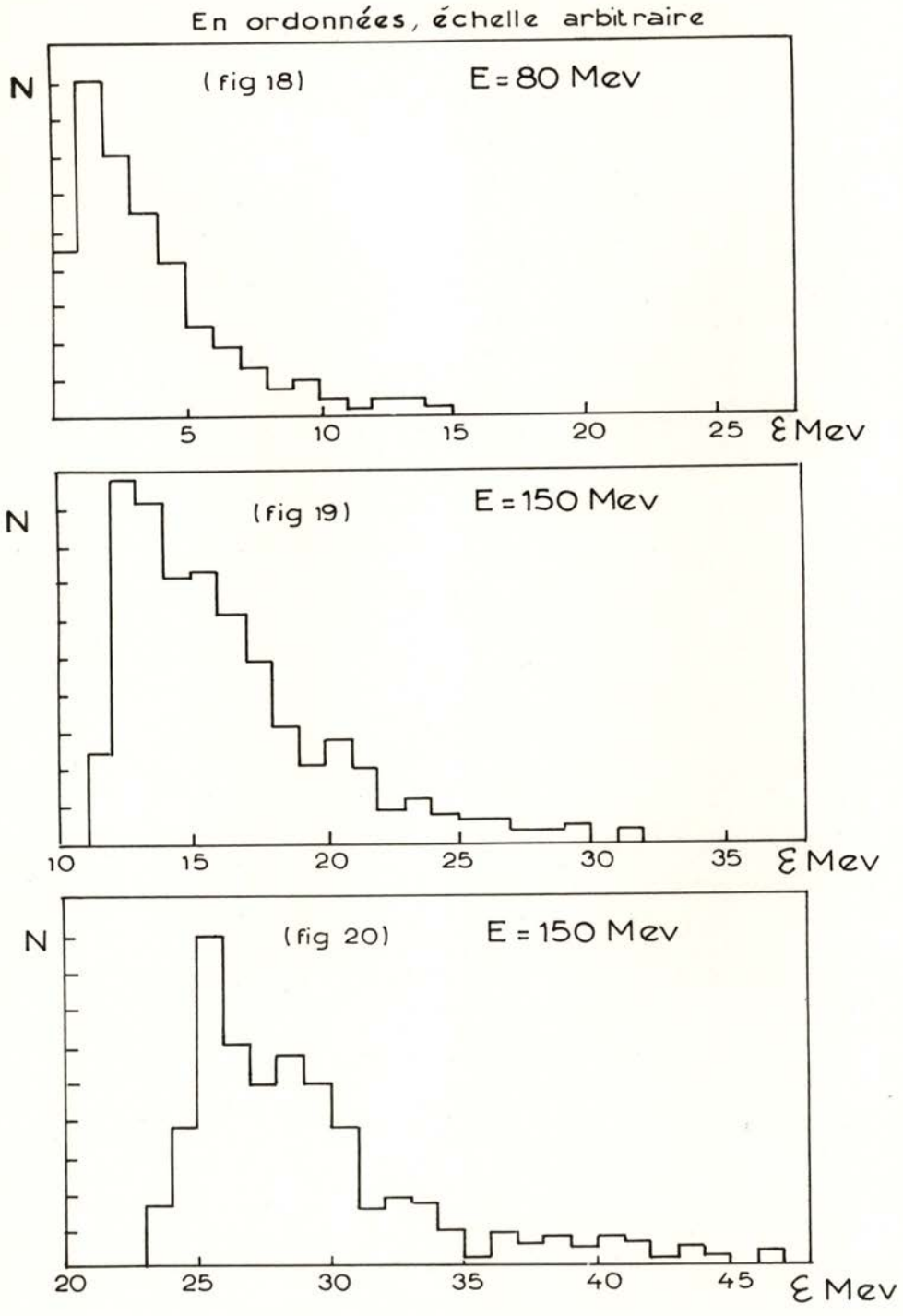


5 — SPECTRES D'EVAPORATION

Nous avons tracé les spectres de neutrons, protons et alpha émis au cours de la désexcitation de noyaux de polonium. Les figs. 18, 19 et 20 montrent un exemple de chacun de ces spectres.


P
1
fig (16)
Tb
--- a = A/10
a = A/20
0,5
(P,8n)
(P,9n)
(P,10n)
70
80
90
100
110
120
130
140
150
E Mev


P
1
fig (17)
Bi
a=A/20
---Appr. de Jackson (20)
—Méth. de Montécarlo
0,5
(P,8n)
(P,9n)
(P,10n)
70
80
90
100
110
120
130
140
150
E Mev


En ordonnées, échelle arbitraire
N
(fig 18)
E = 80 Mev
5
10
15
20
25
ε Mev
N
(fig 19)
E = 150 Mev
10
15
20
25
30
35
ε Mev
N
(fig 20)
E = 150 Mev
20
25
30
35
40
45
ε Mev

D — *COMPARAISON AVEC L'EXPÉRIENCE*

1 — REACTIONS (p, xn) SUR LE TERBIUM

Les fonctions d'excitation des réactions $(p, 9n)$ et $(p, 10n)$ induites dans le terbium 159 par des protons de 80 à 155 MeV furent étudiées récemment au laboratoire par M. LEFORT et collaborateurs (7). Ces auteurs ont pu montrer, par comparaison avec les résultats obtenus par ions lourds (43), l'influence négligeable du moment angulaire apporté par le proton incident. Par ailleurs, une comparaison théorie--expérience, basée sur l'approximation de JACKSON, faisait ressortir la nécessité de corriger les résultats ainsi obtenus, pour tenir compte au moins de l'émission de protons. Un raisonnement très schématique (7) conduisait à un rapport Γ_p/Γ_n égal à 0,04 à chaque étape, ce qui diminuait de 40% la section efficace de la réaction $(p, 10n)$. Les résultats expérimentaux se trouvaient, même avec cette correction, systématiquement au-dessous des prévisions théoriques.

Il nous a donc semblé intéressant d'appliquer à ce noyau le schéma de calcul que nous venons d'exposer. La distribution en énergie des noyaux issus de la phase d'interaction directe fut celle utilisée par LEFORT *et al.* (7). Elle est constituée, d'une part, des résultats de calcul à la Montécarlo, dus à GRADSZTAJN (44), et, d'autre part, des estimations faites par interpolation de ces derniers à 95, 120 et 135 MeV. La fig. 21 montre les courbes calculées avec $a = A/20$, comparées aux données expérimentales.

L'emploi de la valeur $a = A/10$ conduisait, d'une part, à des fonctions d'excitation aux seuils et sommets déplacés par rapport à l'expérience et, d'autre part, à des sections efficaces beaucoup trop élevées.

En choisissant $a = A/20$ on obtient un accord presque satisfaisant avec les valeurs expérimentales, compte tenu de l'imprécision de celles--ci et des écarts statistiques des calculs. Cependant, on peut remarquer que les valeurs calculées pour la réaction $(p, 9n)$ semblent toutes légèrement plus élevées que les résultats expérimentaux, tandis que pour la réaction $(p, 10n)$ la situation est inversée. Les calculs laissent prévoir une diminution rapide des sections efficaces maximales lorsqu'on passe de $(p, 9n)$ à $(p, 10n)$, diminution non constatée expérimentalement. Il faudrait pouvoir disposer d'une série plus étendue de réactions (p, xn) pour tenter une comparaison plus poussée.

2 — REACTIONS (p, xn) SUR LE BISMUTH

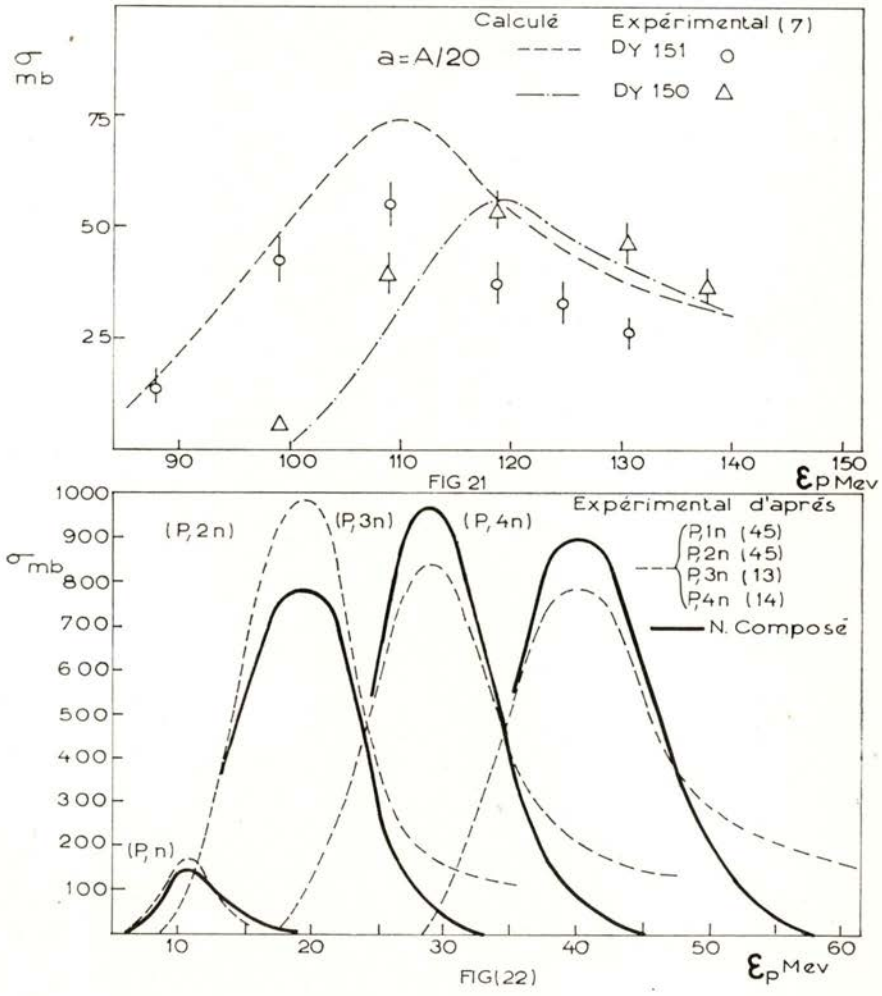
La comparaison théorie-expérience peut, dans le cas du bismuth, s'étendre sur une très grandes bande d'énergie, puisque nous disposons de diverses sources des résultats de mesure de sections efficaces de toutes les réactions (p, xn) ayant lieu jusqu'à 155 MeV. Cette circonstance permet, en particulier, de tester les prévisions théoriques dans des régions où l'importance de chaque terme, dans le processus d'interaction directe, est très différente. Dans un noyau lourd, comme le bismuth, on peut distinguer une première région jusqu'à 50 MeV environ, où la formation d'un noyau composé est le processus dominant. Si l'on remarque qu'aux basses énergies d'excitation la place des divers maximas des fonctions d'excitations calculées sont assez peu sensibles au choix du paramètre a, il semble alors que la comparaison de nos calculs avec l'expérience soit particulièrement simple dans cette région. Sur la fig. 22 nous voyons, d'une part, les fonctions d'excitation expérimentales des réactions $(p, n;\ 2n;\ 3n;\ 4n)$ et, d'autre part, les courbes obtenues en supposant que seul le noyau composé est formé dans la réaction d'absorption du proton. On peut donc écrire simplement l'expression:

$$\sigma_x = \sigma(\varepsilon).\ P\,(\varepsilon + B_p, x).\ P_{nc}\,(\varepsilon)$$

$\sigma\,(\varepsilon)$ est la section efficace d'absorption de protons, et les deux autres termes, respectivement, les probabilités d'émission de x neutrons et de formation du noyau composé. Pour chaque courbe, et au-delà d'une certaine énergie, les points expérimentaux montrent que l'effet de l'interaction directe commence à se faire sentir. Si l'on pense qu'à ces énergies, seule la cascade (P, N) peut contribuer dans les régions où l'apport du noyau composé devient négligeable, une estimation simple peut donner une idée de l'importance de ce processus. De l'examen des résultats sur la réaction $(p, 2n)$, nous voyons que la courbe expérimentale cesse d'accompagner la courbe du noyau composé vers 23-25 MeV environ. Le seuil de la cascade (P, N) doit donc se trouver aux environs de cette énergie. Ce résultat correspond à peu près aux prévisions des calculs à la Montécarlo. A 60 MeV nous pouvons, sur ces considérations, évaluer grossièrement son importance à 18% environ de la section efficace inélastique. A plus grande énergie, il est malheureusement difficile de poursuivre ce genre d'étude, étant donné le nombre croissant de phénomènes en compétition. La fig. 23 montre les résultats de calcul obtenus à 155 MeV comparés aux valeurs expérimentales.

Cette comparaison appelle les remarques suivantes:

a) Jusqu'à la réaction (p, $5n$) l'effet d'évaporation de particules chargées ne se fait pas sentir. Ceci est dû au fait que, même



pour une énergie incidente de 155 MeV, les isotopes correspondant à ces réactions sont formés à partir de noyaux issus de l'interaction directe disposant d'une faible énergie d'excitation, à laquelle correspond une probabilité faible d'émission d'autres particules que les neutrons.

b) A partir de la réaction $(p, 9n)$ les différences entre la présente méthode de calcul et celle de JACKSON deviennent importantes. On peut constater aussi l'influence du paramètre a à la fois, sur le nombre moyen de neutrons émis et sur la valeur absolue

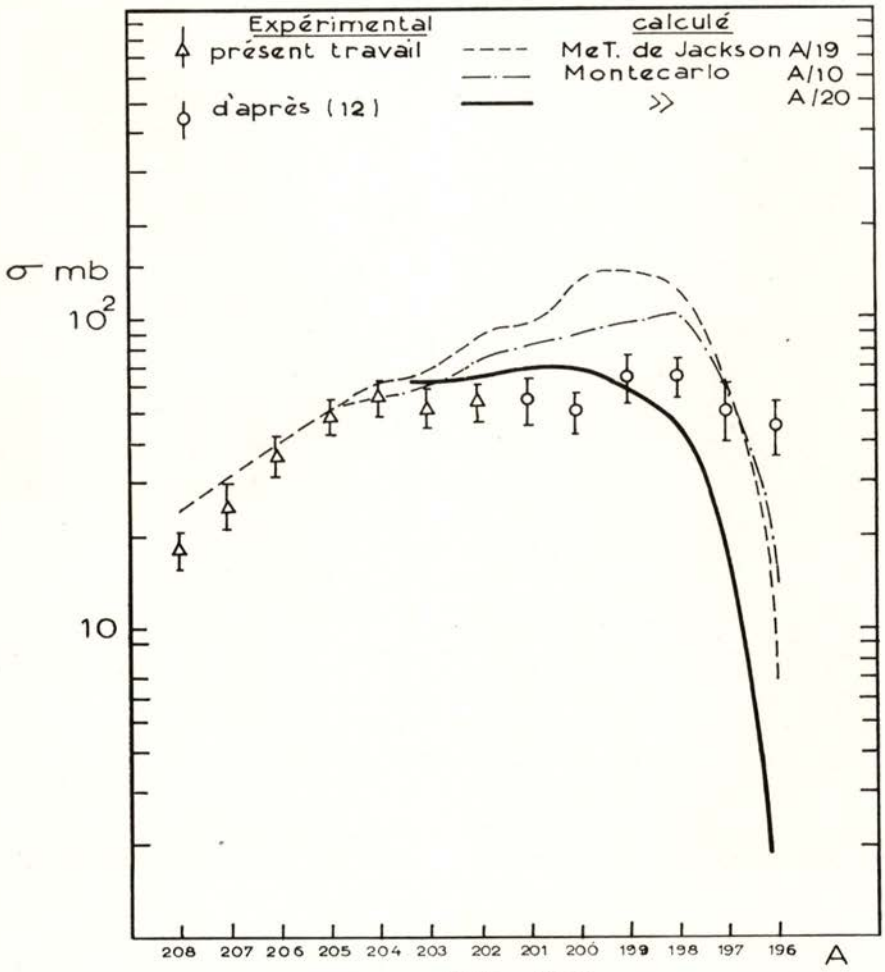


FIG (23)

des sections efficaces. Nous pouvons constater que, quelle que soit la valeur de a, on obtient une amélioration sensible par rapport à la méthode précédente. Cependant, si la valeur $a = A/20$ semble mieux convenir jusqu'à $(p, 11n)$, elle donne des résultats trop faibles pour les réactions $(p, 13n)$ et $(p, 14n)$.

Il est intéressant aussi de comparer, à cette énergie et sous une forme globale, les résultats théoriques et expérimentaux. En effet, à plus basse énergie, les réactions (p, xn) étant issues d'un nombre très restreint de processus — le noyau composé, plus, dans une moindre mesure, la cascade (P, N) — on peut s'attendre à une influence importante des hypothèses de calculs sur la somme de ces deux termes. Il en est tout autrement à 155 MeV, où les modifications portent surtout sur la distribution des événements à l'intérieur d'un grand nombre de processus $(NC+P, N+P, 2N+P, 3N)$. Dans le tableau II nous avons rassemblé la somme des sections efficaces calculées et expérimentales, ainsi que la valeur totale en *mb* des divers termes de l'interaction directe conduisant aux réactions

TABLEAU II

valeurs en mb.

A/10	A/20	NC + P,N + P,2N + P,3N	$\Sigma\sigma$ exp
775	605	1100	645

(p, xn), si l'on ne tient compte que de l'émission de neutrons. Cette dernière valeur représente aussi la somme des résultats de calcul selon la méthode de JACKSON, puisque nous n'y faisons pas intervenir de particules chargées.

La comparaison de ces résultats donne assez nettement une mesure supplémentaire de la non validité de la méthode qui consiste à envisager, comme seule voie de désexcitation, l'émission de neutrons. Le meilleur accord constaté à 155 MeV s'étend à plus basse énergie. Nous avons rassemblé dans les figs. 24, 25, 26 et 27 les fonctions d'excitation calculées et expérimentales des isotopes 204, 203, 202 et 201 du polonium. Si les courbes théoriques se trouvent en général audessus des courbes expérimentales, il n'en reste pas moins qu'en particulier avec $a = A/20$ l'accord est dans l'ensemble assez satisfaisant. La différence entre la position des divers maxima semble suggérer une valeur de a entre $A/10$ et $A/20$. D'un autre côté, nous n'avons pas tenu compte des énergies de «pairing». Son introduction dans le calcul aura comme effet une translation des courbes vers les grandes énergies. On peut donc penser que la conjugaison de ces deux modifications puisse amener l'emplacement des maxima calculés à une position plus correcte. Cette modification semble aussi convenir à 155 MeV où la valeur $A/20$ donne, nous l'avons vu, des résultats trop faibles pour les derniers isotopes.

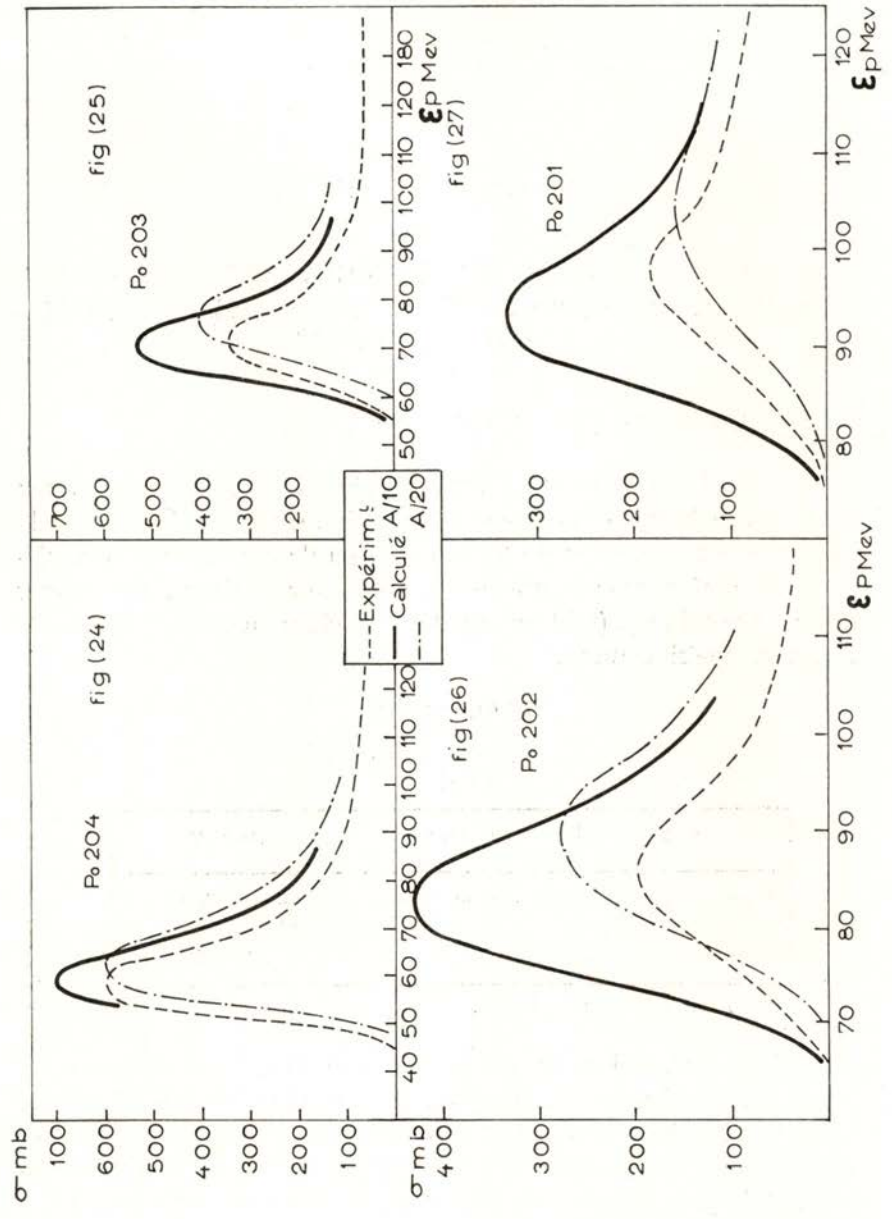


fig (25)
Po 203
fig (27)
Po 201
Po 204
fig (24)
fig(26)
Po 202
Expérim.t
Calculé A/10
A/20
σ mb
ε p Mev

CHAPITRE IV

ETUDE DES SPECTRES EN ÉNERGIE DES PARTICULES ÉVAPORÉES. INTRODUCTION DE NOUVELLES APROXIMATIONS DANS LE CALCUL DE L'ÉVAPORATION

1 — SPECTRES DE PARTICULES CHARGEES

Les calculs exposés au chapitre précédant permettent de tracer les spectres en énergie des particules évaporées. Un critère important de vérification est donc celui de la comparaison de ces spectres aux distributions tracées expérimentalement. Cette comparaison fait ressortir un désaccord très net (tableau III) dans la place en énergie des seuils calculés et expérimentaux.

TABLEAU III

Spectres alpha.
Bi + p

Seuil	56 MeV	155 MeV
Expérim.	~ 13 MeV (8)	~ 16 MeV (9)
Calculé (*)	23 MeV	23 MeV

(*) Voir figure (20) chapitre III.

Ce désaccord, qui se trouve lié directement à la section efficace inverse, est un résultat très général. Une comparaison systématique des spectres expérimentaux et des résultats de calculs d'évaporation par la méthode de Montécarlo a été faite, par exemple, par DOSTROVSKY *et al.* (46), aussi bien pour des énergies indidentes d'une quinzaine de MeV, pour lesquelles une seule particule est évaporée, qu'aux énergies plus élevées, au delà de 100 MeV. Nous retrouvons partout le même résultat. Pour pallier cette difficulté, on est naturellement

tenté d'agir sur le rayon nucléaire, soit en considérant une surface diffuse, soit en admettant une dilatation de la matière nucléaire avec l'énergie d'excitation. L'effet de la première de ces deux hypothèses peut, d'après SCOTT (47) et EVANS (48), se traduire en première approximation par l'utilisation d'un rayon nucléaire plus grand. Quant à une expansion du noyau, un traitement thermodynamique de la matière nucléaire [LE COUTEUR (38)] ou l'effet d'onde stationnaires à la surface du noyau [BAGGE (49)] conduisent à un résultat équivalent au précédent. DOSTROVSKY *et al.* (46) suggèrent une solution tenant compte à la fois d'une surface diffuse et d'une dilatation. Quantitativement, ces deux aspects sont traduits par un rayon nucléaire unité porté à 1,7 f et par une variation de la barrière de potentiel en fonction de l'énergie d'excitation sous la forme:

$$V(E) = kV_0 / [1+(E_r/A)^{1/2}], \quad \text{où}$$

kV_0 est la barrière correspondante à $r_0 = 1{,}7$, corrigée d'un facteur de transparence k, voir équation (6), et E_r, l'énergie d'excitation du noyau résiduel.

Si pour des énergies d'excitation élevées, au delà de 100 MeV, l'effet de cette correction devient non négligeable, il n'en est pas de même au cas où l'on a à faire à des noyaux peu excités, où l'on retrouve cependant le même désaccord. Il faut aussi remarquer que dans le calcul que nous avons exposé nous acceptons déjà implicitement une dilatation du noyau, puisque nous utilisons $r_0 = 1{,}3$ f pour ce qui est de la section efficace géométrique, et $r_0 = 1{,}5$ f pour la section efficace inverse. Si le désaccord se manifeste même dans ces conditions, nous concevons mal que le problème puisse trouver sa solution dans une augmentation systématique des dimensions du noyau. En effet, cette voie conduirait à un bouleversement complet des rapports de probabilité d'émission neutrons/particules chargées, et l'on obtiendrait, par exemple, des sections efficaces d'évaporation de particules α très supérieures aux valeurs expérimentales. Il faut donc rechercher une autre explication qu'une expansion isotrope de la matière nucléaire, pour expliquer des valeurs des seuils plus bas, sans accroître les sections efficaces d'émission des particules chargées (51).

11 — *Influence d'une déformation du noyau*

Si une dilatation de la matière nucléaire paraît justifiée par l'énergie d'excitation, nous sommes alors conduits à considérer, dans le cadre

du modèle de la goutte liquide, la perturbation qu'elle est susceptible d'apporter à l'équilibre des tensions superficielle et électrostatique. Il semble donc raisonnable d'associer intimement, dilatation et déformation du noyau. Dans ces conditions, la probabilité d'émission d'une particule chargée va dépendre de la région par laquelle elle quitte le noyau. Cette remarque, suscitée par la déformation des noyaux fissibles, avait déjà été faite par HILL et WHEELER (52) à propos de la vie moyenne des émetteurs alpha. Pour traduire mathématiquement un changenent de la configuration du noyau, nous ferons appel au formalisme du modèle de la goutte liquide. Pour des petites déformations à symétrie cylindrique nous écrivons alors:

$$R = R_o/\lambda\,[1+\alpha\,P_2\,(\cos\theta)] \tag{11}$$

ou λ est un paramètre destiné à assurer la constance de la densité nucléaire, α mesure l'importance de la déformation et $P_2\,(\cos\theta)$ est le polynôme de LEGENDRE du deuxième degré. Avec cette aproximation, le potentiel électrostatique s'écrit

$$V = \frac{zZ\,e^2}{R}\left[1+\frac{3}{5}\frac{R_o^2}{R^2}\,\alpha\,P_2\,(\cos\theta)\right]$$

Quant à la section efficace inverse, nous garderons la forme déjà utilisée:

$$\sigma_c = \sigma_g\,(1+c)\;(1-kV/\varepsilon).$$

DOSTROVSKY *et al.* (35) ayant calculé les coefficients c et k pour les rayons 1,5 f et 1,7 f, nous les avons utilisés pour effectuer des extrapolations pour nos différentes valeurs de r. Enfin, nous avons admis que la densité de niveaux ω reste inchangée lors de la déformation. Avec ces hypothèses, la probabilité d'émission d'une particule chargée quittant le noyau par la région où le potentiel vaut $V\,(\theta)$ sera

$$\gamma\,(\theta) = \int_o^{E-B-\varepsilon} P\,(\varepsilon)\,d\varepsilon = \int_{KV\,(\theta)}^{E-B-\varepsilon} P\,(\varepsilon)\,d\varepsilon$$

et son spectre concernant la même région aura la forme

$$p\,(\varepsilon,\theta) = \gamma(\theta)\,.\,P\,(\varepsilon)$$

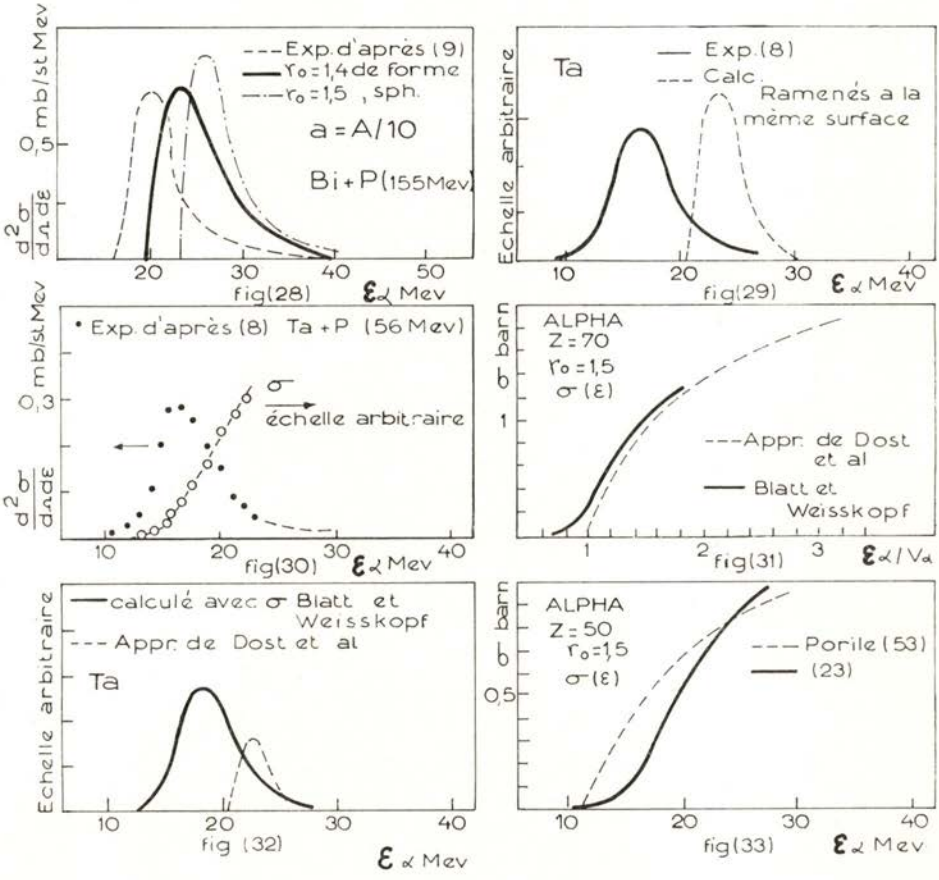
Nous voyons par là que le changement de configuration évoqué doit se traduire par une émission non isotrope des particules chargées. Cette anisotropie ne se manifeste cependant qu'à l'échelle individuelle, puisque l'orientation de chaque noyau déformé est supposé se faire entièrement au hasard. Reste à regarder la façon dont les rapports d'émission particules chargées/neutrons se trouvent modifiés. Les rapports deviennent alors:

$$\Gamma/\Gamma_n = \bar{\gamma}/\Gamma_n \quad \text{avec} \quad \bar{\gamma} = 2/\pi \int_0^{\pi/2} \gamma(\theta)\ d\theta,$$

la largeur de niveau d'émission de neutrons restant inchangée. Nous avons tout d'abord considéré l'effet d'une déformation à partir d'un noyau sphérique de rayon unitaire $r_0 = 1{,}5$ f, avec $\alpha = 0{,}5$, toujours dans le cas de l'émission de particules alpha. Si l'on constate un meilleur accord dans la place en énergie du spectre, on est pourtant conduit à une section efficace trop élevée par rapport à la valeur expérimentale, car la déformation a, comme nous l'avons indiqué, un autre effet, celui d'augmenter les rapports $\Gamma\alpha/\Gamma n$. Dans le but de compatibiliser ces deux aspects, nous avons regardé l'effet d'une déformation de même importance, mais à partir d'une sphère de rayon unitaire $r_0 = 1{,}4$. La section efficace est alors de 50 mb si l'on prend la condition la moins favorable à l'émission de particules chargées (figs. 9 et 10), c'est-à-dire, $a = A/10$.

La fig. 28 montre l'amélioration sensible que l'on obtient avec ces hypothèses. Malgré cette amélioration, nous constatons qu'un désaccord toujours important subsiste. Il faut aussi remarquer que la valeur $\alpha = 0{,}5$ utilisée dans l'expression (11) correspond déjà à une déformation assez importante; il semble donc difficile d'aller plus loin dans cette voie. En effet, du moins dans les noyaux lourds, pour lequel Z^2/A est plus grand que 35, une déformation plus importante entraînerait la fission. Il semble donc que, bien que l'hypothèse dilatation-déformation puisse jouer un rôle correctif important, on doive quand même chercher par ailleurs une raison supplémentaire pour expliquer le désaccord subsistant. Nous avons dans ce but porté notre attention sur la section efficace inverse, dont nous avons utilisé une forme approchée lors du calcul des largeurs de niveau. L'orientation de nos recherches dans cette voie fut suggérée par l'observation suivante: la distance entre le seuil et le maximum pour les spectres calculés et les spectres expérimentaux est nettement différente. L'écart est parti-

culièrement frappant pour les faibles énergies d'excitation comme le montre la fig. 29. La comparaison théorie-expérience est aussi plus simple dans ce cas. On peut en effet avancer l'hypothèse suivant laquelle les particules alpha issues d'un noyau lourd disposant de si peu d'énergie d'excitation devraient provenir du début de la chaîne



d'évaporation. L'énergie d'excitation du noyau résiduel est alors bien définie et, par la même, sa densité de niveaux. Le spectre théorique est donc obtenu par le simple calcul de l'expression

$$P(\varepsilon) = Cte.\ \varepsilon\ .\ \sigma(\varepsilon)\ \omega\ (E - B - \varepsilon) \tag{10}$$

On peut maintenant se demander quelle forme devrait avoir $\sigma(\varepsilon)$ pour qu'il soit possible de reproduire une courbe ayant l'allure

du spectre expérimental. Partons de l'expression (10) et explicitons $\sigma(\varepsilon)$.

$$\sigma(\varepsilon) = Cte. \frac{P(\varepsilon)}{\varepsilon\, \omega\, (E - B - \varepsilon)}$$

on peut alors obtenir $\sigma(\varepsilon)$ à une constante près, à partir de l'ensemble des valeurs expérimentales $[P(\varepsilon), \varepsilon]$, avec $\omega(E)$ définie comme précédemment. La courbe obtenue, ainsi que les points expérimentaux qui en sont l'origine se trouvent rassemblés dans la fig. 30. La figure suivante montre la courbe $\sigma(\varepsilon)$ donnée par la théorie du continuum [BLATT et WEISSKOPF (23)] et l'apropximation de DOSTROVSKI *et al.* (35).

De l'examen de cet ensemble de résultats on est rapidement amené à attribuer une importance insoupçonnée jusqu'ici à la région du seuil de la fonction d'excitation théorique $\sigma(\varepsilon)$, région négligée par l'approximation de DOSTROVSKY *et al.* La forme très rétrécie de la partie du spectre théorique entre le seuil et le maximum trouve donc son origine dans l'emploi d'une courbe $\sigma(\varepsilon)$ dont la montée est beaucoup trop rapide. La contribution de l'élément de courbe négligé est rendue très significative en raison du rôle amplificateur de la densité de niveaux. On peut mieux préciser ces remarques en calculant le même spectre sans approximations. Les résultats obtenus avec les deux courbes de la fig. 31 sont rassemblés dans la fig. 32.

On constate immédiatement que:

— L'utilisation correcte de $\sigma(\varepsilon)$ ramène le seuil théorique de 21 à 12 MeV environ.

— L'aire des deux spectres est très différente.

Cette deuxième remarque soulève un problème important, car elle signifie que la probabilité d'émission d'une particule chargée n'est pas la même suivant que le calcul est fait avec la forme exacte de $\sigma(\varepsilon)$ ou avec l'approximation de DOSTROVSKY *et al.* Le rapport des probabilités d'émission neutrons/particules chargées est donc modifié.

Une tentative a été faite par PORILE (53) de faire correspondre les spectres calculés et expérimentaux en choisissant les paramètres c et k de l'expression

$$\sigma(\varepsilon) = \sigma_g (1+c) \left(1 - \frac{kV}{\varepsilon}\right). \tag{12}$$

L'accord est cependant très artificiel car l'équation (12) ne correspond plus aux prévisions théoriques. La fig. 33 montre les courbes de $\sigma(\varepsilon)$ en fonction de ε obtenues selon PORILE et selon la théorie du continuum. En réalité, il faut abandonner l'expression (12) pour laquelle aucune valeur des paramètres c et k n'est vraiment convenable.

2 — COMPETITION — NEUTRON, PROTON, ALPHA

On peut aisément reproduire d'une façon très satisfaisante la courbe $\sigma(\varepsilon)$ théorique, en la décomposant en un certain nombre d'éléments que l'on traduit alors par une expression aussi simple que possible. Dans l'exemple de la fig. 34 nous voyons que de 3,8 à 13 MeV un bon accord est obtenu en remplaçant $\sigma(\varepsilon)$ par des expressions du type $e^{a\varepsilon}$. Au delà de 13 MeV une équation plus simple traduit assez bien le reste de la courbe. On peut alors écrire, après un choix convenable de divers paramètres:

$$
\begin{array}{ll}
3{,}8 \leqslant \varepsilon < 6{,}5 & \sigma_c = \sigma_g\ (4{,}17\ 10^{-5}\ \exp\ (2{,}81\ \varepsilon - 14{,}6)) \\
6{,}5 \leqslant \varepsilon < 9{,}5 & \sigma_c = \sigma_g\ (9\ \ \ 10^{-3}\ \exp\ (1{,}14\ \varepsilon - \ 9{,}17)) \\
9{,}5 \leqslant \varepsilon < 13 & \sigma_c = \sigma_g\ (9{,}5\ \ 10^{-2}\ \exp\ (0{,}38\ \varepsilon - \ 4{,}23)) \\
13 \ \ \leqslant \varepsilon < E - B_p & \sigma_c = \sigma_g\ 0{,}95\ (1 - 10{,}5/\varepsilon)
\end{array}
$$

Pour les particules alpha, nous ne disposons pas dans la région $Z = 80$ de résultats détaillés permettant de tracer $\sigma(\varepsilon)$. Nous avons tourné cette difficulté en interpolant les résultats dont on dispose pour $Z = 70$ et $Z = 90$. La courbe obtenue est alors traitée comme nous l'avons décrit pour les protons. La largeur de niveaux d'émission de protons, par exemple, s'écrit maintenant:

$$
\Gamma_p = Cte \left\{ C_1 \int_{\varepsilon_1}^{\varepsilon_2} \varepsilon.\ \exp\ (C_2\varepsilon - C_3)\ .\omega\ (E - B - \varepsilon)\ d\varepsilon + \ldots \right.
$$

$$
\left. \ldots + C_4 \int_{\varepsilon_4}^{E-B} \varepsilon\ (1 - \frac{C_5}{\varepsilon})\ \omega\ (E - B - \varepsilon)\ d\varepsilon \right\}
$$

Dans le tableau IV nous avons rassemblé tous les coefficients déterminant chacune des expressions utilisées pour les protons et particules alpha avec $r_o = 1{,}3$.

TABLEAU IV

$r_o = 1{,}3$ f

— PROTONS — $\sigma_c / \sigma_g = C_1 \exp(C_2\varepsilon - C_3)$ — ALPHA —

ΔE	C_1	C_2	C_3
4,3 — 6,5	2,02 10^{-5}	2,65	14,21
6,5 — 9,5	2,68 10^{-3}	1,31	10,5
9,5 — 12,6	4,65 10^{-2}	0,553	6,14

ΔE	C_1	C_2	C_3
15,6 — 17,9	7,9 10^{-6}	2	33,2
17,9 — 20,7	4,64 10^{-4}	1,32	25,1
20,7 — 24,3	1,085 10^{-2}	0,69	15,18

$$\sigma_c / \sigma_g = C_4 \, (1 - C_5/\varepsilon)$$

$12{,}6 - (E - B_p)$, $C_4 = 0{,}82$, $C_5 = 11{,}04$ $\qquad$ $24{,}3 - (E - B_\alpha)$, $C_4 = 0{,}89$, $C_5 = 22{,}8$

Les intégrales du type:

$$\int_a^b \exp\,(C_2\varepsilon - C_3) \,.\, \varepsilon \,.\, \omega\,(E - B - \varepsilon)\; d\varepsilon$$

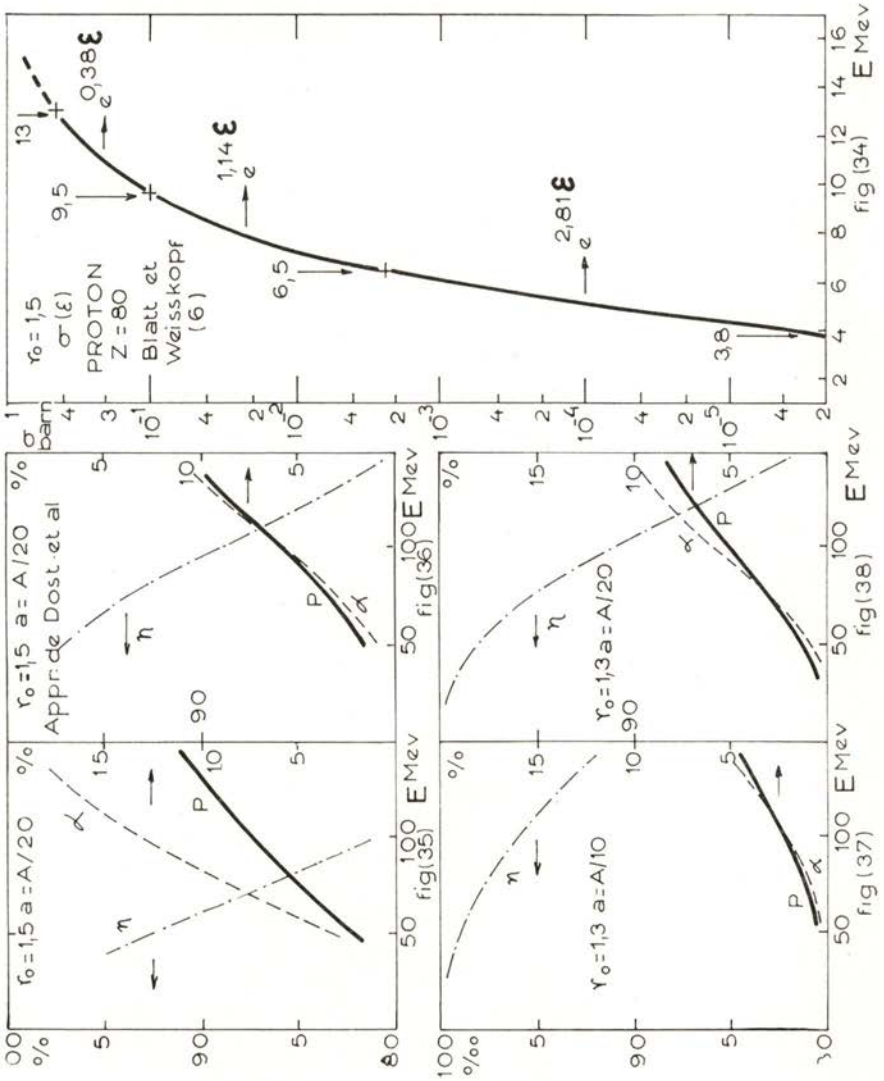
ont été calculées par la méthode de GAUSS, grace à l'utilisation d'une calculatrice UNIVAC 1107.

Nous avons ainsi calculé les probabilités d'émission de protons et alpha en fonction de l'énergie d'excitation, dans le cas du noyau Po^{210}. La probabilité d'émission de neutrons a été calculée comme précedemment. La fig. 35 montre les résultats obtenus par cette méthode, que l'on peut comparer à ceux de la fig. 36, calculés d'après les approximations de DOSTROVSKY *et al.* en utilisant les mêmes paramètres.

Les différences sont particulièrement importantes en ce qui concerne la probabilité d'émission alpha. Ceci s'explique par le fait que l'approximation de DOSTROVSKY *et al.* ne traduit pas la section efficace inverse de cette particule d'une façon aussi satisfaisante que dans le cas des protons. L'augmentation très nette du taux d'émission de particules alpha ne semble pas convenir si nous tenons compte des résultats obtenus au cours du chapitre précédent. Par contre, l'emploi d'un rayon nucléaire plus petit $r_o = 1{,}3$ f améliore très nette-

ment les résultats en ramenant la proportion de particules alpha, en particulier, à un niveau beaucoup plus bas (figs. 37 et 38).

Cette influence est déjà suffisante pour orienter le choix de r_o,



bien qu'elle ne correspond pas à une mesure expérimentale. Nous allons donc reprendre le schéma de calcul exposé dans le chapitre précédent, pour lui apporter les modifications nécessaires à l'inclusion de ces nouvelles approximations.

A — *CALCULS A LA MONTECARLO — NOUVELLES APPROXIMATIONS*

Pour calculer, suivant la méthode déjá décrite, l'énergie cinétique de chaque particule émise au cours de la cascade, nous avons besoin de normaliser son spectre. Or l'approximation que l'on vient d'utiliser se prête difficilement à cette opération. Le maximum de $P(\varepsilon)$ pourrait en effet appartenir, suivant l'énergie d'excitation, à des fonctions différentes. Une bonne solution consiste donc à remplacer $\sigma(\varepsilon)$ par une seule expression, du moins dans toute la zone où, compte tenu des énergies d'excitation en jeu, la probabilité $P(\varepsilon)$ passe par un maximum. Nous avons pour cela cherché une fonction $f(\varepsilon)$ tel que $\exp f(\varepsilon)$ reproduise d'une façon satisfaisante la courbe $\sigma(\varepsilon)$ dans une bande d'énergie dont la borne supérieure dépasse la barrière de potentiel. Avec la condition

$$\sigma(\varepsilon) = \exp f(\varepsilon)$$

on peut tracer point par point $f(\varepsilon)$, dont la forme beaucoup plus simple que celle de $\sigma(\varepsilon)$ est facilement exprimée par une équation du type

$$f(\varepsilon) \sim \sqrt{1 - \frac{(C_1 - \varepsilon)^2}{C_2}}$$

Les divers paramètres choisis, on arrive pour les protons et particules alpha à l'expression générale

$$\sigma(\varepsilon) = C_1 \exp\left(C_2 \sqrt{1 - \frac{(C_3 - \varepsilon)^2}{C_4}} - C_5\right) \tag{13}$$

Pour les grandes valeurs de ε nous avons conservé l'expression déjà utilisée:

$$\sigma(\varepsilon) = C_6\,(1 - C_7/\varepsilon). \tag{14}$$

On trouve rassemblés dans le tableau v les divers paramètres C_1, $C_2, \ldots, C_7$.

TABLEAU V (*)

$r_o = 1{,}3$

	Proton	Alpha
C_1 ..	0,022	0,00202
C_2 ..	13,50	15,45
C_3 ..	19,40	31,00
C_4 ..	225,0	237,0
C_5 ..	10,0	10,0
C_6 ..	1,69	2,29
C_7 ..	11,04	24,00

Les expressions (13) et (14) s'appliquent dans les intervalles suivants:

Expression	Proton	Alpha
(13)	De 4,4 **á** 19,4	De 16 **á** 29
(14)	De 19,4 **á** $E - B_p$	De 29 **á** $E - B_\alpha$

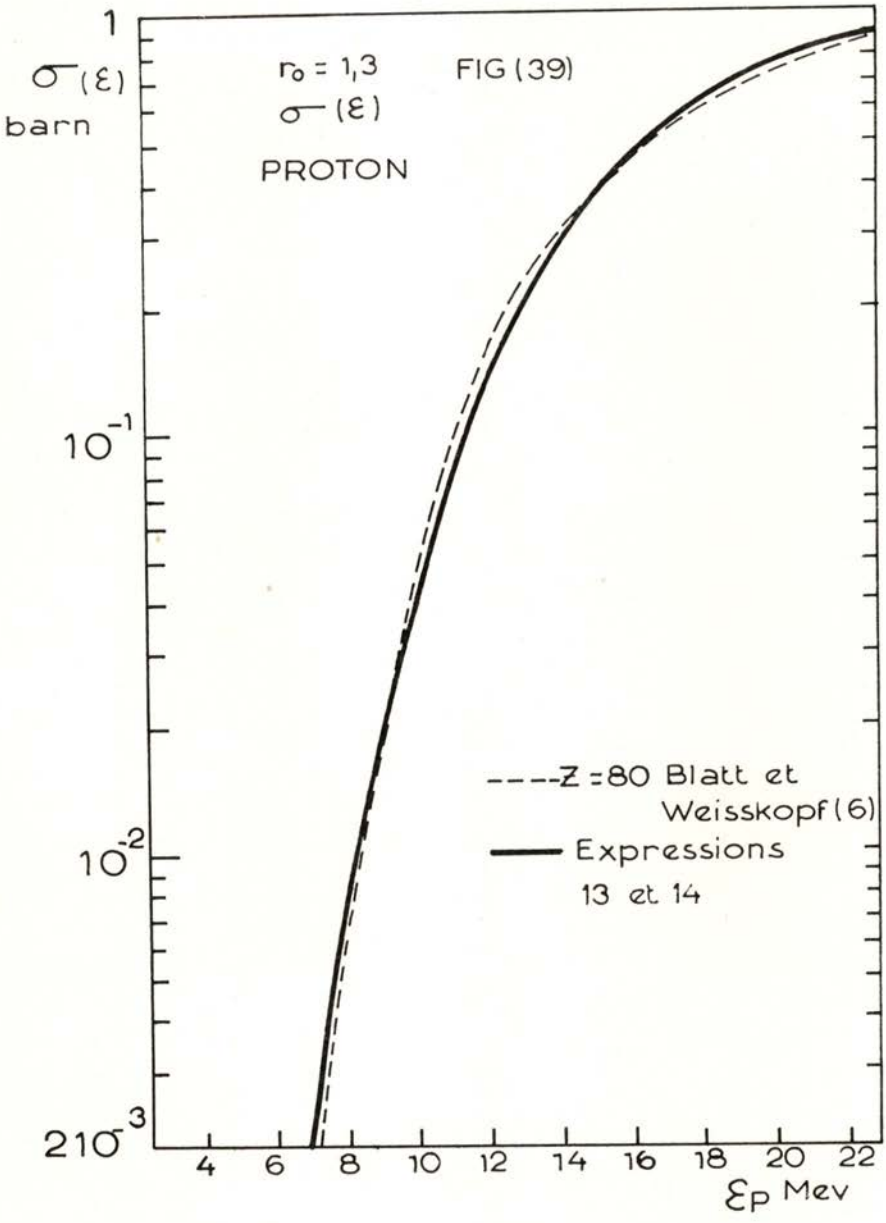
Les figs. 39 et 40 montrent les approximations utilisées, comparées aux résultats de BLATT et WEISSKOPF (23).

Pour les deutons, tritons et héllium 3, nous avons déterminé $\sigma(\varepsilon)$ à partir des résultats pour les protons et alpha. En comparant les courbes $\sigma(\varepsilon)$ pour protons et deutrons, nous voyons que l'approximation qui consiste à prendre

$$\sigma_d(\varepsilon) \sim 1{,}6\ \sigma_p(\varepsilon)$$

est satisfaisante dans toute la région où $\sigma(\varepsilon)$ joue un rôle important (fig. 41).

(*) Avec ces paramètres, les expressions 13 et 14 donnent $\sigma(\varepsilon)$ en barn.


1
σ (ε)
barn
r_0 = 1,3
σ (ε)
PROTON
FIG (39)
10^{-1}
10^{-2}
$2 10^{-3}$
----Z =80 Blatt et Weisskopf (6)
Expressions 13 et 14
4 6 8 10 12 14 16 18 20 22
ε_p Mev

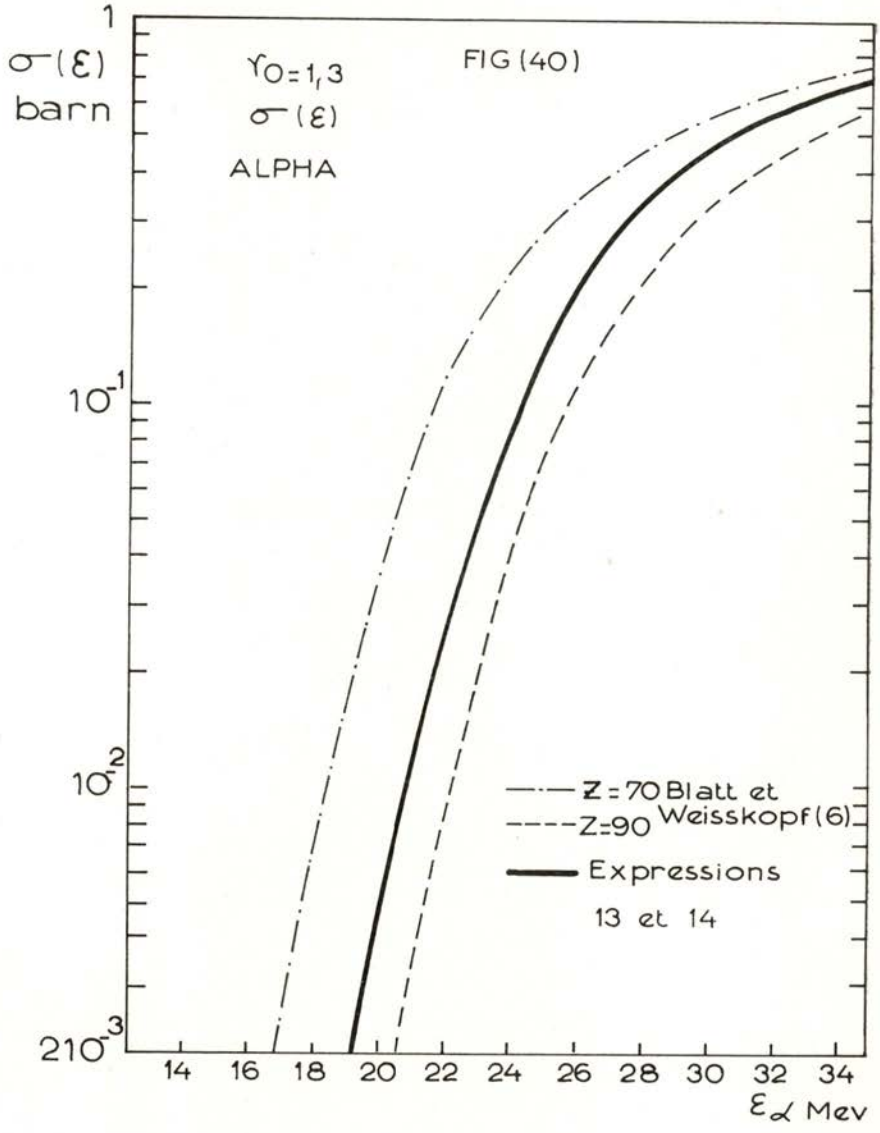
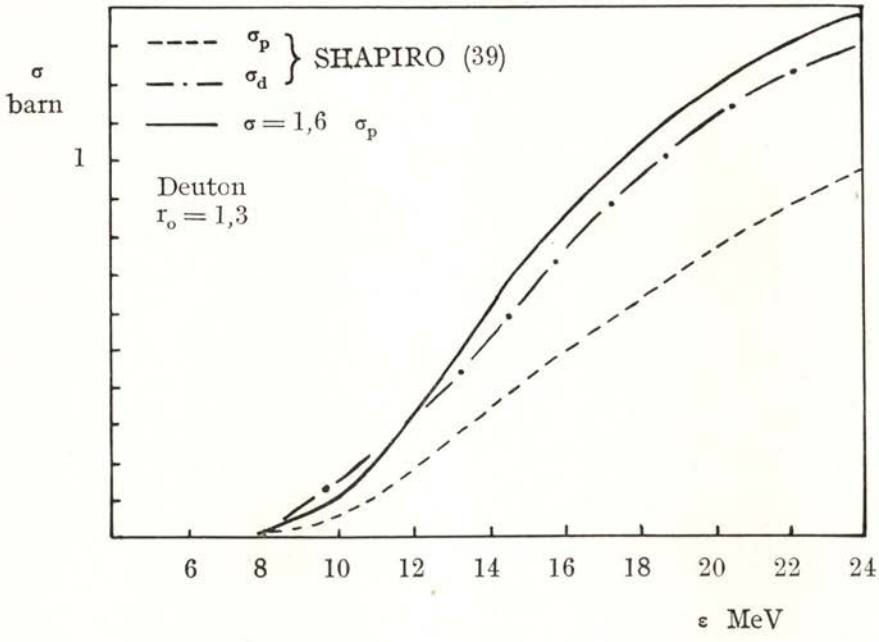

1
σ(ε)
barn
FIG (40)
$r_0 = 1,3$
σ(ε)
ALPHA
10^{-1}
10^{-2}
$2 10^{-3}$
Z = 70 Blatt et
Z=90 Weisskopf (6)
Expressions
13 et 14
14 16 18 20 22 24 26 28 30 32 34
ε_α Mev

FIG (41)



Pour les tritons, nous avons utilisé le même résultat faute de renseignements précis. Finalement, pour l'héllium 3 nous avons pris

$$\sigma_{He3}(\varepsilon) = \sigma_{\alpha}(\varepsilon).$$

Même si l'approximation n'est pas très bonne, on n'introduit qu'une erreur négligeable car l'émission d'héllium 3 est très peu fréquente. Les $\sigma(\varepsilon)$ se trouvant dans tous les cas décomposées en deux parties, les largeurs de niveau s'écrivent:

$$\Gamma = Cte\left\{ C_1 \int_{\varepsilon_1}^{\varepsilon_2} \varepsilon \exp\left(C_2 \sqrt{1 - \frac{(C_3 - \varepsilon)^2}{C_4}} - C_5\right) \omega(E - B - \varepsilon)\, d\varepsilon + \right.$$

$$\left. + C_6 \int_{\varepsilon_2}^{E-B} \varepsilon\,(1 - C_7/\varepsilon)\, \omega(E - B - \varepsilon)\, d\varepsilon \right\}$$

La première de ces deux intégrales a été calculée, comme précédemment, à l'aide d'une calculatrice. Le deuxième terme est intégrable analytiquement et donne:

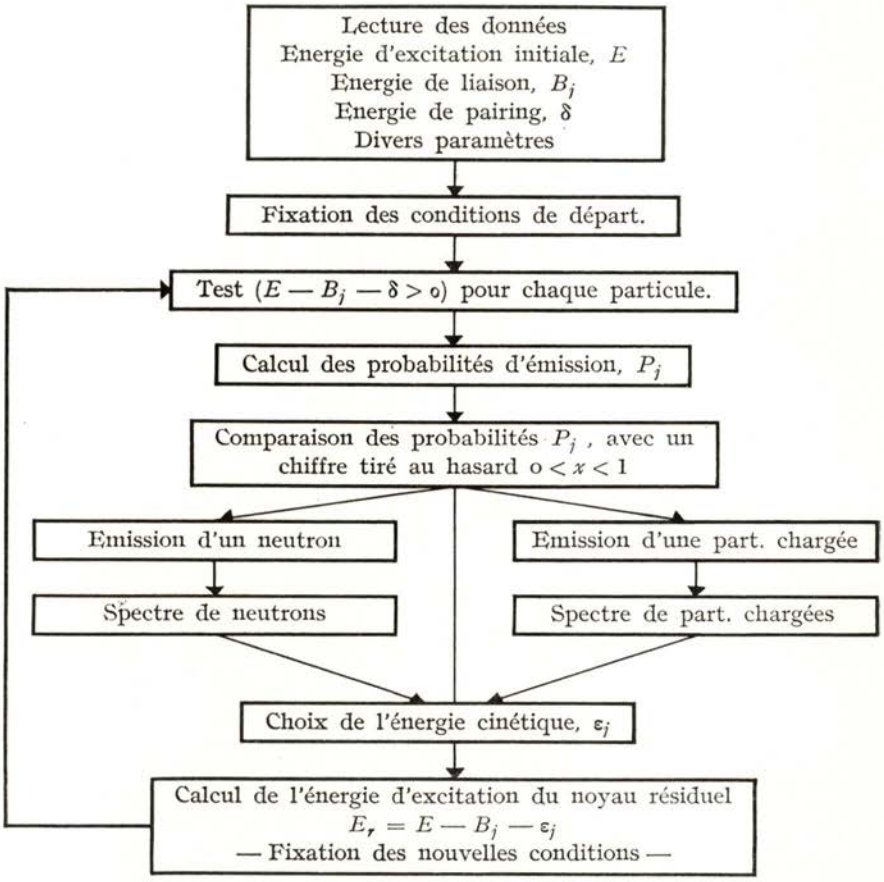
$$\int_{\varepsilon_2}^{E-B} \varepsilon(1 - C_7/\varepsilon)\omega(E - B - \varepsilon)\, d\varepsilon = \frac{1}{2a^2} e^{2\sqrt{aR}} \left\{ 3aR - 2\,(\sqrt{aR})^3 - aR_1 \right.$$

$$\left. + aR_1 + \sqrt{aR}\,(2aR_1 - 3) + 1{,}5 \right\} + aR - 1{,}5, \quad \text{ou}$$

$$R = E - B - \varepsilon_2 \qquad \text{et} \qquad R_1 = E - B - C_7$$

Reste à normaliser $P(\varepsilon)$. La condition $P'(\varepsilon) = 0$ conduit à une équation du sixième degré que nous avons résolue par la méthode de NEWTON. On est ainsi conduit à une valeur ε_r, dont la condition $P'(\varepsilon_r) < 0{,}001$ garantit une bonne approximation de la valeur exacte de la racine.

ORGANIGRAMME SCHEMATISE (*)



(*) Le programme, écrit en langage FORTRAN, comprend 393 instructions.

B — *COMPARAISON DES APPROXIMATIONS PROPOSEES AVEC L'EXPERIENCE*

1 — REACTIONS (p, xn) SUR LE BISMUTH

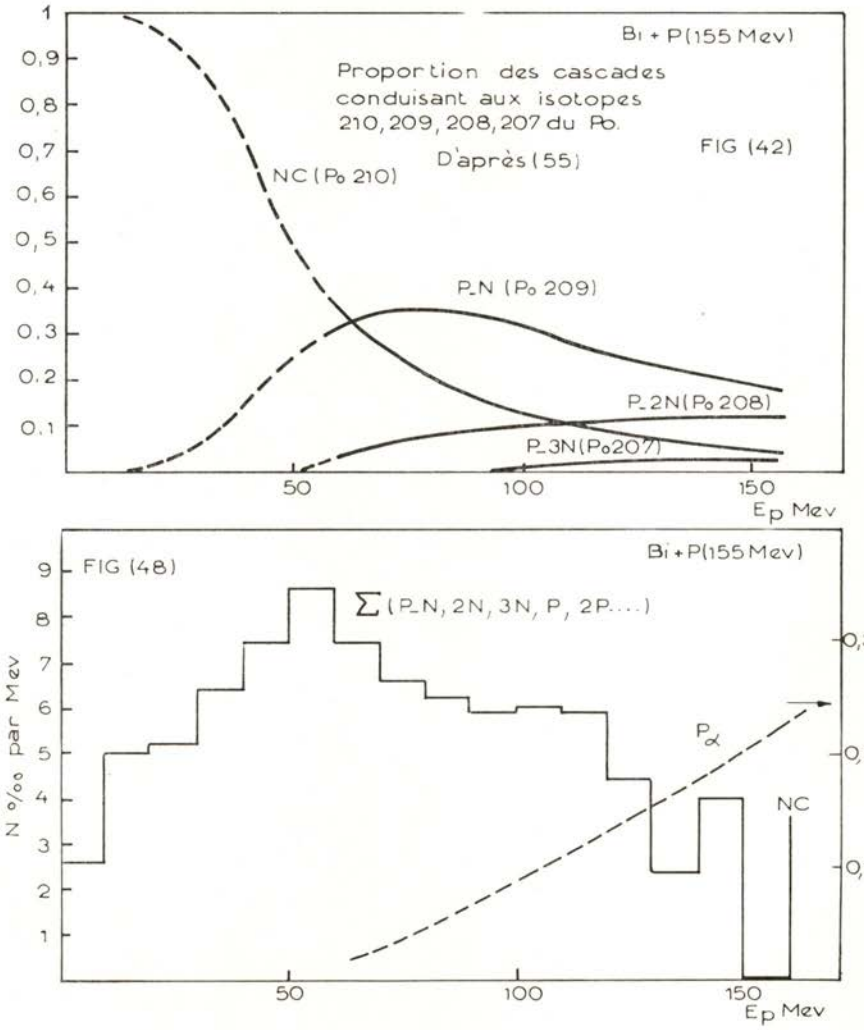
Après avoir modifié notre programme, compte tenu des nouvelles approximations, nous avons recalculé les sections efficaces des différents isotopes du polonium.

La valeur du paramètre a a été choisie d'après les indications recueillies au cours du chapitre précédent. Ces indications restent en effet valables car les modifications apportées n'affectent pas le spectre des neutrons émis, et doivent donc laisser inchangée la place en énergie des courbes $[P(E, j)]$. Nous avons donc retenu la valeur $a = 15$. Nous avons pensé examiner l'influence de la parité des nucléons en appliquant soit la méthode décrite par HURWITZ *et al.* (26), soit celle de WEISSKOPF *et al.* (37) [chapitre III]. Nous avons constaté dans les deux cas une augmentation du taux d'émission de particules chargées. Cette augmentation est plus prononcée lorsque la densité de niveaux est modifiée par le coefficient pré-exponentiel que lorsqu'on déplace le niveau fondamental par le terme d'énergie de «pairing».

Compte tenu de ce résultat, nous avons préféré utiliser la solution proposée par HURWITZ *et al.* (26) et, comme dans le chapitre II, les valeurs de δ tabulées par CAMERON (27) ont été utilisées.

Pour cette dernière comparaison avec l'expérience, nous avons essayé d'obtenir un ensemble de données assez précises concernant la proportion des diverses cascades d'interaction directe conduisant aux isotopes du polonium. On peut constater, parmi l'ensemble de résultats dont on dispose aujourd'hui, une très forte disparité dans l'importance attribuée à chacun des processus en question. On remarquera en particulier que les données les plus récentes (5, 54) issues d'un modèle qui semble plus élaboré que celui qui est à l'origine des résultats de METROPOLIS *et al.* attribuent à la formation d'un noyau composé une importance qui se traduit par des sections efficaces des réactions (p, xn) beaucoup trop élevées par rapport aux valeurs expérimentales. Nous avons finalement choisi, en vue de pouvoir comparer entre eux, sur une base commune, les résultats obtenus au cours des chapitres précédents, des données de calcul basées sur la méthode de METROPOLIS *et al.*. Les résultats détaillés pour des énergies de proton incident de 57, 77, 95, 117 et 155 MeV nous ont été communiqués par GRADSZTAJN (55), que nous tenons à remercier vivement.

Nous voyons sur la fig. 42 la variation en fonction de l'énergie de l'importance de chaque type de cascade conduisant aux isotopes du polonium de masse 210, 209, 208 et 207.



On enregistre cependant par rapport aux données de METROPOLIS *et al.* une diminution sensible de l'ensemble de ces cascades. Ceci est dû à l'adoption, par GRADSZTAJN, d'un seuil d'émission plus bas pour les neutrons que pour les protons. A partir de ces résultats, on a pu calculer, d'une part, à 155 MeV la section efficace des isotopes de masse 208 à 196 et, d'autre part, la variation en fonction de l'énergie des

rendements de formation des isotopes 204, 203, 202 et 201. Nous voyons sur la fig. 43 le premier de ces résultats, comparé aux données expérimentales.

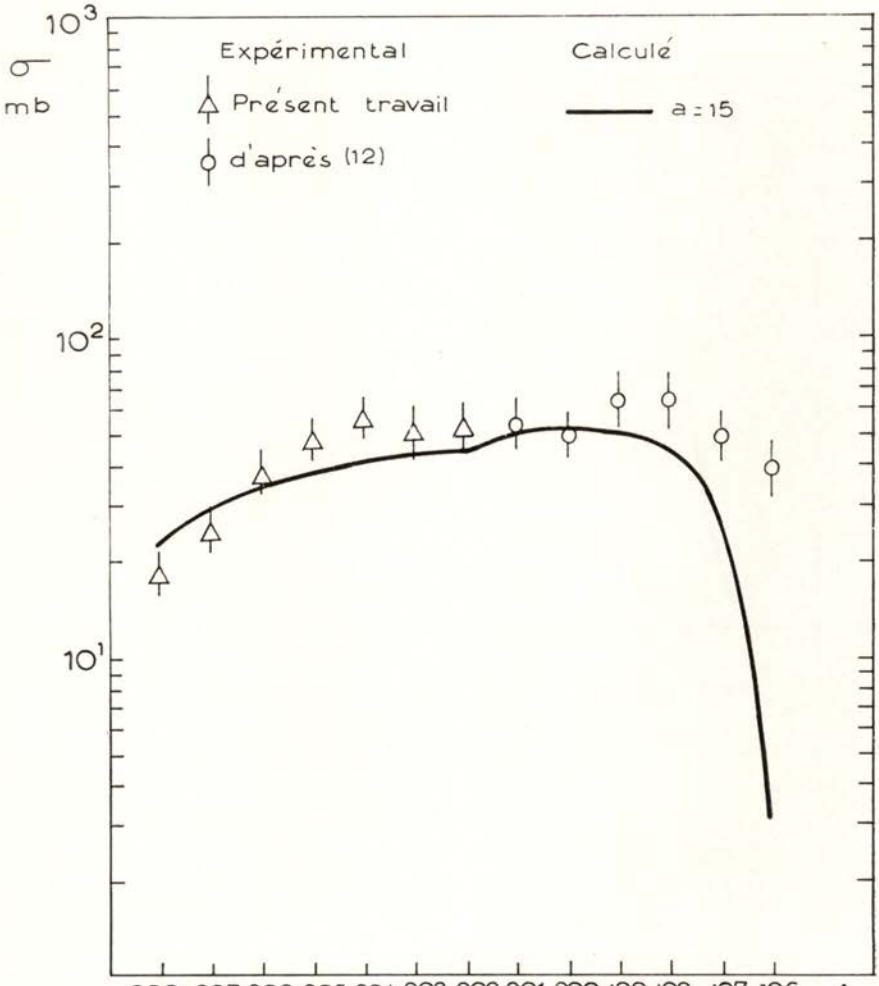
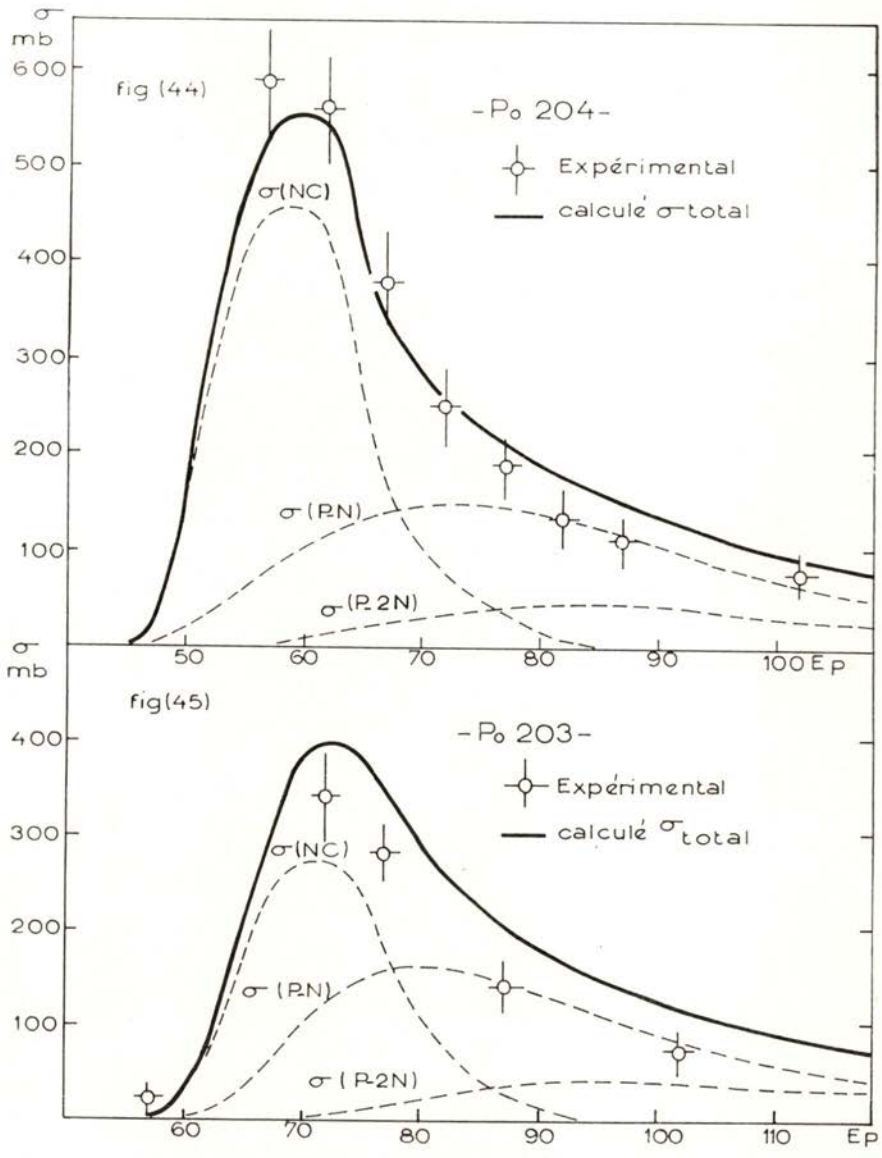


FIG (43)

L'accord est satisfaisant jusqu'à l'isotope 199. Les points expérimentaux obtenus pour les isotopes 198, 197 et 196 ne peuvent guère avoir de signification du point de vue des valeurs absolues, car les valeurs des sections efficaces n'ont pu être données qu'en supposant certaines proportions de désintégrations par émission α, proportions elles-mêmes évaluées pour placer les fonctions d'excitation de ces trois isotopes aux mêmes niveaux que celles des isotopes précédents.

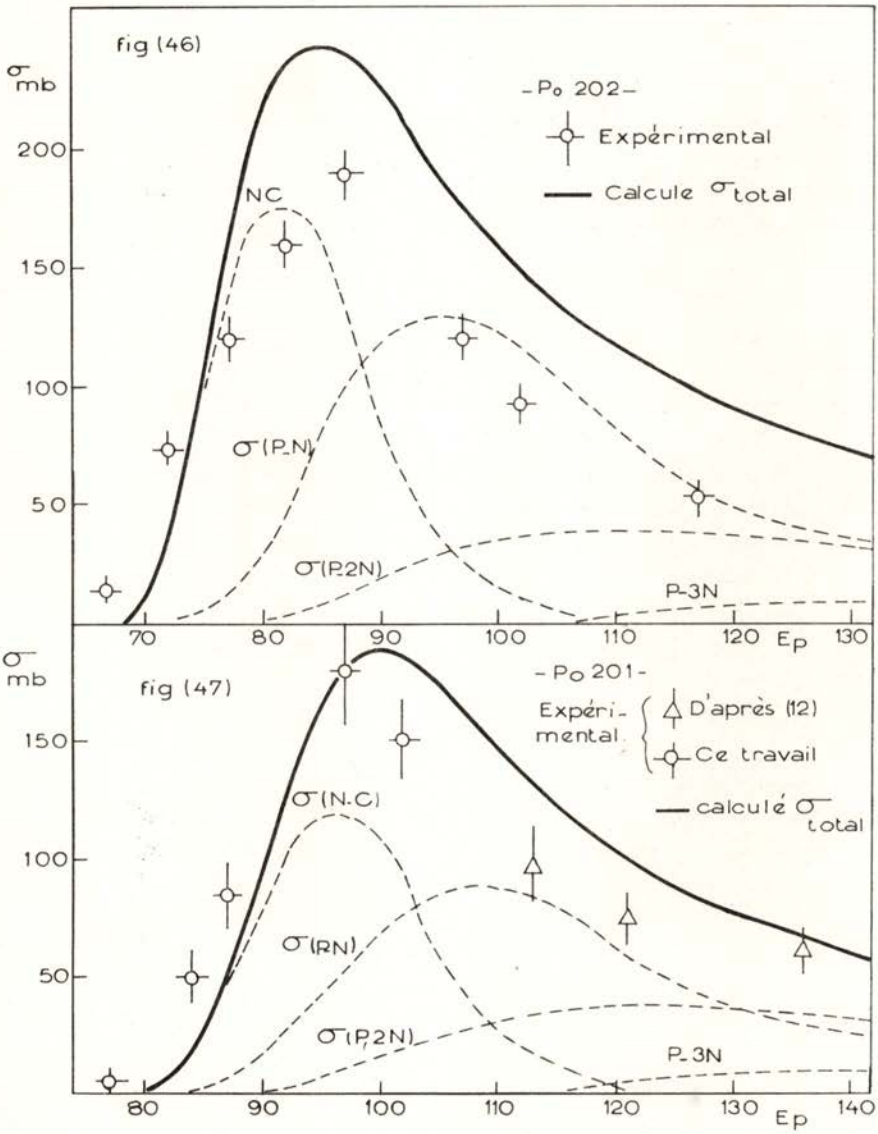
Il est donc fort possible qu'en réalité, les sections efficaces absolues soient plus faibles que ce qui est indiqué. Des expériences précisant



les schémas de désintégration des isotopes légers des polonium devraient permettre de préciser cette question (56).

Sur les figs. 44, 45, 46 et 47 nous voyons les résultats obtenus pour les quatre isotopes déjà mentionnés. Nous pouvons noter pour

chacun d'eux, et en fonction de l'énergie, la contribution à la section efficace totale des différents types de cascades.



On peut, en particulier, remarquer comment l'importance relative des sections efficaces $\sigma\,(NC)$ et $\sigma\,(PN)$ varie de l'isotope 204 à l'isotope 201. On constatera aussi que le maximum de σ_t s'éloigne de plus en plus du maximum de la contribution du noyau composé, en raison de

l'apport croissant de la cascade *P-N*. Cette remarque est importante dans le cas où l'on veut tenter une estimation de la température nucléaire, par exemple, par l'énergie séparant deux fonctions d'excitation successives.

L'accord entre valeurs calculées et expérimentales que l'on retrouve ici paraît justifier le choix des paramètres que nous avons faits et semble aussi constituer un argument raisonnable en faveur de l'idée suivant laquelle la formation d'un noyau composé serait un processus dont l'importance serait voisine de celle indiquée par les calculs d'interaction directe que nous avons utilisés.

2 — L'EMISSION DE PARTICULES CHARGEES

2.1 — *Section efficace d'évaporation de particules alpha*

Nous avons calculé à 155 MeV la section efficace d'évaporation de particules alpha, en tenant compte du spectre d'énergie de tous les noyaux issus de la phase d'interaction directe. Ces noyaux sont, dans la presque totalité, des isotopes du polonium et du bismuth (les cascades (p,2PxN) ne représentent que 6% environ des événements). Nous pouvons donc définir, avec une bonne approximation, une probabilité moyenne d'évaporation de particules alpha, sachant qu'une différence d'une ou deux unités dans le nombre atomique n'entraîne pas des variations sensibles dans les réactions efficaces inverses. Nous voyons sur la fig. 48 d'une part, la distribution globale des énergies des différents noyaux résiduels et, d'autre part, la variation en fonction de l'énergie de la probabilité d'émission d'une particule alpha. La section efficace de cette particule se calculant d'une façon analogue à celle des différents isotopes, on peut constater, en examinant la fig. 47, que le résultat que l'on obtiendra ici doit être relativement peu sensible aux variations de la proportion de chaque cascade. La valeur calculée est de 85 mb environ. La détermination expérimentale faite par DUBOST et al. (9) à partir du spectre des particules émises à 160°, conduit à une section efficace de 45 ± 7 mb pour les bismuth, mais 72 ± 10 mb pour l'or. Le désaccord entre les valeurs expérimentales et calculées concernant le bismuth dépasse nettement l'importance des imprécisions du calcul, même compte tenu des approximations faites sur la section efficace inverse. Par contre, en raison des valeurs moins négatives des énergies de liaison des structures α dans l'or que dans le bismuth, on peut estimer que la

probabilité d'émission α pour les noyaux d'or est un peu plus faible que pour ceux de *Bi* (la barrière coulombienne ne diffère en effet que d'environ 3%). Il apparaît donc que, pour l'or, l'accord théorie-expérience est raisonnable, mais qu'en réalité le calcul n'est pas en mesure d'expliquer la diminution très importante de section efficace d'évaporation signalée par DUBOST *et al.* (9) lorsqu'on passe de *Au* à *Bi* (72 ± 10 à 47 ± 7 mb).

Nous pouvons chercher une signification pour ce désaccord en remarquant l'abondance d'isotopes possédant un nombre de neutrons ou de protons magiques, qui peuplent la région de nombre de masse allant de 200 à 210 (Po^{210}, Bi^{209}, Pb_{82}). Nous devons nous attendre en effet à ce que la densité de niveaux plus basse caractérisant ces isotopes soit à l'origine d'une diminution de la probabilité de l'émission de particules qui conduit à ces noyaux résiduels. En particulier, l'émission de particules α à partir d'un noyau de polonium conduit à un élément, le plomb, dont tous les isotopes sont magiques en protons. Cette circonstance va défavoriser l'émission des particules α par rapport à l'émission d'un neutron. L'influence des couches magiques sur la densité de niveaux a été étudiée par NEWTON (56), qui propose d'en tenir compte à travers le paramètre a. On peut, à partir des éléments fournis par cet auteur, calculer la valeur de a intéressant les isotopes issus de l'émission d'une particule alpha et ceux issus d'un neutron à partir des noyaux de Hg^{198} et Po^{210}. On trouve ces valeurs rassemblées dans le tableau VI.

TABLEAU VI

Noyau de départ	a	Noyau issu de l'émission d'un neutron	a_n	Noyau issu de l'émission d'un alpha	a_α
Polonium 210	16,2	Polonium 209	14,9	Plomb 206	10,5
Mercure 198	14,4	Mercure 197	15,7	Platine 194	17,4

L'écart entre les valeurs a_n et a_α, dans les deux cas, montre qu'à partir du Hg^{198} l'émission d'une particule alpha se trouve plus favorisée par rapport à l'émission d'un neutron qu'à partir du Po^{210}. Cependant, un calcul mené avec ces conditions conduit à des effets beaucoup trop importants.

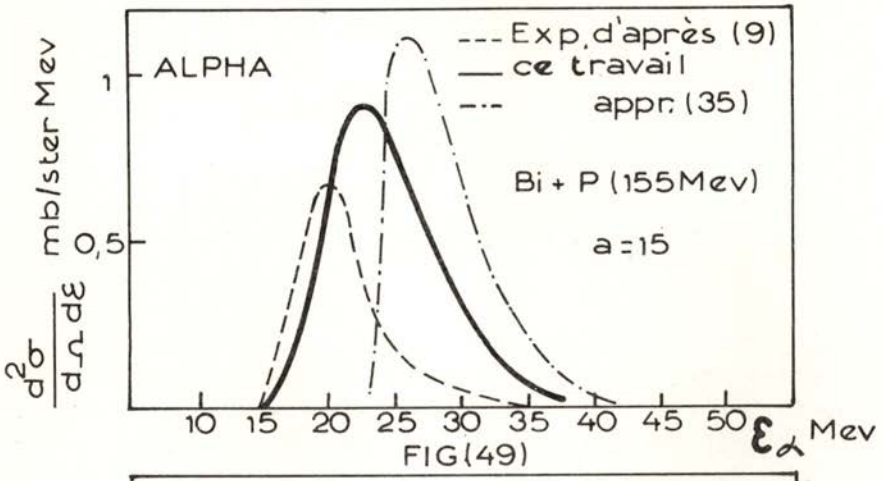
La probabilité d'émission alpha devient trop élevée dans le mercure et pratiquement négligeable dans le polonium.

La courbe indiquant la variation du paramètre a en fonction de N et Z a été construite essentiellement d'après des données obtenues à basse énergie dans le domaine d'absorption des neutrons et pour des isotopes très voisins de la stabilité. Une enérgie d'excitation beaucoup plus élevée a probablement tendance à masquer les écarts entre a_n et a_α.

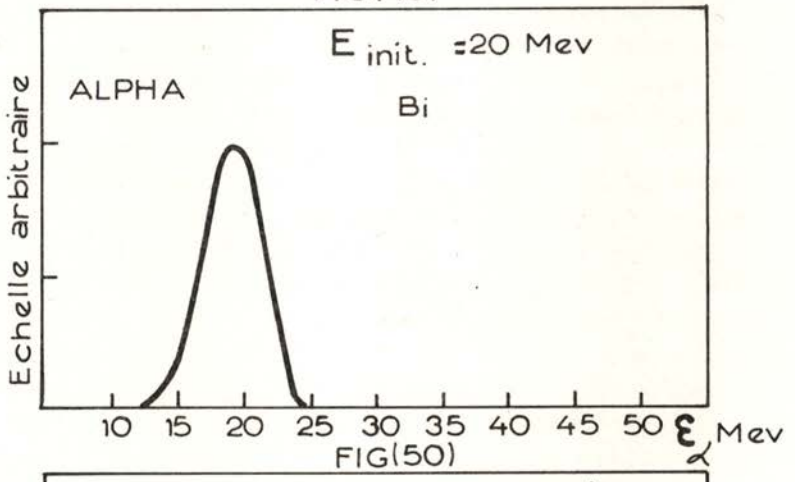
2.2 — *Spectres d'énergie*

Comme dans le précédent chapitre, nous avons enregistré l'énergie cinétique des diverses particules émises au cours de la désexcitation des différents noyaux issus de l'interaction directe. Nous sommes donc en mesure de vérifier, par comparaison avec l'expérience, les approximations utilisées pour les sections efficaces inverses. Sur la fig. 49 nous voyons, d'une part, le spectre expérimental de DUBOST *et al.* (9) et, d'autre part, les distributions en énergie, calculées suivant les méthodes exposées au cours des deux derniers chapitres. Nous pouvons constater l'amélioration importante que l'on obtient en utilisant une bonne approximation pour la section efficace inverse $\sigma(\varepsilon)$, malgré la diminution intervenue dans la valeur de r_o. Si le seuil expérimental est bien expliqué, le maximum est déplacé de 2 à 3 MeV. Nous avons constaté que l'emplacement de ce maximum, ainsi que du seuil, peut être sensiblement déplacé si l'on fait intervenir des noyaux émetteurs ayant des énergies d'excitation plus basses. Nous pouvons constater expérimentalement cette remarque en comparant sur le bismuth les distributions expérimentales obtenues à 155 MeV (9) avec celles obtenues par MUTO *et al.* (8) avec des protons de 56 MeV ($\theta = 150^o$). Malgré la statistique relativement pauvre de ces derniers résultats aux alentours du maximum, il semble qu'il se situe en peu plus bas que celui de DUBOST *et al.*. L'emplacement plus bas du seuil est, par contre, assez net (~ 13 MeV). Le calcul rend assez bien compte de ces différences (fig. 50) que l'on peut associer à la variation plus rapide de la densité de niveaux au cours de la désexcitation des noyaux de bismuth disposant d'une énergie d'excitation plus basse.

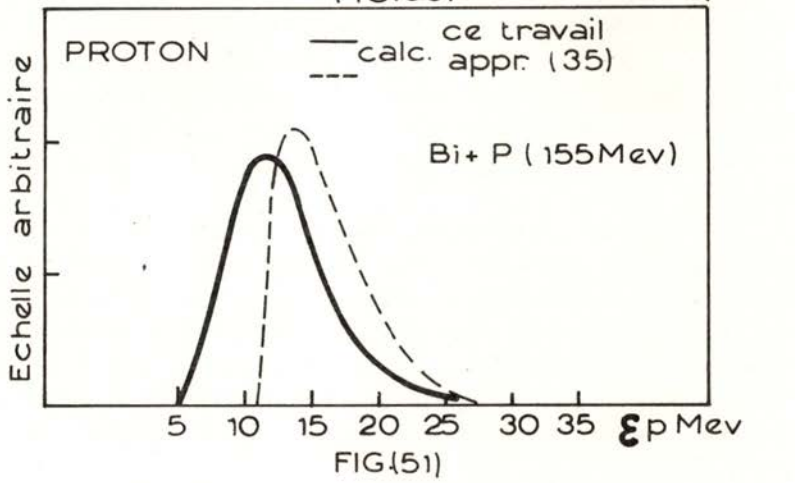
Dans le cas des protons, enfin, et par rapport à l'approximation de DOSTROVSKY *et al.*, l'amélioration apportée pour l'emplacement des spectres de protons est aussi importante que dans le cas précédent (fig. 51).



FIG(49)



FIG(50)



FIG(51)

RÉSUMÉ ET CONCLUSIONS

Le formalisme du modèle statistique a été appliqué à l'étude de la désexcitation des noyaux lourds issus du bombardement de bismuth et d'or par protons d'énergies comprises entre 60 et 155 MeV. Deux types de résultats expérimentaux ont été utilisés pour vérifier la validité des hypothèses servant de base à ces calculs: d'une part, les rendements de formation des isotopes du polonium par réactions (p, xn) induites dans le bismuth; d'autre part, la distribution en énergie des particules alpha émises de façon isotrope dans le centre de masse à partir de cibles de bismuth et d'or. Cette émission isotrope doit être attribuée à un processus d'évaporation et permet donc de vérifier le stade de désexcitation par évaporation de neutrons qui contribue à la production des polonium par réactions (p, xn).

Dans une première étape, la méthode de calcul utilisée pour atteindre la probabilité d'évaporation de x neutrons à partir d'une énergie d'excitation E a été celle de JACKSON. Cette approximation reste valable lorsque le nombre de neutrons évaporés ne dépasse pas 6 ou 7, c'est-à-dire, quand l'énergie d'excitation disponible reste inférieure à 70 MeV environ. Au-delà de cette énergie, la compétition neutrons-particules chargées devient trop importante pour que l'approximation qui consiste à les négliger soit suffisante.

La compétition neutrons-particules chargées a ensuite été étudiée par la méthode de Montécarlo, ce qui conduit à une très nette amélioration de l'accord entre les sections efficaces théoriques et expérimentales.

Nous avons, d'autre part, calculé les spectres en énergie de ces particules, dont celui des particules alpha, qui a été comparé aux distributions expérimentales. Cette comparaison a mis en évidence un désaccord très important dans la place des seuils respectifs. Le désaccord a été réduit si l'on fait intervenir dans le calcul la déformation du noyau excité émetteur. L'amélioration ainsi apportée semble indiquer que ce phénomène doit jouer un rôle correctif non négligeable.

L'écart théorie-expérience reste cependant significatif. En réexaminant les approximations habituellement utilisées pour exprimer analytiquement, sous une forme simple, la section efficace inverse, on a trouvé que l'émission de particules d'énergie très inférieure à la barrière coulombienne, négligée dans les approximations citées, a lieu avec une probabilité importante en raison du rôle amplificateur de la densité de niveaux. De nouvelles approximations sont proposées qui conduisent à réexaminer, d'une part, la compétition neutrons--particules chargées et, d'autre part, le calcul des rendements de formation des isotopes du polonium.

A l'aide de cette nouvelle méthode, trois séries de résultats ont été obtenues:

1.º — La place en énergie du spectre de particules alpha est expliquée d'une façon satisfaisante.

2.º — On constate également un accord raisonnable pour la section efficace totale d'évaporation de l'or, mais par contre une valeur nettement plus élevée que le résultat expérimental pour le bismuth. La théorie convient donc pour *Au* et est en défaut pour le noyau pourtant très voisin de bismuth. La signification de cet écart a été recherchée dans l'influence des couches magiques sur les densités de niveaux.

3.º — Avec un choix normal d'une seule valeur du paramètre de rayon nucléaire $r_o = 1{,}3$ f, aussi bien pour la section efficace de formation du noyau composé que pour la section efficace du processus inverse, on calcule une probabilité d'émission de particules chargées qui, introduite dans le calcul des rendements de formation des isotopes de polonium par réaction (p, xn) permet de rendre compte de façon satisfaisante des sections efficaces mesurées expérimentalement pour ces isotopes. L'accord obtenu ainsi semble indiquer que le choix des paramètres pris dans le calcul d'évaporation est convenable et que les résultats des cascades d'interaction directe fondés sur un modèle simples comme celui de METROPOLIS *et al.* sont suffisants. En particulier, la proportion de noyau composé calculée ainsi convient mieux que celle, beaucoup plus grande, qui résulte des calculs d'interaction directe plus récents effectués en partant d'un modèle plus élaboré.

Ce travail a été réalisé au Laboratoire Joliot-Curie de Physique Nucléaire de la Faculté des Sciences de Paris (Orsay), dont le directeur, Monsieur le Professeur TEILLAC, a bien voulu m'accueillir. Je l'en remercie très vivement.

J'exprime ma très grande reconnaissance à Monsieur le Professeur LEFORT, qui m'a initié à la recherche et a dirigé ce travail, et dont les nombreux conseils, ainsi que son aide constante et amicale, m'a permis de mener à bien cette étude.

Je tiens à remercier vivement Monsieur TARRAGO, Maitre de Recherches, pour l'aide active qu'il m'a apportée à la partie expérimentale de ce travail.

Je remercie également Madame BRUN, qui m'a rendu amicalement de nombreux services.

Mes cordiaux remerciements vont aussi à Mademoiselle SAMARAN pour l'aide qu'elle m'a apportée dans l'élaboration des programmes de calcul.

Je voudrais enfin associer à mes remerciements tous les Travailleurs du Laboratoire et, en particulier, l'équipe de conduite du Synchrocyclotron, ainsi que le personnel du Centre de Calcul.

Je dois enfin souligner que c'est grâce à une bourse accordée par le Gouvernement Portugais (Instituto de Alta Cultura) que mon séjour à Paris a été rendu possible.

BIBLIOGRAPHIE

(1) SERBER, R. — *Phys. Rev.*, 72, 1114, 1947.
(2) METROPOLIS, N., BIVINS, R., STORM, M., TURKEVICH, A., MILLER, J. M., et FRIEDLANDER, F. G. — *Phys. Rev.*, 110, 185, 1958.
(3) CHEN, H., FRAENKEL Z., FRIEDLANDER, F. G., MILLER, J. M., et SHIMOMOTO, Y. — A publier.
(4) GOLDBERGER, M. L. — *Phys. Rev.*, 74, 1268, 1948.
(5) FRAENKEL, Z., et MILLER, J. M. — Communications privées.
(6) WEISSKOPF, V. — *Phys. Rev.*, 52, 295, 1937.
(7) LEFORT, M., SIMONOFF, G., et TARRAGO, X. — *J. de Phys.*, 24, 833, 1963.
(8) MUTO, J., ITOLH, H., OKAMO, K., SHIONI, N., FUKUDA, K., OMORI, Y., et KIHARA, M. — *Nucl. Phys.*, 47, 19, 1963.
(9) DUBOST, H., LEFORT, M., PETER, J., et TARRAGO, X. — *Phys. Rev.* (sous presse).
(10) LE BEYEC, Y. — Diplome d'Etudes Sup., Orsay 1963.
(11) LE BEYEC, Y., LEFORT, M., et TARRAGO, X. — *J. de Phys.*, 24, 157 A, 1963.
(12) BRUN, C., LEFORT, M., et TARRAGO, X.—*J. de Phys.*, 23, 371, 1962.
(13) SKARSGARD, H. M., et BELL, R. E. — *Can. J. of Phys.*, 34, 745, 1956.
(14) LE BEYEC, Y. — Thèse en préparation.
(15) BELAIEV, B. N., KALIAMIN, A. V., et MURIN, A. N. — *Dok, Akad· Sci.* 140, 337, 1961.
(16) BRUN, C., et LEFORT, M. — *J. In. Nu. Chem.*, 26, 1633, 1964.
(17) KARRAKER, D. G., et TEMPLETON, D. H. — *Phys. Rev.*, 83, 390, 1951.
(18) *NUCLEAR DATA SHEETS.*
(19) GROFT, W. L., PETTERSON, B. G., et HAMILTON, J. H. — *Nucl. Phys.* 48, 267, 1963.
(20) JACKSON, J. D. — *Can. J. of Phys.*, 34, 767, 1956.
(21) SEEGER, P. A. — *Nucl. Phys*,. 25, 1, 1961.
(22) TARRAGO, X. — *J. Phys.*, 1, 23, 1962.

(23) BLATT, J., et WEISSKOPF, V. F. — *Theoritical Nuclear Physics*, John Wiley & Sons, Inc., New-York, 1952.
(24) SIMONOFF, G. — Thèse, Paris, 1961.
(25) BEARD, D. B. — *Phys. Rev. Lett.*, 3, 342, 1959.
(26) HURWITZ, H., et BETHE, H. A. — *Phys. Rev.*, 89, 898, 1951.
(27) CAMERON, A. G. W. — *Can. J. of Phys.*, 36, 1040, 1958.
(28) MC MANUS, H., SHARP, W. T., et GELLMAN, H. — *Phys. Rev.*, 5, 76, 1950.
(29) FUJIMOTO, Y., et YAMAGUCHI, Y. — *Proc. of Theor. Phys.*, 5, 76, 1950.
(30) SWIATECKI, W. — Communication privée.
(31) VANDENBOSCH, R., et SEABORG, G. T. — *Phys. Rev.*, 110, 507, 1958.
(32) KOWALSKI, L. — Thèse, Paris, 1962.
(33) KAVANGH, T. M., et BELL, R. E. — *Can. J. of Phys.*, 39, 1172, 1961.
(34) RAO, C. L., et YAFFE, L. — *Can. J. of Chem.*, 41, 2516, 1963.
(35) DOSTROVSKY, I., FRAENKEL, Z., et FRIEDLANDER, F. G. — *Phys. Rev.* 116., 683, 1960.
(36) BETHE, H. A. — *Rev. of Mod. Phys.*, 9, 69, 1937.
(37) WEISSKOPF, V. F., et EWIG, D. H. — *Phys. Rev.*, 57, 472, 1940.
(38) LE COUTEUR, K. J. — *Proc. Phys. Soc.*, *A* 63, 259, 1950.
(39) SHAPIRO, M. M. — *Phys. Rev.*, 90, 171, 1953.
(40) HOFSTADTER, D. G. — *Rev. Mod. Phys.*, 30, 430, 1958.
(41) CARETTO, A. A., et WIIG, E. O. — *Phys. Rev.*, 115, 1238, 1959.
(42) POFFE, N. — Thèse, Paris, 1964.
(43) ALEXANDER, J., et SIMONOFF, G. — *Phys. Rev.*, 130, 2383, 1963.
(44) GRADSZTAJN, E. — *J. de Phys.*, 24, 829, 1963.
(45) KELLY, E. L. — Non publié.
(46) DOSTROVSKY, I., FRAENKEL, Z., et WINSBERG — *Phys. Rev.*, 118, 781, 1960.
(47) SCOTT, J. M. C. — *Phys. Mag.*, 45, 441, 1949.
(48) EVANS, J. A. — *Proc. Phys. Soc.*, 73, 33, 1959.
(49) BAGGE, E. — *Ann. der Phys.*, 33, 389, 1938.
(50) SILVEIRA, R. da — *Compt. Rend.*, 256, 4192, 1963.
(51) SILVEIRA, R. da — *Phys. Lett.*, 9, 252, 1964.
(52) HILL, D., et WHEELER, J. — *Phys. Rev.*, 89, 1102, 1953.
(53) PORILE, N. T. — *Phys. Rev.*, 135, B 371, 1964.
(54) COHEN, J. P. — *Phys. Lett.* A paraître.
(55) GRADSZTAJN, E. — Communication privée.
(56) BRUN, C., LE BEYEC, Y., et LEFORT M. — Travaux en cours.
(57) NEWTON, T. D. — *Can. J. of Phys.*, 34, 804, 1956.

TABLE DES MATIÈRES

page

INTRODUCTION 33

CHAPITRE I — METHODES EXPERIMENTALES ET RESULTATS

A — Conditions d'irradiation 37
B — Appareillages de mesure 39
C — Résultats 39

COMPARAISON DES RESULTATS AVEC LES VALEURS CALCULEES.

CHAPITRE II — CALCULS D'EVAPORATION PAR L'APPROXIMATION DE JACKSON.

A — Choix des paramètres 47
B — Calcul des sections efficaces 49
C — Comparaison avec l'expérience 51

CHAPITRE III — CALCULS D'EVAPORATION PAR LA METHODE DE MONTECARLO.

A — Principales étapes du calcul 56
B — Choix des paramètres 63
C — Résultats de calcul 66
D — Comparaison avec l'expérience 74

CHAPITRE IV — ETUDE DU SPECTRE EN ENERGIE DES PARTICULES EVAPOREES.

A — Calculs à la Montecarlo — Nouvelles approximations 89
B — Comparaison des approximations proposées avec l'expérience 95

RESUME ET CONCLUSIONS 104

BIBLIOGRAPHIE 107

LISTE DES PUBLICATIONS REÇUES ACTUELLEMENT EN ECHANGE AVEC *PORTUGALIAE PHYSICA*

— Acta Physica Academiae Scientiarum Hungaricae
— Acta Physica Polonica
— Anales de la Universidad Central del Equador
— Annales de Physique
— Annuaire de l'Académie Royale de Belgique
— Bulletin de la Classe des Sciences (Académie Royale de Belgique)
— Bulletin of International Union of Pure and Applied Chemistry
— Bulletin de la Société Royale des Sciences de Liège
— Commentationes Physico-Mathematicae
— Electrical Review
— Electrical Times
— Gazeta de Física
— Gazeta de Matemática
— Il Nuovo Cimento
— Physica
— Proceedings of the Indian Academy of Sciences (Section A)
— Publikacije Electrotehnickog Fakulteta Univerziteta Beogradu
— Revista da Faculdade de Ciências (Coimbra)
— La Rivista del Nuovo Cimento

PORTUGALIAE PHYSICA

Instructions pour les auteurs

PORTUGALIAE PHYSICA est la seule publication périodique portugaise consacrée exclusivement à la divulgation des recherches dans le domaine des Sciences Physiques. Les travaux pourront être présentés sous forme d'articles ou de brèves communications. Des articles de mise au point seront encore publiés, par invitation. Les travaux à publier devront être rédigés soit en Français, soit en Anglais, et avoir un résumé dans les deux langues. Ils seront dactylographiés à deux espacements sur une seule face du papier, l'original étant envoyé à la rédaction accompagné d'une copie.

Les figures et les tableaux devront être présentés sur des feuilles séparées. Les dessins devront être soigneusement faits à l'encre de Chine et avoir au moins le double des dimensions définitives. Les photographies seront faites sur du papier blanc brillant.

Les références bibliographiques seront indiquées dans le texte par un numéro entre parenthèses, en exposant, et groupées à la fin de l'article par l'ordre de citation. Les références à des articles dans des publications périodiques devront préciser les noms des auteurs, le titre abrégé de la revue selon le code international d'abréviation de titres de périodiques, le numéro du volume, le numéro de la première page de l'article en référence et l'année de publication. En ce qui concerne les livres, il faut indiquer les auteurs, le titre de l'ouvrage, le lieu d'impression, l'éditeur, l'année de l'édition et la page.

Les auteurs devront vérifier soigneusement le texte et les figures de leurs travaux car la rédaction ne peut pas accepter des altérations ou additions au texte original.

L'auteur d'un article ou communication recevra gratuitement 50 tirages à part. Ce nombre est réduit à 25 par auteur lorsque le même article aura l'intervention de plusieurs auteurs.

Toute correspondance doit être addressée à

PORTUGALIAE PHYSICA
Laboratório de Física da Faculdade de Ciências
LISBOA - 2 (Portugal)

PORTUGALIAE PHYSICA

Instructions to the authors

PORTUGALIAE PHYSICA is the only Portuguese review exclusively dedicated to the publication of research papers concerning the Physical Sciences. The papers may be presented under the form of articles or research notes. Review articles will also be published, by invitation.

The papers to be published may be written in French or in English with abstracts in both languages. They should be typed with two spaces, on one side of the page only, and the original and one copy must be submitted.

The figures and tables must be presented in separate sheets. Drawings should be carefully done in Indian ink and be at least double the definitive size. Photographs must be executed in white, glossy paper.

Bibliographical references should be indicated in the text by a number between brackets, in exponent, and grouped at the end of the article in the order they are mentioned. References to articles published in periodical publications should include the names of the authors, the abbreviated title of the publication according to the international code of abbreviation of the titles of periodicals, the issue number, the number of the first page of the article mentioned, and the year of publication. As for books, the authors, title of the work, place of the edition, editor, year of the edition, and page should be indicated.

The authors should carefully check their text and figures before submitting them, as the editor cannot accept any changes or additions to the original text. The author of an article or research note is entitled to 50 free reprints. This number is reduced to 25 per author whenever more than one author intervene in a paper.

All mail to be addressed to

PORTUGALIAE PHYSICA
Laboratório de Física da Faculdade de Ciências
LISBOA - 2 (Portugal)

Bertrand (Irmãos), Lda. — Lisboa

Toute la correspondance concernant la rédaction de PORTUGALIAE PHYSICA doit être adressée à

PORTUGALIAE PHYSICA
Laboratório de Física da Faculdade de Ciências
LISBOA-2 (Portugal)

Prix de l'abonnement:	250 escudos (US $8.50) par volume
Prix des volumes déjà parus:	300 escudos (US $10)
Prix du fascicule:	75 escudos (US $2.50)

Les Universités, les Laboratoires de Physique, les Académies, les Sociétés Scientifiques et les Revues de Physique sont invités à recevoir cette revue en échange de leurs publications.

PORTUGALIAE PHYSICA donnera un compte-rendu detaillé de tous les ouvrages soumis à la rédaction en deux exemplaires.

All mail concerning PORTUGALIAE PHYSICA to be addressed to:

PORTUGALIAE PHYSICA
Laboratório de Física da Faculdade de Ciências
LISBOA-2 (Portugal)

Subscription rates:	250 escudos (US $8.50) per volume
Price of past volumes:	300 escudos (US $10)
Price of copy:	75 escudos (US $2.50)

Universities, Physics Laboratories, Academies, Scientific Societies and Physics Publications are invited to receive this review in exchange for their publications.

PORTUGALIAE PHYSICA will give a detailed report of any book if two copies have been submitted.

PORTUGALIAE PHYSICA

VOLUME 4
FASCÍCULO 2
1 9 6 5

INSTITUTO DE ALTA CULTURA
CENTROS DE ESTUDOS DE FÍSICA DAS UNIVERSIDADES PORTUGUESAS

PORTUGALIAE PHYSICA

Fundadores: A. Cyrillo Soares, M. Telles Antunes, A. Marques da Silva, M. Valadares.

VOLUME 4 1965 FASCÍCULO 2

VOLUMES PUBLICADOS:

Vol. 1 — 1943-45 — 326 pp.
Vol. 2 — 1946-47 — 256 pp.
Vol. 3 — 1949-54 — 173 pp.

Redacção: Laboratório de Física da Faculdade de Ciências — Lisboa-2 (Portugal)

Comissão de redacção:

J. Moreira de Araújo — Carlos Braga — Carlos Cacho — A. Pires de Carvalho — M. Abreu Faro — J. Gomes Ferreira — António Gião — F. Bragança Gil — Manuel Laranjeira. Amaro Monteiro — J. Pinto Peixoto — J. da Providência — Lídia Salgueiro — J. de Almeida Santos — José Sarmento — António da Silveira — J. Veiga Simão.

ÍNDICE

(Table des matières)

Temperature assignment to thermal diffusion fator, by M. F. Laranjeira, A. Moutinho and M. H. Vasconcelos 115

Le rendement de la transition de Coster-Kronig $L_I \rightarrow L_{III}$ du rhenium, par L. Salgueiro, M. A. Campos et J. G. Ferreira 131

On the role of water vapor in the energetics of the general circulation of the athmosphere, by José P. Peixoto 135

Variational approach to the nuclear collective motion, by J. da Providência 171

CDU 53 (469) (05)

PORTUGALIAE PHYSICA

VOLUME 4
FASCÍCULO 2
1 9 6 5

TEMPERATURE ASSIGNMENT TO THERMAL DIFFUSION FACTOR (*)

M. F. LARANJEIRA, A. MOUTINHO and M. H. VASCONCELOS

(Laboratório Calouste Gulbenkian de Espectrometria de Massa
Comissão de Estudos de Energia Nuclear (I. A. C.) — Instituto Superior Técnico — Lisbon)

SUMMARY — A new formula to approach the temperature dependence of the isotopic thermal diffusion factor is proposed.

It can be successfully applied to theoretical data of Lennard-Jones (12-6) and Exp.-Six models, as well as to the available observations with isotopes of *Ne*, *Ar*, *Kr*, and *Xe*. This enables us to make a reasonable comparison between theory and experiments, showing that the above models are not satisfactory to explain, simultaneously, thermal diffusion and viscosity data of the referred noble gases.

The assignment of a mean temperature associated with the experimental thermal diffusion factor is discussed, from the point of view of the formula proposed.

RÉSUMÉ — Une nouvelle formule pour approximer la dépendence du facteur de diffusion thermique isotopique est proposée.

Cette formule peut être appliquée aux resultats théoriques des modèles de Lennard-Jones (12-6) et Exp.-Six, aussi bien qu'aux observations avec les isotopes de *Ne*, *Ar*, *Kr* et *Xe*, ce qui nous permet d'établir une raisonnable comparaison entre la théorie et les expérimentations.

Les modèles cités ne sont pas satisfaisants pour expliquer simultanément la viscosité et la diffusion thermique dans les nobles gaz cités.

L'association d'une température moyenne au facteur de diffusion thermique expérimentale est discutée du point de vue de la formule proposée.

1. — INTRODUCTION

The experimental thermal diffusion factor determined by common methods, i. e. the two bulb apparatus [1] and the swing apparatus [2], is indeed a temperature-average value, $\overline{\alpha_T\ (T)}$, which is given by the following equations, according to the usual definition (1):

* Received July 30, 1965.

$$ln\ q = \int_{T_1}^{T_2} \alpha_T(T)\ d\,ln\,T = \overline{\alpha_T(T)}\ ln(T_2/T_1) \qquad (1)$$

where q is the measured separation factor of the elementary effect, and T_1 and T_2 are, respectively, the absolute temperatures of cold and hot regions of the apparatus.

If in a run of measurements of the separation factor both T^1 and T_2 are allowed to change, a mean temperature $\overline{T}$ has to be assigned to $\overline{\alpha_T(T)}$, such that $\overline{\alpha_T(T)} = \alpha_T(\overline{T})$, in order to make reliable comparisons between theoretical and experimental thermal diffusion factors.

Of course equations (1) must be fulfilled. Therefore, the expression for $\overline{T}$ as a function of T_1 and T_2, depends on the assumption of a temperature dependence of $\alpha_T(T)$. Such dependence is very complex, even in the simplest case of isotopic mixtures, so that it has been approximated, in practice, by various simple formulas [1, 3, 4, 5, 6, 7], namely

$$\alpha_T = a - b/T \quad ; \text{ ref. 3} \quad ; \quad \overline{T}_B = \frac{T_1 T_2}{T_2 - T_1}\ ln(T_2/T_1) \qquad (2)$$

$$\alpha_T = a\ ln(T/b) \quad ; \text{ ref. 4,5} \quad ; \quad \overline{T}_D = (T_1 T_2)^{1/2} \qquad (3)$$

$$\alpha_T = a + bT \quad ; \text{ ref. 6} \quad ; \quad \overline{T}_P = \frac{T_2 - T_1}{ln\ (T_2/T_1)} \qquad (4)$$

$$\alpha_T = a - b/T^2 \quad ; \text{ ref. 7} \quad ; \quad \overline{T}_L = T_1 T_2 \left[\frac{2\ ln(T_2/T_1)}{T_2^2 - T_1^2}\right]^{1/2} \qquad (5)$$

In the foregoing formulas, a and b are constants. We have

$$\overline{T}_D^2 = \overline{T}_B\ \overline{T}_P = \overline{T}_L^2\ (\overline{T}_m/\overline{T}_B), \text{ with } \overline{T}_m = (T_1 + T_2)/2 \qquad (6)$$

The formula (2) for the mean temperature $\overline{T}_B$, has frequently been used, also in cases where the corresponding temperature dependence for α_T has not been stated or, even worse, not experimentally observed [8].

Temperature dependence expressed by eq. (5) has been applied by LONSDALE and MASON [7] to fit experimental data but no reference has been given to the corresponding mean temperature, $\overline{T}_L$, which we have determined. MORAN and WATSON [9] seem to assign the arithmetic mean temperature, $\overline{T}_m$, to the experimental isotopic

thermal diffusion factor for the noble gases. This may be safely used only if α_T is practically constant [10].

The differences among mean temperatures defined above, are by no means negligible (see table V) taking in mind the temperature stabilisations which are achieved in experimental apparatus. Therefore, it seems to us that the problem of a temperature assignment has frequently been over simplified.

Dependences expressed by equations 2, 3, 4 and 5, are indeed too much simple to fit thermal diffusion data, so that they may only be applied to rather short temperature ranges.

The problem of choosing a mean temperature may be avoided in theory, if one of the temperatures — say T_1 of the cold region of the apparatus — is kept constant over the entire run of measurements of the separation factor, q. From eq. (1) we have, then:

$$\frac{d\ln q}{d\ln T_2} = \alpha_T(T_2) \tag{7}$$

Therefore, the thermal diffusion factor at any temperature T_2, is given by the slope of the curve $\ln q$ against $\ln T_2$ or, as usually done in practice, against $\ln(T_2/T_1)$ using log-log scales [11, 12].

Besides the experimental requirement of a constant temperature, the slope method involves the disadvantage of a graphical differentiation which in practice gives rise to appreciable loss of accuracy specially at the ends of the curve.

In this paper another formula for the temperature dependence of α_T is proposed. Though not so simple as eqs. (2-5), it can be rather easily handled, having the advantage of covering either theoretical or experimental thermal diffusion data over large temperature ranges.

For the sake of simplicity, only binary isotopic mixtures will be considered. In this case the thermal diffusion factor, α_T, is theoretically given by

$$\alpha_T = \alpha_0 \frac{m_1 - m_2}{m_1 + m_2} \tag{8}$$

when m_1 and m_2 are the molecular masses of the isotopes and α_0, the so called reduced isotopic thermal diffusion factor, is an universal function of temperature — for each intermolecular model — which expresses the assumption of corresponding states.

Our formula may, however, be also applied to non-isotopic mixtures by an immediate generalization, as we shortly show.

2 — PROPOSED FORMULA. FITTING OF THEORETICAL DATA

Any reliable equation to approach the temperature dependence of experimental data of the reduced isotopic thermal diffusion factor defined by eq. (8), should have a behaviour similar to that predicted by «realistic» theoretical models as, for example, the well known Lennard-Jones and Exponential-Six potentials.

Having this in mind, we first show that our formula

$$\alpha_0 = a - b\ e^{-c\ ln^2(T^*/\delta)} \tag{9}$$

where a, b, c and δ are constants and $T^* = kT/\varepsilon$ is the reduced temperature ($k \equiv$ Boltzmann's constant; $\varepsilon \equiv$ depth of potential minimum), reproduces appreciably well the theoretical values of α_0, as given by L. J. (12-6) and Exp.-Six potentials, over a very wide temperature range.

In spite of its form, equation (9) can rather easily be handled. The constants a, b, c and δ have the following simple meanings:

— a is the value of α_0 at very high temperatures ($T^* \to \infty$);
— $(a\text{-}b)$ is the minimum value of α_0, which occurs at $T^* = \delta$;
— b is the difference between maximum and minimum values of α_0;
— c is the slope of the straight line $ln\ (a - \alpha_0)$ againts $ln^2\ (T^*/\delta)$:

$$ln\ (a - \alpha_0) = ln\ b - c\ ln^2\ (T^*/\delta) \tag{10}$$

In table I we give the values of a, b, $a\text{-}b$, c and δ for L. J. (12-6) and Exp.-Six potentials with the parameter $\alpha = 12, 13, 14, 15, 16, 17$.

TABLE I

Values of the constants in Eq. (9) for L. J. (12-6) and Exp.- 6 Models

Model	a	b	$a\text{-}b$	c	δ
L. J. (12-6)	0.575	0.631	— 0.056	0.515	0.62
Exp.-6, α = 12	0.445	0.550	— 0.105	0.61	0.65
13	0.483	0.547	— 0.064	0.62	0.66
14	0.518	0.545	— 0.027	0.58	0.66
15	0.540	0.540	0.000	0.58	0.66
16	0.564	0.533	+ 0.031	0.56	0.66
17	0.590	0.527	+ 0.063	0.55	0.66

For the reduced isotopic thermal diffusion factor we have used Kihara's first approximation

$$[\alpha_0]_1^K = \frac{15}{16}\,\frac{6\,C^* - 5}{A^*} \tag{11}$$

which is easier to handle and almost as good as the very complex Chapman's second approximation [13]. The numerical tables of $[\alpha_0]_1^K$ for the Exp.-Six model with $\alpha = 16{,}17$ were obtained from Mason and Rice [14].

Values of $[\alpha_0]_1^K$ for L. J. (12-6) and Exp.-Six with $\alpha = 12$, 13, 14, 15, have been computed by using numerical data of A^* and C^* given by HIRSCHFELDER *et al.* [15].

In table II we compare theoretical and approximated values (eq. 9) of $[\alpha_0]_1^K$ for L. J. (12-6) and Exp.-Six with $\alpha = 12$, 13, 14, 15. As a whole, the agreement is satisfactory (and also for the values of $\alpha = 16$, 17 which have not been presented in the table for the sake of brevity). For the case of the Exp.-Six model the agreement

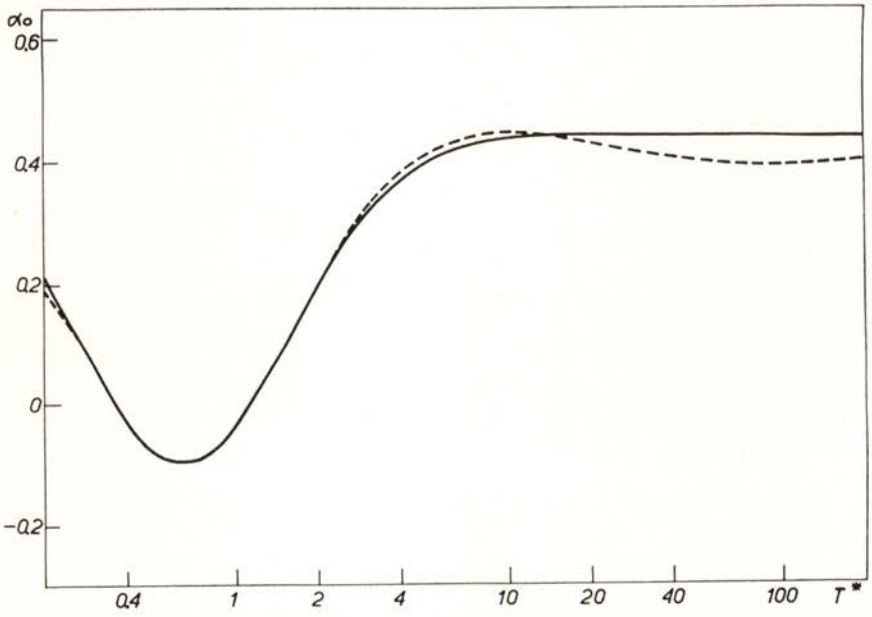


Fig. 1 — Theoretical and approximated curves for $[\alpha_0]_1^K$

---- Th. — Exp.-Six with $\alpha = 12$.
—— App. — Our equation (9) with a=0.445, b = 0.550, c = 0.61 and δ = 0.65.

is not so good at high temperatures, especially for $\alpha = 12$. This is due to the fact that $[\alpha_0]_1^K$ first decreases with the reduced temperature, T^*, in the range 10-100 and then increases again, whereas according to our equation (9) the reduced thermal diffusion factor is a monotonic slowly increasing function of T^* in that range (see fig. 1, for $\alpha = 12$).

3 — APPLICATION TO EXPERIMENTS

3.1 — *Procedure*

To fit experimental data of the reduced isotopic thermal diffusion factor we write equation (9) in the convenient form:

$$\alpha_0 = a - b\ e^{-c\ ln^2 [T/(T_c d)]} \tag{12}$$

where T_c is the critical temperature of the isotopic mixture and d is a new constant. The formal identification is therefore made: $\delta/k \equiv T_c d$.

TABLE II

Exact and Approximated values of $[\alpha_0]_1^K$

T^*	L. J. (12-6)		Exponential-Six							
			$\alpha = 12$		$\alpha = 13$		$\alpha = 14$		$\alpha = 15$	
	Exact.	Approx.	Exact.	Approx.	Exact.	Approx.	Exact.	Approx.	Exact.	Approx.
0.3	0.076	0.094	0.068	0.063	0.104	0.111	0.130	0.137	0.147	0.164
0.5	-0.042	-0.041	-0.082	-0.082	-0.039	-0.039	-0.004	-0.004	0.022	0.024
0.6	-0.056	-0.056	-0.103	-0.103	-0.061	-0.061	-0.025	-0.025	0.002	0.005
0.7	-0.051	-0.051	-0.104	-0.103	-0.063	-0.063	-0.027	-0.027	0.000	0.001
0.9	-0.009	-0.012	-0.071	-0.071	-0.033	-0.032	0.002	0.002	0.029	0.029
1.2	0.072	0.071	0.007	0.008	0.043	0.044	0.076	0.074	0.101	0.101
1.8	0.223	0.224	0.153	0.153	0.186	0.190	0.215	0.213	0.238	0.239
2.5	0.339	0.343	0.264	0.263	0.295	0.301	0.321	0.323	0.345	0.347
3.0	0.400	0.400	0.315	0.313	0.346	0.351	0.371	0.373	0.394	0.397
3.5	0.436	0.440	0.351	0.347	0.382	0.386	0.407	0.409	0.430	0.433
5	0.503	0.508	0.410	0.402	0.442	0.440	0.465	0.467	0.490	0.490
7	0.543	0.544	0.436	0.428	0.472	0.466	0.498	0.496	0.521	0.519
10	0.566	0.563	0.445	0.439	0.482	0.477	0.511	0.510	0.535	0.533
20	0.574	0.574	0.429	0.445	0.472	0.483	0.507	0.517	0.536	0.539
40	0.574	0.575	0.407	0.450	0.455	0.483	0.495	0.518	0.531	0.540

The use of T/T_c as a pratical reduced temperature, has an obvious advantage. If the assumption of corresponding states was followed by experiments, then a unic set of constants a, b, c, and d might be observed for $\overline{\alpha}_0$.

According to the temperature dependence expressed by eq. (12), the mean temperature, $\overline{T}$, associated with the experimental value α_0 is given by

$$e^{-c\,ln^2(\overline{T}/T_c\,d)} = \frac{(\pi/c)^{1/2}}{ln\,(T_2/T_1)}\,(\psi_2 - \psi_1) \tag{13}$$

with

$$\psi_i = Erf\ \ t_i = \frac{1}{\sqrt{2\,\pi}}\int_o^{t_i} e^{-z^2/2}\,dz$$

and

$$t_i = \sqrt{2c}\ \ ln\left(\frac{T_i}{T_c\,d}\right)$$

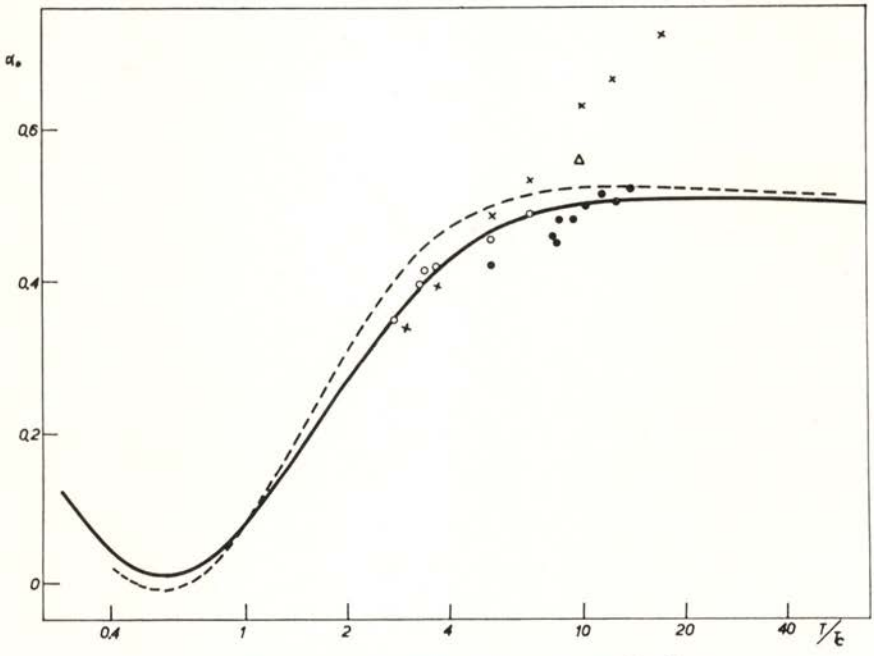


Fig. 2 — Reduced isotopic thermal diffusion factor for ^{20}Ne-^{22}Ne.

× — STIERS, ref. 8 (1942).
● — MORAN and WATSON, ref. 16 (1958).
△ — LARANJEIRA and KISTEMAKER, ref. 17 (1960).
○ — WATSON ET AL., ref. 18 (1963).
—— Experimental smooth curve.
---- Exp.-6, $\alpha = 14.5$, $\varepsilon/k = 38.0$ °K

In order to obtain $\overline{T}$ and the most probable values of a, b, c and d, we have adopted the following procedure:

1 — As a first approximation we take $\overline{T} \sim \overline{T}_D = (T_1\, T_2)^{1/2}$. This is nearly correct for observations lying in the region where formula (12) is roughly linear in $ln\overline{T}$ (see fig. 1 and confront eq. (3)).

2 — Experimental data of $\bar{\alpha}_0$ is plotted against $ln\,(\overline{T}/T_c)$, using transparent paper and semi-log scales.

3 — The above plot is shifted over the family of curves

$$y = b\ (1 - e^{-c\ ln^3 x})$$

drawn in identical scales of step 2, with b and c of the same order of magnitude of those given in table I.

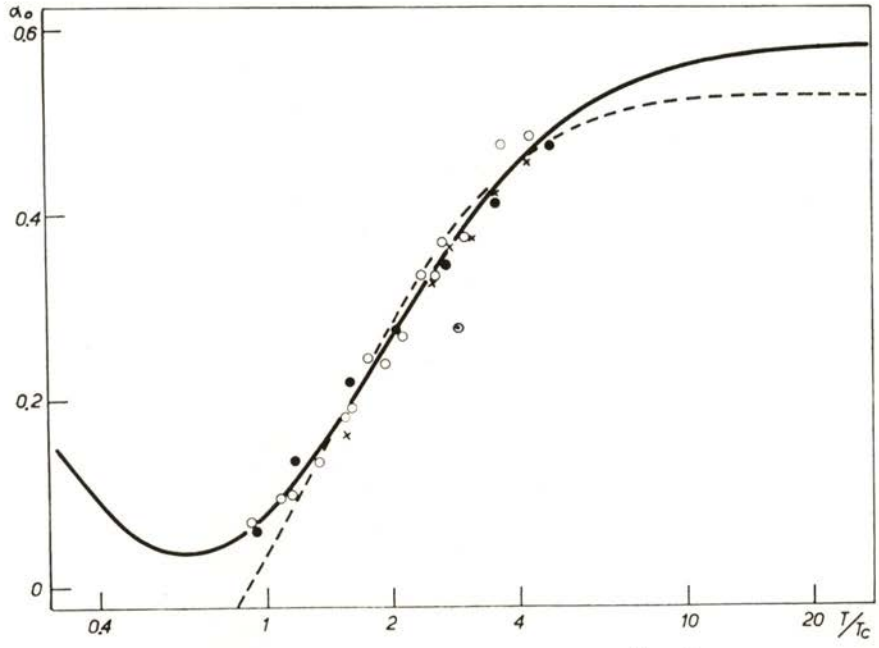


Fig. 3 — Reduced isotopic thermal diffusion factor for ^{36}Ar-^{40}Ar.

● — STIERS, ref. 8 (1942).
× — MORAN and WATSON, ref. 16 (1958).
⊙ — LARANJEIRA and KISTEMAKER, ref. 17 (1960).
○ — PAUL, *et al.*, ref. 19 (1963).
—— Experimental smooth curve.
---- L. J. (12-6) ε/k=124°K.

The curve of the family which gives, by superposition, the best fit for experimental data, automatically determines b and c. Also, the point $(ln\,1,0)$ of this curve «reads» in the transparent plot the point $(ln\,d, a - b)$.

4 — To confirm the values of the parameters determined by step 3, we plot $ln\,(a - \alpha_0)$ against $ln^2\,[\overline{T}/(T_c\,d)]$. According to eq. (12), a straight line should be obtained having a slope equal to c.

5 — By the foregoing procedure, first approximations for $\overline{T}$, and a, b, c and d are determined.

Second approximation may be obtained as follows:

a) for $\overline{T}$, by means of equation (13). This will be necessary especially for observations lying outside the «linear portion» of the curve $\bar{\alpha}_0$ against $ln\ \overline{T}/T_c$.

b) for parameters a, b, c and d, by using now the second approximation for the mean temperature $\overline{T}$. This may be done either graphically or by algebraic methods.

Higher approximations might be obtained in the same way. We have observed that second approximation is satisfactory since the method is quickly convergent.

3.2 — *Fitting of Experimental Data for Ne, Ar, Kr, and Xe*

The proposed method has been applied to fit the available data of reduced thermal diffusion factors for isotopic mixtures of neon [8, 9, 16, 17], argon [8, 16, 17, 19], krypton [9] and xenon [9].

Plots of $\bar{\alpha}_0$ against $ln\,(\overline{T}/T_c)$ are shown in figs. 2, 3, 4 and 5. Theoretical curves which appear to give the best fit of experiments, by using values of ε/k from viscosity data, are also drawn in the figures.

Values of the critical temperature, T_c, and of ε/k which has been used in the computations are given in table III.

TABLE III

Values of ε/k from viscosity and of T_c

Gas	ε/k (°K)	Model	Ref.	T_c (°K)	Ref.
Neon	38.0	Exp.-6 $\alpha = 14.5$	14	44.5	15
Argon	124	L. J. (12-6)	15,19	151	15
Krypton	212	Exp.-6 $\alpha = 14$	20	210	21
Xenon	231.2	Exp.-6 $\alpha = 13$	14	289.81	15

Determinations of $\overline{T}$, and of the constants a, b, c and d given in table IV, has been performed up to the second approximation as explained in § 3.1.

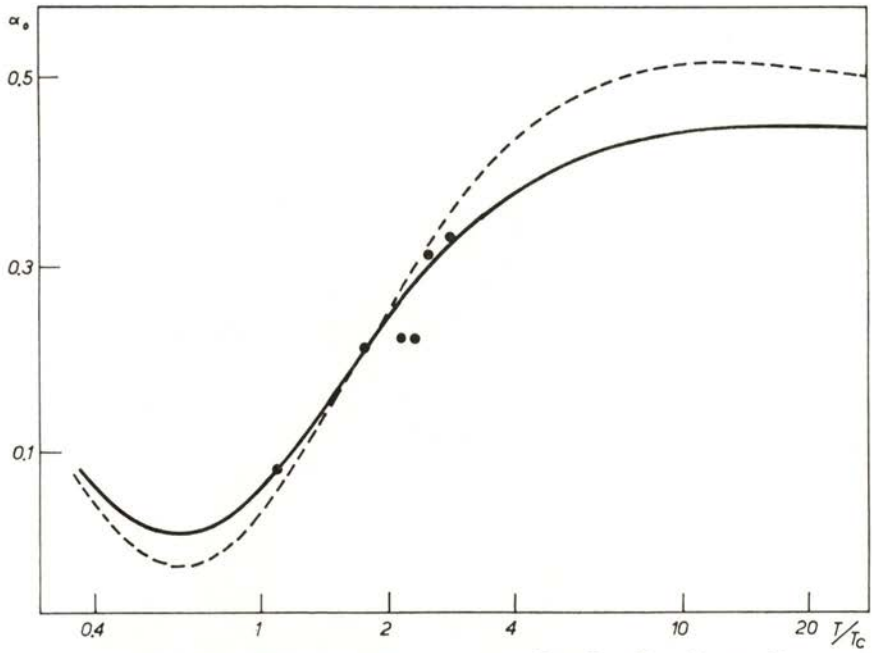


Fig. 4 — Reduced isotopic thermal diffusion factor for ^{80}Kr, ^{82}Kr, ^{83}Kr, ^{84}Kr and ^{86}Kr.

● — MORAN and WATSON, ref. 16, (1958).
—— Experimental smooth curve.
- - - - Exp.-6, $\alpha = 14$, $\varepsilon/k = 212$°K.

Thermal diffusion data of argon provides a good example of the application of the method. Observations have been carried out

over large temperature ranges and the scattering of results of different authors appears to be of the order of experimental errors.

TABLE IV

Mean values of parameters in our equation 12

Gas	*a*	*b*	*a-b*	*c*	*d*
Neon	0.52	0.50	0.02	0.50	0.60
Argon	0.580	0.543	0.027	0.45	0.66
Krypton	0.442	0.439	0.003	0.50	0.60
Xenon	0.455	0.403	0.052	0.50	0.56

In table v we give a representative set of experimental data for the reduced isotopic thermal diffusion factor, $\overline{\alpha}_0$, and the corresponding smooth values and reduced mean temperatures, $\overline{T}/T_c$, de-

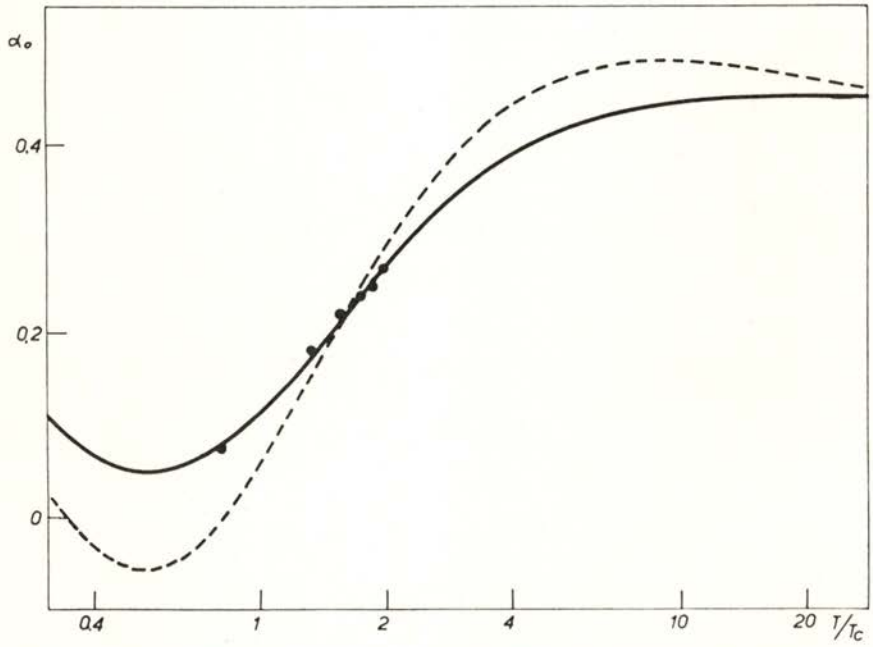


Fig. 5 — Reduced isotopic thermal diffusion factor for ^{128}Xe, ^{129}Xe, ^{130}Xe, ^{131}Xe, ^{132}Xe, ^{134}Xe and ^{136}Xe.

● — MORAN and WATSON, ref. 16, (1958).
—— Experimental smooth curve.
- - - - Exp.-6 $\alpha = 13$; $\varepsilon/k = 231$, 2°K.

TABLE V

Experimental data for ^{36}A-^{40}A and temperature assignement

Reduced T. D. Factor $\bar{\alpha}_0$		T_2 (° K)	T_1 (° K)	Ref.	Reduced mean temperature. T_c = 151° K				
Experimental	smooth, this work eq. (12)				$\bar{T}_L / T_c$ Lonsdale (eq. 5)	$\bar{T}_B / T_c$ Brown (eq. 2)	$\bar{T}_P / T_c$ Paul (eq. 4)	$\bar{T}_D / T_c$ Davenport (eq. 3)	$\bar{T} / T_c$ This work (eq. 13)
0.068	0.063	195	77	18	0.756	0.783	0.841	0.811	0.920
0.095	0.095	273	77	18	0.846	0.899	1.026	0.960	1.091
0.098	0.106	303	77	18	0.872	0.936	1.093	1.011	1.149
0.133	0.145	417	77	18	0.954	1.056	1.333	1.187	1.336
0.182	0.185	273	195	18	1.514	1.521	1.535	1.528	1.531
0.220	0.197	296	195	8	1.568	1.580	1.603	1.591	1.595
0.245	0.221	346	195	18	1.674	1.697	1.744	1.720	1.723
0.240	0.255	435	195	18	1.830	1.878	1.981	1.929	1.923
0.270	0.284	373	273	18	2.096	2.105	2.122	2.113	2.115
0.336	0.316	463	273	18	2.300	2.327	2.382	2.354	2.342
0.329	0.339	416	351	9	2.525	2.528	2.534	2.531	2.536
0.371	0.351	527	307	18	2.601	2.632	2.696	2.664	2.644
0.377	0.386	594	353	18	2.966	2.999	3.067	3.033	3.003
0.414	0.427	635	455	8	3.528	3.544	3.576	3.560	3.537
0.485	0.468	725	585	18	4.297	4.305	4.319	4.313	4.297
0.475	0.488	835	638	8	4.805	4.819	4.848	4.834	4.816

termined, respectively, by our proposed formulas (12) and (13). For comparison, we also present in the table the values of reduced mean temperatures $\overline{T}_L/T_c$ (LONSDALE and this work, eq. 5), $\overline{T}_B/T_c$ (BROWN, eq. 2), $\overline{T}_P/T_c$ (PAUL, eq. 4) and $\overline{T}_D/T_c$ (DAVENPORT, eq. 3).

In fig. 6 we present the plot of $ln\,(a-\bar{\alpha}_0)$ against $ln^2\,(\overline{T}/T_c\,d)$ which, as stated in § 3.1, should be linear and gives a simple graphical confirmation of the goodness of the values determined for parameters a, b, c and d.

4 — DISCUSSION

As it has been shown, our proposed equations (9) and (12) for approaching the temperature dependence of the reduced isotopic thermal diffusion factor, α_0, may be used with confidence over large

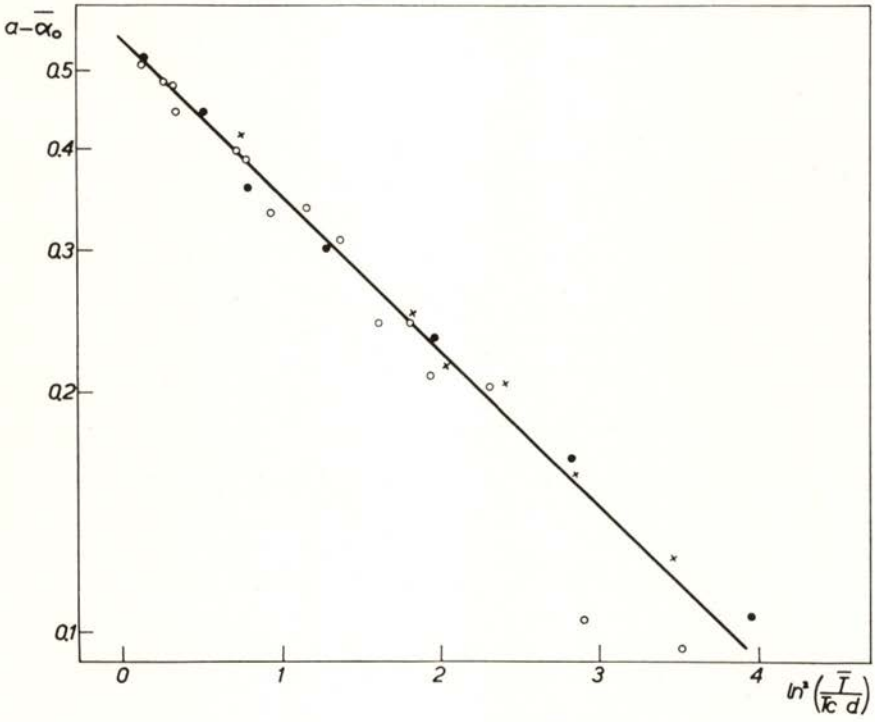


Fig. 6 — Plot of $a-\bar{\alpha}_0$ against $ln^2\left(\frac{\overline{T}}{T_c\,d}\right)$ for $^{36}A-^{40}A$

● — STIERS, ref. 8, (1942).
× — MORAN and WATSON, ref. 16, (1958).
○ — PAUL ET AL., ref. 19, (1963).

temperature ranges for fitting either theoretical or experimental data. This enables us to make reliable comparisons.

Therefore, concerning the problem of a mean temperature definition, our value for $\overline{T}$, as given by formula (13), may be safely assigned to experimental data of α_0. As table v shows, the difference of our value, $\overline{T}$, to those previously proposed, $\overline{T}_B$, $\overline{T}_P$ and $\overline{T}_D$, are in general not negligible. Therefore, they may be applied only in restrict temperature ranges, as first approximations: at low temperatures, Paul's formula 4 for $\overline{T}_P$ is preferable; for intermediate temperatures, Davenport's formula (3) for $\overline{T}_D$; and, at higher temperatures, Brown's formula (2) for $\overline{T}_B$.

As it is well known, thermal diffusion is very sensitive to the nature of intermolecular potentials and even the best models available give rather poor agreement with observations. The set of potentials parameters which fits other transport phenomena — like viscosity, concentration diffusion and thermal conductivity — are frequently inadequated to properly explain thermal diffusion. From

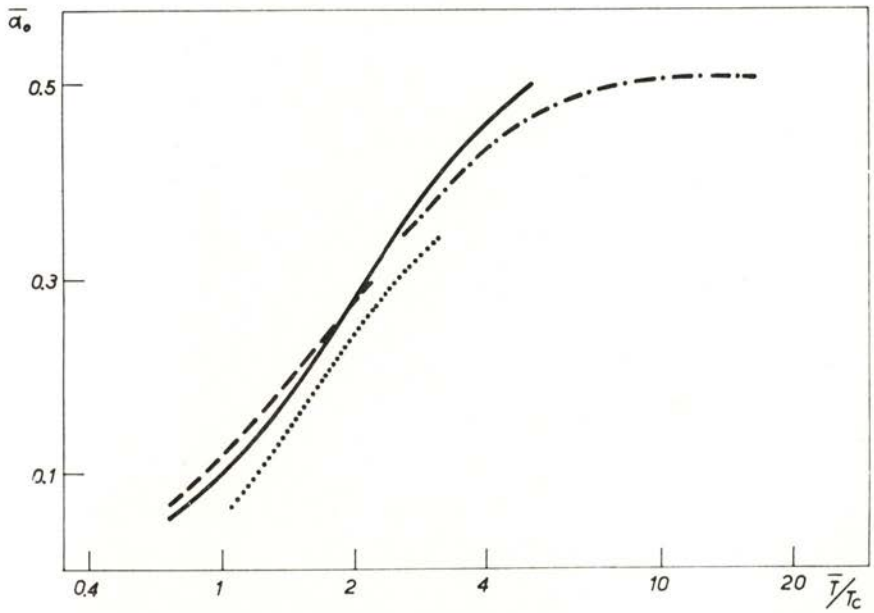


Fig. 7 — Experimental smooth curve of $\overline{\alpha}_0$ for isotopes of *Ne*, *Ar*, *Kr*, and *Xe*, in the temperature ranges observed.

- - - - ^{20}Ne — ^{22}Ne.
—— ^{36}Ar — ^{40}Ar.
..... ^{80}Kr, ^{82}Kr, ^{83}Kr, ^{84}Kr and ^{86}Kr.
----- ^{128}Xe, ^{129}Xe, ^{130}Xe, ^{131}Xe, ^{132}Xe, ^{134}Xe and ^{136}Xe.

figs. 2, 3, 4 and 5, it follows that: (I) the experimental difference $(\alpha_0)_{Max} - (\alpha_0)_{min} = b$ is always smaller than the corresponding theoretical value; (II) the slope of the curve $\bar{\alpha}_0$ against $ln\,(\overline{T}/T_c)$ in the intermediate temperature range from $\overline{T}/T_c = 1$ to 4, is also smaller than in theory; (III) the value of $(\alpha_0)_{min} = a\text{-}b$ appears to be always positive for the noble gases considered.

The use of T/T_c as reduced temperature gives rise to somewhat similar trend for thermal diffusion data of *Ne*, *Ar*, *Kr* and *Xe*, but we may not state that the assumption of corresponding states is followed, as fig. 7 shows. Nevertheless, it is interesting to point out that, by making small translations in the $ln\,(T/T_c)$ direction, the experimental smooth curves are more or less overlapped in the temperature ranges observed.

The method described in this paper may be also applied to non-isotopic mixtures, in principle. Indeed, in this case, the temperature dependence of the thermal diffusion factor is mostly expressed by the quantity $6C^*\text{-}5$, being therefore roughly identical to that of Kihara's first approximation, $[\alpha_0]_1^K$.

REFERENCES

(1) GREW, K. E. and IBBS, T. L. — *Thermal Diffusion in Gases.* Cambridge University Press, (1952).
(2) CLUSIUS, K. and HUBER, M. — *Z. Naturforsch.*, **10 a**, 230 (1955).
(3) BROWN, H. — *Phys. Rev.*, **58**, 661 (1940).
(4) DAVENPORT, A. N. and WINTER, E. R. S. — *Trans. Faraday Soc.*, **47**, 1160 (1951).
(5) HOLLERAN, E. M. — *J. Chem. Phys.*, **21**, 1901 (1953).
(6) PAUL, R., HOWARD, A. J. and WATSON, W. W. — *J. Chem. Phys.*, **39**, 3053 (1963).
(7) LONSDALE, H. K. and MASON, E. A. — *J. Phys. Chem.*, **61**, 1544 (1957).
(8) STIER, L. G. — *Phys. Rev.*, **62**, 548 (1942).
(9) MORAN, T. I. and WATSON, W. W. — *Phys. Rev.*, **109**, 1184 (1958).
(10) VAN DER VALK, F. and DE VRIES, A. E. — *Physica*, **29**, 427 (1963).
(11) GHOZLAN, A. I. — *Thermal Diffusion for Quasi-Lorentzian Mixtures between* 10° *and* 800° *K.* Thesis, Leiden (1963).
(12) SLIEKER, C. J. G. — *Thermal Diffusion of Asymetric Molecules.* Thesis, Delft (1964).
(13) MASON, E. A. — *J. Chem. Phys.*, **22**, 169 (1954).
(14) MASON, E. A. and RICE, W. E. — *J. Chem. Phys.*, **22**, 843 (1954).
(15) HIRSCHFELDER, J. O., CURTISS, C. F. and BIRD, R. B. — *Molecular Theory of Gases and Liquids* (1954).
(16) LARANJEIRA, M. F. and KISTEMAKER, J. — *Physica*, **26**, 431 (1960).
(17) WATSON, W. W., HOWARD, A. J., MILLER, N. E. and SHIFFRIN, R. M. — *Z. Naturforsch*, **18 a**, 242 (1963).
(18) PAUL, R., HOWARD, A. J. and WATSON, W. W. — *J. Chem. Phys.*, **39**, 3053 (1963).
(19) JOHNSTON, H. L. and GRILLY, E. R. — *J. Phys. Chem.*, **46**, 948 (1942).
(20) MASON, E. A. — *J. Chem. Phys.*, **32**, 1832 (1960).
(21) *Handbook of Chemistry and Physics*, Chemical Rubber Publishing Co. Cleveland, Ohio, 36th ed. 1954-55.

LE RENDEMENT DE LA TRANSITION DE COSTER-KRONIG $L_I \rightarrow L_{III}$ DU RHENIUM (*)

L. SALGUEIRO (**), M. A. CAMPOS et J. G. FERREIRA (**)

(Laboratoire de Physique, Faculté des Sciences de Lisbonne)

RÉSUMÉ — On a déterminé le rendement de Coster Kroning f_{13} du rhenium; le résultat obtenu est:

$$f_{13} = 0{,}30 \pm 0{,}04$$

ABSTRACT — The Coster-Kronig yield f_{13} of rhenium (*Re*) has been determined by comparing the relative intensities of the LX-ray lines with the $L\alpha$ and $L\beta_2$ satellites. The experimental result is:

$$f_{13} = 0{,}30 \pm 0{,}04$$

Dans cette note nous présentons la valeur du rendement de la transition de Coster Kronig $L_I \rightarrow L_{III}$ du rhenium, que nous désignons par f_{13}, déterminée suivant une méthode déjà décrite dans une publication antérieure (1).

Nous avons employé l'expression

$$f_{13} = \frac{4C_3 \, F\,(L_{III})s}{F\,(L_{III}) - 2\,F\,(L_{III})s} \; ; \qquad [1]$$

C_3 désigne le rapport des nombres d'atomes monoionisés dans les niveaux L_{III} et L_I;

(*) Reçu le 25 Septembre 1965.

(**) Boursier du I. A. C. (Portugal).

$F(L_{I\,I})$ et $F(L_{III})_S$ représentent, respectivement, le nombre de photons de diagramme émis au cours des transitions électroniques vers le niveau L_{III} et le nombre correspondant de photons satellites concernant la même couche électronique.

On peut calculer le rapport C_3 d'après l'expression $C_3 = 2\,\dfrac{W_{L_I}}{W_{L_{III}}}$

Nous nous sommes servis des valeurs des énergies de liaison électronique, W_{L_I} et $W_{L_{III}}$, données par HILL *et al.* (2) et nous avons obtenu pour le rhenium

$$C_3 = 2{,}38 \pm 0{,}36$$

Dans le tableau I nous présentons les nombres relatifs de photons X du niveau L_{III} du rhenium d'accord avec le travail de GOLDBERG (3) et la some $F(L_{III})$ pour cet élément.

TABLEAU I

Ll	—	4,0 ± 0,2	$\dfrac{I(L\alpha)_S}{IL\alpha_2}$	—	11,7 ± 0,6
$L\alpha_2$	—	11,7 ± 0,6			
$L\alpha_1$	—	97,3 ± 0,3	$\dfrac{I(L\beta_2)_S}{IL\beta_2}$	—	0,06 ± 0,00$_6$
$L\beta_2+\beta_{15}$	—	20,1 ± 2,0			
$L\beta_5$	—	0,53 ± 0,08	$F(L\alpha)_S$	—	2,7 ± 0,3
$L\beta_6$	—	1,8 ± 0,2$_7$	$F(L\beta_2)_S$	—	1,3 ± 0,1$_5$
$L\beta_7$	—	0,20 ± 0,03	$F(L_{III})_S$	—	4,0 ± 0,3$_3$
$L\beta'_7$	—	0			
$F(L_{III})$	—	135,63 ± 2,14			

Pour trouver la valeur de $F(L_{III})_S$, nous nous sommes servis des résultats déjà publiés (4) concernant les bandes satellites des raies $L\alpha$ du rhenium et nous avons mesuré l'intensité relative de la bande satellite qui accompagne la raie $L\beta_2$ par rapport à cette raie; ce travail a été réalisé dans des conditions expérimentales déjà décrites (1).

Nous donnons aussi dans le tableau I les intensités relatives $\dfrac{I(L\alpha)_S}{IL\alpha_2}$ et $\dfrac{I(L\beta_2)_S}{IL\beta_2}$ des bandes satellites qui accompagnent les raies

$L\alpha$ et $L\beta_2$ du rhenium et les correspondants nombres relatifs de photons $F(L\alpha)_S$, $F(L\beta_2)_S$ et de la somme $F(L_{III})_S$.

Dans le tableau II on présente le résultat obtenu pour f_{13} en substituant dans l'expression [1] les valeurs trouvées pour C_3, $F(L_{III})$ et $F(L_{III})_S$.

TABLEAU II

	Kinsey (5)	Listengarten (6)	Présent travail
f_{13}	0,42	$0{,}40 \pm 0{,}08$	$0{,}30 \pm 0{,}04$

L'accord avec les résultats théoriques de KINSEY (5) et de LISTENGARTEN (6) est satisfaisant.

BIBLIOGRAPHIE

(1) FERREIRA, J. G., COSTA, M. O., GONÇALVES, M. I., et SALGUEIRO, L. — *J. Physique*, **26**: 5, 1965.
(2) HILL, R. D., CHURCH, E. L., et MIHELICH, J. W. — *Rev. Sc. Inst.*, **23**: 523, 1952.
(3) GOLDBERG, M. — *Ann. Physique*, **7**: 329, 1962.
(4) FERREIRA, J. G. — *C. R. Acad. Sc. Paris*, **241**: 1929, 1955.
(5) KINSEY, B. B. — *Can. J. Res. A.*, **26**: 404, 1948.
(6) LISTENGARTEN, M. A. — *Izv. Akad. Nauk.*, **24**: 1041, 1960.

ON THE ROLE OF WATER VAPOR IN THE ENERGETICS OF THE GENERAL CIRCULATION OF THE ATMOSPHERE (*) (**)

José P. Peixoto

(University of Lisbon and Massachusetts Institute of Technology)

ABSTRACT — The role of water vapor in the energetics of the general circulation of the atmosphere is studied and discussed. The water vapor is the most important absorber of solar energy in the atmosphere, and hence, its distribution influences the form of the energy input into the system. Through the release of latent heat it generates zonal available and eddy available potential energy. The available potential energy of the disturbances is partly supplied by the non adiabatic heating due to condensation. The implications of the meridional transport of latent heat and of its divergence are discussed in the light of various meteorological considerations. The total mean meridional transport of latent energy is southward in the equatorial regions and northward in middle and high latitude regions whereas the meridional transports associated to transient and standing disturbances are predominantly positive (from south). The contribution of Hadley cell for the total southward transport of latent energy becomes dominant in the lower troposphere of equatorial regions.

RÉSUMÉ — On présente une étude du rôle de la vapeur d'eau dans l'énergétique de la circulation générale de l'atmosphère. La vapeur d'eau est l'absorbant le plus important de l'atmosphère et sa distribution module «l'input» de l'énergie dans le système. En dégageant de la chaleur latente elle va générer l'énergie potentielle disponible zonalle et perturbée. L'énergie disponible des pérturbations est partiellement fournie par le rechauffement non adiabatique due à la condensation de la vapeur d'eau. On étudie d'abord les implications du transport méridional d'énergie latente et de sa divérgence à la lumière de diverses considérations météorologiques.

Le transport méridional total de l'énergie latente est dirigé vers le sud dans les régions équatoriales et vers le nord dans les régions des latitudes

(*) The research reported in this paper has been possible through the suport of the U. S. National Science Foundation under grant N° G P — 3657.

(**) Received November 30, 1965.

moyennes et élevées, tandis que le transport méridional associé aux pérturbations stationaires et transientes est, d'une façon générale, positive. La contribution des circulations du type Hadley est dominante pour le transport vers le sud de l'énergie latente dans la basse troposphère des régions équatoriales.

1. *INTRODUCTION*

One of the possible approaches to the study of the general circulation of the atmosphere is to examine certain integral requirements deduced from dynamical principles governing the motion of the atmosphere, formulated in therms of physical properties such as energy, momentum, mass, water vapor content, etc.

This approach has been used extensively at the M. I. T. Planetary Circulations Project.

According to the principle of the conservation of mass, water substance cannot be created or destroyed within the atmosphere. The water balance may therefore be taken as a constraint on the general circulation. The necessity for the transport of water in the atmosphere arises from the existence of an excess of precipitation over evaporation in certain regions, with a reversal of prevailing conditions over other areas. Since storage effects of the atmosphere are small enough to be neglected, the excesses and deficits must be made up through the transport of water by atmospheric circulations, since there can be no significant net flux of water into or out of the atmosphere as a whole. Therefore, water vapor can be regarded as an indicator of the mechanisms which maintain the general circulation.

In dealing with the energetics of the atmosphere, one cannot ignore the existence of water component in its various phases. In the vapor phase, it is the most active constituent of the atmosphere with regard to radiative processes. It is a highly selective absorber of incoming solar energy; and also an important emitter of long wave radiation. The solid and liquid phases in the form of clouds have a profound influence upon the spatial distribution of planetary albedo, and consequently upon the amount of solar energy that is available for absorption by the earth. Furthermore clouds influence the long wave radiative balance, and through this, the vertical distribution of temperature in the atmosphere.

Since all its phases can occur within the usual range of the observed temperatures there are large amounts of energy associated with the phase changes that play an important part in the energy budgets of the earth and of the atmosphere.

With the imposed horizontal flux of water vapor is associated a transport of energy in the form of latent heat which constitutes an important part of the energy balance of the atmosphere. The corresponding vertical transport serves to compensate for radiative effects which tend to cool the atmosphere as a whole (1) (2). Finally, the energy associated with phase changes alters the baroclinicity of the atmosphere thereby influencing the kinetic energy, momentum and vorticity fields.

The present paper intends to give some aspects of the results obtained in the study of the water balance requirements of the atmosphere, and their implications for the energetics and the mechanisms of the maintenance of the general circulation.

2. *NOTATIONS AND FORMULAE*

In the present study we shall use the following notations:

λ = longitude
φ = latitude
p = pressure
t = time
a = radius of the earth
$u = a \cos \varphi \, d\lambda/dt$ = eastward wind component
$v = a \, d\varphi/dt$ = northward wind component
$\mathbf{v} = u\,\mathbf{i} + v\,\mathbf{j}$ = horizontal wind vector
$\omega = dp/dt$ = «vertical velocity»
z = height of an isobaric surface
g = acceleration of gravity
$\Phi = gz$ = geopotential
α = specific volume of the air
ρ = density of the air
T = temperature
R = gas constant
c_p, c_v = specific heats at constant pressure and at constant volume
$k = R/c_v$
$\theta = T p^{-k} p_o^k$ = potential temperature
q = specific humidity
L = latent heat of condensation
$T_e = T + \dfrac{L}{c_p} q$ = equivalent temperature

ν = zenith angle of the sun

$dm = a^2 \cos\varphi \, d\lambda \, d\varphi \frac{dp}{g}$ = mass element

P = precipitation

E = evaporation

$U = c_v T$ = internal energy

$H = c_p T$ = enthalpy

$\Phi^* = U + \Phi$ = total potential energy

Ω = angular velocity of the earth

$f = 2\,\Omega \, sen\, \varphi$ = Coriolis parameter

$\mathbf{F}$ = frictional force = $F_\lambda \mathbf{i} + F_\varphi \mathbf{j}$

$\dot{Q}_F = \frac{dQ_F}{dt}$ = heating rate due to conduction and friction

$\dot{Q}_R = \frac{dQ_R}{dt}$ = heating rate due to radiation

$\dot{Q}_L = \frac{dQ_L}{dt}$ = heating rate due to condensation

$u = g^{-1} \int_o^{p_o} dp$ = seccional mass

$W = g^{-1} \int_o^{p_o} q \, dp$ = precipitable water

$\mathbf{Q} = g^{-1} \int_o^{p_o} q \mathbf{v} \, dp = Q_\lambda \mathbf{i} + Q_\varphi \mathbf{j}$ = water vapor vector transport

$Q_\lambda = g^{-1} \int_o^{p_o} q u \, dp$ = zonal transport of water vapor

$Q_\varphi = g^{-1} \int_o^{p_o} q v \, dp$ = meridional transport of water vapor

S_q = source function for water vapor

Λ = availability of energy

$\Gamma = -\frac{\partial T}{\partial z}$ = lapse rate

$\Gamma_d = -\frac{g}{c_p}$ = dry adiabatic lapse rate

$\mathfrak{P} \equiv P_i^j = -\mu \left[\frac{2}{3} \delta_i^j \frac{\partial v^k}{\partial x^k} - \left(\frac{\partial v^i}{\partial x^j} - \frac{\partial v^j}{\partial x^i} \right) \right]$ = Navier-Stokes tensor

$\mathfrak{R} \equiv R_i^j = \overline{v_i' \, v'^j}$ = Reynolds tensor

$\overline{x} = \tau^{-1}\int_o^\tau x\, dt$ = time average of x

$x' = x - \overline{x}$ = deviation from time average

$[x] = (2\pi)^{-1}\oint x\, d\lambda$ = zonal average of x

$x^* = x - [x]$ = deviation from zonal average

$\overset{uu}{x} = \pi^{-2}\int\int^{\pi/2} x\, d\lambda\, d\varphi$ = hemispheric average of x over an isobaric surface

$x'' = x - \overset{uu}{x}$ = deviation from hemispheric average

$$\langle x \rangle = \frac{1}{sen\ (\varphi_j + 10) - sen\ \varphi_j}\int\int x \cos\varphi\, d\varphi\, d\lambda$$ = space average for the latitudinal belt φ_j

$[x\,y]_E = [\overline{x'\,y'}] + [\overline{x}^*\,\overline{y}^*]$ = total eddy covariance of x and y

$[\overline{x'\,y'}]$ = transient eddy covariance of x and y

$[\overline{x}^*\,\overline{y}^*]$ = standing eddy covariance of x and y

$$K_M = \frac{1}{2}\int ([\overline{u}]^2 + [\overline{v}]^2)\, dm$$ = zonal kinetic energy

$$K_E = \frac{1}{2}\int ([\overline{u'^2} + \overline{v'^2}] + [\overline{u}^{*2} + \overline{v}^{*2}])\, dm$$ = eddy kinetic energy

$$\gamma = \left\{ \begin{array}{l} -\alpha\left(\dfrac{1}{\theta}\dfrac{\partial \overset{uu}{\theta}}{\partial p}\right)^{-1} \\ \left(\overset{uu}{T} - \dfrac{p}{R}\, c_p \dfrac{\partial \overset{uu}{T}}{\partial p}\right)^{-1} \\ \left(\dfrac{T}{\theta}\right)^2 \dfrac{\overset{uu}{T}^{-1}}{(\Gamma_d - \Gamma)} \end{array} \right\}$$ = static stability parameter

$$A_M = \frac{c_p}{2}\int \gamma\, [\overline{T}]^{*2}\, dm$$ = zonal available potential energy

$$A_E = \frac{c_p}{2}\int \gamma\, ([\overline{T'^2}] + [\overline{T}^{*2}])\, dm$$ = eddy available potential energy

$$D(K) = \int \mathbf{v} \cdot \mathbf{F}\, dm$$ = rate of frictional dissipation of kinetic energy due to small scale turbulence and to eddy stresses at the boundary

$G(A)$ = rate of generation of available energy due to non-adiabatic effects

$C(K_E , K_M)$ = rate of conversion from eddy kinetic energy to zonal kinetic energy by the eddy momentum transport

$C(A_M , A_E)$ = rate of conversion from zonal to eddy available potential energy by the eddy sensible heat transport

$C(A_M , K_M)$ = rate of conversion from zonal available potential energy to zonal kinetic energy by mean meridional circulations

$C(A_E , K_E)$ = rate of conversion from eddy available potential energy into eddy kinetic energy by large-scale eddy processes

$\nabla = \mathbf{i} \frac{\partial}{a \cos\varphi \, \partial\lambda} + \mathbf{j} \frac{\partial}{a \, \partial\varphi}$ = surface spherical gradient operator on an isobaric surface

In this discussion the primitive hydrostatic equations for the atmosphere are written as follows:

a) equations of motion

$$\frac{\partial u}{\partial t} + \mathbf{v} \cdot \nabla u + \omega \frac{\partial u}{\partial p} - \left(f + \frac{u \, tg\varphi}{a} \right) + \frac{1}{a \cos\varphi} \frac{\partial \Phi}{\partial \lambda} - F_\lambda = 0 \qquad (1)$$

$$\frac{\partial v}{\partial t} + \mathbf{v} \cdot \nabla v + \omega \frac{\partial v}{\partial p} + \left(f + \frac{u \, tg\varphi}{a} \right) + \frac{1}{a} \frac{\partial \Phi}{\partial \varphi} - F_\varphi = 0 \qquad (2)$$

b) equation of hydrostatic equilibrium

$$\frac{\partial \Phi}{\partial p} + \frac{R}{p} T = 0 \qquad (3)$$

c) equation of continuity

$$\frac{\partial \omega}{\partial p} + div_p \, \mathbf{v} = 0 \qquad (4)$$

d) equation of continuity for the water vapor

$$\frac{\partial q}{\partial t} + div_p \, q \, \mathbf{v} + \frac{\partial}{\partial p} q \, \omega = \frac{dq}{dt} \equiv S_q \equiv - \frac{\dot{Q}_L}{L} \qquad (5)$$

e) equation of the first law of thermodynamics

$$\frac{\partial \theta}{\partial t} + \mathbf{v} \cdot \nabla \theta + \omega \frac{\partial \theta}{\partial p} - \frac{\theta}{T} \frac{(\dot{Q}_F + \dot{Q}_R + \dot{Q}_L)}{c_p} = 0 \qquad (6)$$

3. *THE WATER VAPOR IN THE GLOBAL BALANCE OF TOTAL ENERGY OF THE ATMOSPHERE*

3.1. *The balance equation of global energy*

The atmosphere contains significant amounts of potential energy (gravitational), internal energy (heat), latent energy (heat of condensation) and kinetic energy of various scales of motion.

For a moist atmosphere the total amount of potential energy, Φ, the internal energy, U, and the latent energy, LW, in a unitary column of the atmosphere in a state of hydrostatic equilibrium is proportional to the mean equivalent temperature of the column or to the wheighted potential equivalent temperature

$$\begin{aligned} \Phi + U + LW &= g^{-1} \int c_p \, T_e \, dp \\ &= p_o^{-k} \, g^{-1} \int c_p \, p^k \, \theta_e \, dp \end{aligned} \qquad (7)$$

where W is the precipitable water content of the column, L the latent heat of condensation, assumed to be constant and Θ_e the potential equivalent temperature. This total energy may be designated as *total moist potential energy*.

For a dry atmosphere the total amount of potential energy and internal energy for a unitary column of the atmosphere in a state of hydrostatic equilibrium is proportional to the total enthalpy of the column or to the wheighted potential temperature, θ:

$$\begin{aligned} \Phi + U &= g^{-1} \int c_p \, T \, dp \\ &= p_o^{-k} \, g^{-1} \int c_p \, p^k \, \theta \, dp \end{aligned} \qquad (8)$$

Since the generation and the destruction of both forms of energy (potential plus internal) occurs simultaneously it is costumary to consider the two forms of energy as a single form, the so called *total potential energy*, Φ^*.

MARGULES (1903) has firmly established that the maintenance of the atmospheric motions in a synoptic scale against the dissipation is due to the conversion of total potential energy into kinetic energy. The rate of generation of total potential energy (internal plus potential), which has to be resupplied depends upon non adiabatic heating including radiation, frictional heating, the release of latent heat, heating of contact of the atmosphere with the earth (transport of sensible and latent heat by turbulent difusion), etc.

The mechanism of conversion is basically a sinking of colder air and a rising of warmer air at same level. It is then required an horizontal gradient of temperature for the process to continue. Thus only a small fraction of the total potential energy is really available for conversion into kinetic energy of the actual atmospheric motions. The process of generating *available potential energy* is essentially through the heating of warm regions and the cooling of cooler regions at the same isobaric level which is equivalent to a local decrease of entropy.

The local balance equation for the total energy which expresses the conservation of total energy for the atmosphere, may be written (3), (4), (5) in the form:

$$\frac{\partial}{\partial t}\rho\,(U+\Phi+K)+div\left[\rho\,(c_p T+Lq+\Phi+K)\,\mathbf{v}-(\mathfrak{R}+\mathfrak{P})\,.\,\mathbf{v}\right]=\rho\,\dot{Q} \qquad (9)$$

where $\mathfrak{P}$ is the Navier-Stokes viscosity tensor, $\mathfrak{R}$ is the Reynolds turbulence tensor.

If this equation is integrated over the volume of a polar cap τ, bounded by a wall Σ, the resulting equation after averaged in time over the period considered becomes:

$$\frac{\partial}{\partial t}\iiint_\tau \rho\,\overline{(U+\Phi+K)}\,d\tau+\iint_\Sigma \rho\,\overline{(c_p T+Lq+K+\Phi)}\,v_N\,d\Sigma-$$

$$-\iint_\Sigma\left[\overline{(\mathfrak{R}+\mathfrak{P})\,.\,\mathbf{v})}\right]_N d\Sigma=\iiint_\tau \rho\,\overline{\dot{Q}}\,d\tau \qquad (10)$$

The local variation of the total energy in the polar cap results from:

a) the flux of total energy in the form of enthalpy ($\overline{c_p T}$), of latent heat ($\overline{Lq}$), of potential energy ($\Phi=\overline{gz}$) and of kinetic energy of existing motions $\left(\frac{\rho\,\overline{\mathbf{v}^2}}{2}\right)$, across the boundary Σ;

b) the flux of energy due to the action of frictional forces, which would ordinarily consist of a dissipation due to molecular viscosity and to small-scale turbulence which can produce no significant tangencial stresses;

c) a production of energy due to non-adiabatic heating ($\dot{Q}$).

It must be pointed out that kinetic energy of existing motions is very small compared with the other forms of energy.

3.2. *The meridional flux of moist latent energy*

Latent heat is one of the component of the flux of energy in equation (10). Analyses of the transport fields of water vapor can be regarded, in fact, as representations of the fluxes of latent heat. As was discussed in previous papers (4), (6), (7) the total mean horizontal flux of latent heat above a point on the earth's surface is given by

$$\overline{L\mathbf{Q}} = g^{-1}\int \overline{Lq\,\mathbf{v}}\,dp = L\,(\overline{Q}_\lambda\,\mathbf{i} + \overline{Q}_\varphi\,\mathbf{j}) \tag{11}$$

where the latent heat of condensation, L, is assumed to be constant.

From the hemispheric analyses of the quantities $\overline{Q}_\lambda$ and $\overline{Q}_\varphi$ (6) the values of the latter quantity have been computed and are shown in TABLE I. By comparing these values with those given by HOU-

TABLE I

Zonally averaged values of the total latent energy transport across latitude circles, $[L\,\overline{Q}_\varphi]$, *for the Northern Hemisphere in units of* 10^{14} *cal/sec. The lower numbers give the component of the total due to Mean Meridional cells* $Lg^{-1}\int [\bar{q}]\,[\bar{v}]\,dp$.

Latitude	80°	70°	60°	50°	45°	40°	30°	20°	10°	0°
Winter	— 0,06	0,38	1,34	2,69	3,02	3,22	2,29	— 2,21	— 8,62	— 5,59
		0,05	0,20	0,25	0,40	0,70	— 0,17	— 4,42	— 10,03	— 5,74
Summer	— 0,07	0,29	1,46	4,08	4,15	3,38	1,27	— 1,10	1,15	5,45
		— 0,22	0,05	1,66	1,85	1,29	— 1,26	— 3,98	0,16	5,60
Year	— 0,07	0.32	1,42	3,19	3,48	3,28	1,75	— 1,62	— 3,70	0,00
		— 0.13	— 0,08	0,76	0,58	0,64	— 0,61	— 4,26	— 4,66	0,07

GHTON (1) and by BUDYKO (8), (9), (10) one can see that in some regions water vapor contributes more than 0,30 of the meridional heat flux required to maintain the radiative balance.

The total transport of latent energy can be accomplished by the mean circulations and by the large transient and standing perturbations of the general circulation (11). In order to find the relative contribution of the various processes, the transport components $\overline{qu}$ and $\overline{qv}$ at a given isobaric level may be expanded according to the generalised REYNOLDS scheme:

$$[\overline{qu}] = [\overline{q}]\ [\overline{u}] + [\overline{q}^*\ \overline{u}^*] + [\overline{q'\,u'}] \tag{12}$$

$$[\overline{qv}] = [\overline{q}]\ [\overline{v}] + [\overline{q}^*\ \overline{v}^*] + [\overline{q'\,v'}] \tag{13}$$

Thus we may write for the components of the mean zonal and meridional total latent heat transports, respectivelly, the following expressions:

$$L\,[\overline{Q}_\lambda] = L\,g^{-1}\int_o^{p_o}[\overline{q}]\,[\overline{u}]\,dp + L\,g^{-1}\int_o^{p_o}[\overline{q}^*\,\overline{u}^*]\,dp + L\,g^{-1}\int_o^{p_o}[\overline{q'\,u'}]\,dp \tag{14}$$

$$L\,[\overline{Q}_\varphi] = L\,g^{-1}\int_o^{p_o}[\overline{q}]\,[\overline{v}]\,dp + L\,g^{-1}\int_o^{p_o}[\overline{q}^*\,\overline{v}^*]\,dp + L\,g^{-1}\int_o^{p_o}[\overline{q'\,v'}]\,dp \tag{15}$$

The terms of these equations are associated with the mean advection of latent heat ($[\overline{q}]\ [\overline{u}]$) and with the mean meridional circulation ($[\overline{q}]\ [\overline{v}]$); with the standing large scale horizontal eddies ($[\overline{q}^*\ \overline{u}^*]$; $[\overline{q}^*\ \overline{v}^*]$) and finally with transient horizontal eddies ($[\overline{q'\,u'}]$); ($[\overline{q'\,v'}]$).

In the study of the atmosphere and the earth's energy budgets the meridional transport $L\ \overline{Q}_\varphi$ plays a much more important role than the zonal transport $L\ \overline{Q}_\lambda$. Therefore we will discuss in detail the behaviour of all the components of the meridional transport, $L\ \overline{Q}_\varphi$, and its latitudinal distribution.

The zonally averaged values of the mean total moist latent energy transport across latitude circles, $[\overline{L\ Q}_\varphi]$, for the Northern hemisphere are given in TABLE I. The vertical distribution of the zonally averaged values of meridional transport of latent energy at various latitudes is presented in TABLE II. The extreme northward and southward values occur in the low troposphere in the layer 1000/850 mb.

TABLE II

Zonally averaged values of mean meridional transport of latent energy $g^{-1}[\overline{qv}]$ *in units of cal/(mb. cm. sec.) for yearly data at specified latitudes. The levels are given in millibars.*

Latitude	70°	60°	50°	45°	40°	30°	20°	10°	0°
1000 mb	6,02	18,06	36,12	41,54	32,51	— 9,63	— 76,45	— 38,53	6,02
850	— 2,41	15,65	38,53	39,13	37,93	4,21	— 17,46	— 7,22	2,41
700	2,41	15,65	28,90	28,90	26,49	1,20	1,81	— 14,45	— 4,82
500	— 0,60	4,21	6,62	6,02	5,42	5,42	3,61	— 0,60	— 3,01

The meridional transient eddy flux of moist latent energy, $Lg^{-1}\int_{o}^{p_o}[\overline{q'v'}]\,dp$, as shown in TABLE III, is predominantly positive

TABLE III

Zonally averaged values of the mean total meridional transient eddy transport of latent energy $g^{-1}L\int[\overline{q'v'}]\,dp$, *in units of* 10^{14} *cal/sec for yearly and seasonal data at specified latitudes.*

Latitude	70°	60°	50°	45°	40°	30°	20°	10°	0°
Winter	0,28	0,85	2,02	2,24	2,28	2,00	1,43	1,22	0,13
Summer	0,46	1,42	2,38	2,26	1,97	1,22	1,15	0,80	— 0,17
Year	0,41	1,30	2,58	2,81	2,45	1,74	1,55	0,86	— 0,07

(northward) over the northern hemisphere. It shows a yearly maximum which occurs near 47,5°N, shifting to the north in summer and to the south in winter. The maximum observed is clearly associated with the mean position of the polar front, as to be expected, in view of the role of the baroclinic perturbations in the eddy meridional transport. The transient eddy transport varies with the altitude and reaches a maximum in the middle latitude region in the lower troposphere near the 850 mb level (TABLE IV).

TABLE IV

Zonally averaged values of the mean zonal transient eddy transport of latent energy, $g^{-1}L\int(\overline{q'v'})\,dp$, in units of cal/(mb. cm. sec) for yearly data at specified latitudes. The levels are given in millibars.

Latitude	65°	55°	45°	35°	25°	15°	5°
1000 mb	— 1,81	— 0,00	— 3,01	— 1,81	+ 6,02	+ 9,63	+ 4,21
850	+ 2,41	+ 3,01	— 4,21	— 5,42	+ 1,81	+ 9,03	+ 7,22
700	+ 0,00	+ 0,00	— 4,21	— 10,84	— 6,02	+ 5,42	+ 13,24
500	+ 4,21	+ 3,61	— 2,41	— 7,22	— 8,43	— 3,61	+ 1,20

The total meridional transport of latent energy associated with the standing-eddies, $L\,g^{-1}\int[\overline{q}^*\overline{v}^*]\,dp$, (TABLE V) is always positive

TABLE V

Zonally averaged values of the mean total meridional standing eddy transport of latent energy $g^{-1}L\int_o^{p_o}[\overline{q}^*\overline{v}^*]\,dp$ in units of 10^{14} cal/sec for yearly and seasonal data at specified latitudes.

Latitude	70°	60°	50°	45°	40°	30°	20°	10°	0°
Winter	0,05	0,30	0,42	0,38	0,24	0,46	0,77	0,19	0,02
Summer	0,04	0,01	0,06	0,05	0,12	1,31	1,73	0,17	0,01
Year	0,04	0,20	0,12	0,10	0,18	0,61	1,09	0,14	0,00

(from south) and in general presents a well defined maximum at 20°N, associated with semi-permanent subtropical anticyclones and another maximum, much less intense, near 55°N associated with the semi-permanent lows prevailing in this region. The vertical distribution of the meridional standing eddy flux of latent heat (TABLE VI) shows that a maximum occurs in the neighbourhood of 22,5°N at 850 mb and another around 55°N near the surface. It is interesting to point

TABLE VI

Zonally averaged values of the mean meridional standing eddy transport of latent energy, $g^{-1}L[\overline{q}^* \overline{v}^*]$, in units of cal/(mb. cm. sec) for yearly data at specified latitudes. The levels are given in millibars.

Latitude	70°	60°	50°	45°	40°	30°	20°	10°	0°
1000 mb	+ 1,81	+ 4,21	+ 3,01	+ 1,20	+ 2,41	+ 4,82	+ 6,62	+ 2,41	+ 2,41
850	+ 1,20	+ 1,81	+ 1,81	+ 1,81	+ 3,61	+ 6,02	+ 9,63	+ 3,01	+ 1,20
700	+ 0,00	+ 2,41	+ 1,81	+ 0,60	+ 1,20	+ 2,41	+ 4,82	+ 3,01	+ 0,00
500	+ 0,60	+ 0,00	+ 0,00	+ 0,00	+ 0,60	+ 1,20	+ 2,41	+ 1,20	+ 0,00

out that the lowest values occur at 45°N where the largest values of the transient eddy transport of latent heat are observed.

The latitudinal distribution of the total eddy meridional flux (TABLE VII) presents a bimodal distribution, resulting from the

TABLE VII

Zonally averaged values of the mean total meridional eddy transport of latent energy $g^{-1}L\int\{[\overline{q'v'}] + [\overline{q}^* \overline{v}^*]\}\, dp$, in units of 10^{14} cal/sec for yearly and seasonal data at specified latitudes.

Latitude	70°	60°	50°	45°	40°	30°	20°	10°	0°
Winter	0,33	1,15	2,44	2,62	2,52	2,46	2,20	1,41	0,15
Summer	0,50	1,43	2,44	2,31	2,09	2,53	2,88	0,97	— 0,16
Year	0,45	1,50	2,70	2,91	2,63	2,35	2,64	1,00	— 0,07

combination of the latitudinal distribution due to transient eddies ($L\,g^{-1}\int_o^{p_o}[\overline{q'v'}]\,dp$) and to standing eddies ($L\,g^{-1}\int_o^{p_o}[\overline{q}^* \overline{v}^*]\,dp$) associated with the quasi-permanent features of the atmosphere circulation.

Thus, we can conclude that the effect of the standing eddies is of greatest significance in low latitudes, where the quasi-stationary

disturbances are dominant. At middle latitudes the vigorous transient eddies predominate and the standing eddies play a minor role in the meridional transport of energy. However, at 60°N their importance increases again, especially in winter when semi-permanent lows are most intense.

The comparison of the values of total meridional transport of latent energy and those of the total eddy transport offers the important indirect evidence of the existence of the three-cell regime with two direct cells and one indirect cell. The values of the mean meridional transport of latent energy by the mean meridional circulations are shown for comparison in TABLE I.

The contribution of the Hadley cell for the total southward transport of latent heat in the equatorial region becomes dominant, whereas the contribution of the other two cells play a minor role in the process, the eddies being the major factor in the total meridional flux of latent heat.

3.3. *The water vapor and the generation of total potentital energy*

The rate of non-adiabatic heating, $\dot{Q}$, due to conduction and friction, $\dot{Q}_F$, to radiation, $\dot{Q}_R$, and to condensation, $\dot{Q}_L$, will be written *in extenso* by adding up the individual contributions corresponding to the different physical processes that participate in the total heat balance.

We shall use the operator $<(\quad)>$ to define the mean value of a quantity within a zone j of the atmosphere which extends from latitude φ_j to latitude $\varphi_j + 10°$.

Then, the mean rate of heating of the atmosphere $<\dot{Q}(z)>$ is given by

$$<\dot{Q}_j> = <\overline{S}_j(\infty)\downarrow> + <\overline{G}_j(0)\uparrow\downarrow> + <\overline{L}_j(0)\uparrow> + \\ + <\overline{C}_j(0)\uparrow> - <\overline{S}_j(0)\downarrow> - <\overline{G}_j(\infty)\uparrow> \qquad (16)$$

where $<\overline{S}_j(z)>$ and $<\overline{G}_j(z)>$ are the intensities of the solar and long wave radiation respectively, and $<\overline{L}_j(0)\uparrow>$ and $<\overline{C}_j(0)\uparrow>$ are the latent heat and sensible heat transport at the lower boundary respectively. The arrows indicate the direction of the net flux.

We will proceed to show that all the terms are influenced direct or indirectly by the presence of water vapor in the atmosphere.

The quantity of radiant energy absorbed and scattered by the atmosphere at each point of the globe, $<\overline{S}_j(\infty)\downarrow> - <\overline{S}_j(0)\downarrow>$, is a function of the air mass, $u = g^{-1}\int dp$, and the precipitable water, $W = g^{-1}\int q\, dp$. According to HOUGHTON this quantity is given by:

$$<\overline{S}_j(\infty)\downarrow> - <\overline{S}_j(0)\downarrow> = 0{,}175\ (\overline{W.u})^{0{,}39} \cos\nu \quad (cal/cm.^2 min) \qquad (17)$$

where ν is the zenith angle of the sun.

To show the dependence of long wave radiative balance, $<\overline{G}_j(0)\uparrow\downarrow> - <\overline{G}_j(\infty)\uparrow>$, upon water vapor content, one need only refer to any radiation chart (see, for instance, Elsasser radiation chart).

Studies of precipitable water content such as those published by STARR, PEIXOTO and CRISI (12) have importante application to investigation of radiation and heat balance in the atmosphere. The maps of precipitable water may be used to find the spatial distribution of time averaged solar energy absorption. Furthermore, from the spatial distribution of specific humidity at different levels, one can examine the three dimensional distribution of this effect. These maps, in conjunction with temperature analyses could thus be useful in the computation of long wave absorption and emission at a given point in the atmosphere. Many specific applications of infrared radiation technology, however, require instantaneous information concerning atmosphere moisture.

Let us analyse now the effect of the clouds in the disposition of the solar radiation.

The planetary albedo has a mean value of 0.34, with a minimum of 0.28 in the subtropical regions, which are relatively devoid of cloudiness, and a maximum of 0.67 in the polar regions due to the presence of snow cover (1). Hence, the latitudinal distribution of solar energy available for absorption has a maximum in the subtropical regions, around 20°N, as shown by BUDYKO *et al.* (9). However, because the zonally averaged amount of precipitable water in the atmosphere is a monotonically decreasing function of latitude (6) and clouds are not important as absorbers of solar energy, the atmospheric absorption does not show this maximum. When the earth and atmosphere are taken as a system, the subtropical maximum is still evident, though it is suppressed by the effects mentioned above.

In order to obtain the distribution of $< \overline{L}_j (0) \uparrow >$ one can combine the values $< \overline{P - E} >$ as obtained by various authors (12) with values of evaporation $< \overline{E} >$, such as those given by BUDYKO *et al.* (8), (9), so as to obtain the distribution of $< \overline{P} >$ (*). The latter, when multiplied by the proper constant, yields $< \overline{L}_j (0) \uparrow >$. The values of $< \overline{P - E} >$ can be obtained from the divergence of the water vapor transport field $\overline{\mathbf{Q}}$, as has been discussed on several occasions (4), (12).

In fact for a unit column of air extending from the earth's surface (pressure p_o) to the top of the atmosphere (pressure $p = 0$), the water vapor balance equation can be written:

$$\frac{\partial \overline{W}}{\partial t} + div\ \overline{\mathbf{Q}} = \overline{S}_q \tag{18}$$

where $\overline{S}_q$ represents the net source of water substance in the atmospheric column. The source and sinks of water vapor in the atmosphere are due primarly to evaporation E from the surface of the earth and to precipitation P. For all pratical purpose $\overline{S}_q$ is given by the excess of evaporation over precipitation, $\overline{E - P}$. Thus taking the time average for the given time period (one year), the equation for atmospheric water vapor balance becomes:

$$\frac{1}{a \cos \varphi}\left[\frac{\partial \overline{Q}_\lambda}{\partial \lambda} + \frac{\partial}{\partial \varphi}\left(\overline{Q}_\varphi \cos \varphi\right)\right] = \overline{S}_q \equiv (\overline{E - P}) \tag{19}$$

because for this time interval $\dfrac{\partial \overline{W}}{\partial t}$ may be taken as zero.

The values of the water vapor transport field $\mathbf{Q} = (Q_\lambda \mathbf{i} + Q_\varphi \mathbf{j})$ have been discussed and computed (4), (6), (7) and the analysis of

---

(*) At this point one might raise the objections that, since the author consulted the work of BUDYKO to obtain values of $< \overline{E} >$, why did he not use the same source to obtain values of $< \overline{P} >$ directly, instead of going through the rather involved procedure described above. Justification for the procedure used rests on the fact that evaporation is a smoother function of space and time (almost monotonically decreasing function of latitude) than is precipitation and hence the former is more adaptable to the averaging techniques used in this type of study.

the distribution of the mean total horizontal divergence, $\nabla \cdot \overline{\mathbf{Q}}$, for the years of 1950 and 1958 have been already studied (12), (14), (15). The analysis of $\nabla \cdot \overline{\mathbf{Q}}$ show the existence of divergence centers alternating with convergence centers and exhibit considerable detail.

The divergence by ten degree latitude belts has been computed (12), using the expression:

$$<\overline{\nabla \cdot \mathbf{Q}}> = \frac{1}{a \cos\varphi} \frac{\partial}{\partial \varphi} \oint \overline{Q}_\varphi \cos\varphi \, d\lambda = <\overline{E - P}> \qquad (20)$$

The zonal values show a strong meridional variation with negative values ($\overline{E - P} < 0$) in the equatorial and middle latitude regions and with positive values ($\overline{E - P} > 0$) in the subtropical latitudes, where the divergence field shows a belt of maximuma. From the previous relation it is obvious that, over long periods, evaporation must exceed precipitation in these regions.

Thus the subtropical regions always act as a source of moisture for the atmosphere as a whole, while the equatorial, middle and high latitude regions act primarly as sinks.

3.4. *The hydrologic cycle in the global energetics of the atmosphere*

Now let us consider the expression of the rate of non-adiabatic heating and the latitudinal variation of its various components.

The values of $<\overline{S}_j(\infty) \downarrow> - <\overline{S}_j(0) \downarrow>$, which measure the rate of absorption of solar energy by the atmosphere and the values of the longwave radiation emitted by the earth and the atmosphere $<\overline{G}_j(\infty) \uparrow>$ were gruperted and discussed by HOUGHTON (1). Both are slowly varying functions of latitude. The difference between these quantities $\{ <(\overline{S}_j(\infty) \downarrow> - <\overline{S}_j(0) \downarrow) > - <\overline{G}_j(\infty) \uparrow> \}$ which appears in equation (16) is still more uniform.

According to BUDYKO $<\overline{C}_j(0) \uparrow>$ is always positive, smaller than any of the other terms in (16), and slowly varying with latitude; also BUDYKO's given values of $<\overline{G}_j(0) \uparrow\downarrow>$ are practically constant with respect to latitude (8), (9). In contrast to these slowly varying functions, the values of $<\overline{L}_j(0) \uparrow>$ determined by the latitudinal distribution of precipitation have a much more pronunced latitudinal

variation with a maximum over equatorial regions, a secondary maximum over high latitudes and minima over polar and subtropical regions (14), (15).

Hence we conclude that the latitudinal distribution input of energy into the atmosphere through non-adiabatic heating which is the generation source for all the potential energy and responsable for the maintenance of atmospheric motions against dissipation is essentially modulated by the function $\mathscr{L}(\varphi) \equiv < \overline{L}_j(0) \uparrow >$ as can be inferred from the inspection of equation (16). Thus the hydrological cycle has a profound influence upon the energetics of the general circulation of the atmosphere.

In the *evaporation-condensation-precipitation cycle*, virtually all evaporation takes place at the surface of the earth, and therefore the cooling involved in the process does not directly affect the atmosphere and does not affect the generation of available potential energy. On the other hand, condensation occurs principally within the atmosphere, where the release of latent heat has a direct influence.

Virtually all the condensate will eventually reach the ground in the form of precipitation but there may, of course, be further transports before this occurs. However, it is well established that the transport of water in the vapor phase far exceeds that in the liquid and solid phases in the atmosphere (6). This fact justifies the assumption, used in the present discussion, that precipitation is a measure of condensation. Precipitation, surface drainage and runoff complete the mass cycle, but are unimportant as far as the energetics of the atmosphere are concerned. Viewing the cycle as a whole, we see that it produces a net transfer of heat from the earth's surface to the atmosphere where it modulates the total meridional input of energy.

An assessment of the importance of the hydrological cycle in the energetics of the atmosphere requires the knowledge of geographical distribution of condensation, but not that of evaporation.

Since the hypothesis of evaporation-precipitation *in situ* cannot be accepted there must also be a transfer of heat from one geographical location to another and from one level to another. Thus we see that this cycle plays a part in regulating the temperature distribution of the earth's surface and atmosphere. Moreover, the transport of energy in the form of latent heat can be looked upon as a mechanism which the general circulation uses to adjust itself to the heterogeneous boundary conditions imposed by the differential absorption of solar energy.

The water cycle, from the point of view of mass and its implications on the field of hydrology has been discussed elsewhere (11), (12), (15).

4. *THE MAINTENANCE OF THE MEAN AND EDDY CIRCULATIONS IN THE ATMOSPHERE*

4.1. *Available potential energy and kinetic energy*

The concept of mean available potential energy presented by MARGULES (1903) (16) has been elaborated and discussed later by LORENZ (1955) (17) who was able to express it in terms of the temperature variance on an isobaric surface. The expression of the available potential energy is given by:

$$A = \frac{1}{2} c_p \int \gamma \, \overline{T^{*2}} \, dm \tag{21}$$

where γ is the stability factor:

$$\gamma = -\alpha \left(\frac{1}{\theta} \frac{\partial \overline{\theta}}{\partial p} \right)^{-1} = \left(\overline{T} - \frac{p}{R} c_p \frac{\partial \overline{T}}{\partial p} \right)^{-1}$$

Through an analysis of variance of the temperature field the available potential energy $A = \frac{1}{2} c_p \int \gamma \, \overline{T^{*2}} \, dm$ may be partitioned into zonal available potential energy A_M and eddy available potential energy A_E

$$A = A_M + A_E \tag{22}$$

where

$$A_M = \frac{1}{2} c_p \int \gamma \, [\overline{T}]^{*2} \, dm \tag{23}$$

and

$$A_E = \frac{1}{2} c_p \int \gamma \, [\overline{T'^2} + \overline{T}^{*2}] \, dm \tag{24}$$

Similarly, through an analysis of variance of the wind field the total kinetic energy $K = \frac{1}{2} \int \mathbf{v}^2 \, dm$ may be partitioned into zonal

kinetic energy, K_M, corresponding to zonally averaged motions of the atmosphere and into eddy kinetic energy, K_E, the eddy motions:

$$K = K_M + K_E \tag{25}$$

where:

$$K_M = \frac{1}{2}\int \{[\overline{u}]^2 + [\overline{v}]^2\}\, dm \tag{26}$$

and

$$K_E = \frac{1}{2}\int \{[\overline{u'^2} + \overline{v'^2}] + [\overline{u}^{*2} + \overline{v}^{*2}]\}\, dm \tag{27}$$

It is convenient to consider K_M, K_E, A_M and A_E as separate forms of energy. A balance equation for each of these forms can be obtained following the usual and well known procedure. These equations have some terms in common with opposite signs and will be regarded as conversion functions among the various forms of energy (4), with the understanding that we reserve the term conversion functions for the terms which express clearly physical mechanisms that take part in the atmosphere.

4.2. *Balance equations for the kinetic energy*

In the derivation of the balance equation for the zonal kinetic energy the equation (1) of zonal motion is first multiplied by $[\overline{u}]$, next averaged in time and finally integrated over the mass for a polar cap or all for the atmosphere. The resulting equation, expressing the balance between the various processes which take part in the maintenance of K_M, can be written under the simbolic form:

$$\frac{\partial K_M}{\partial t} = C\,(K_E, K_M) + C\,(K_{M,\varphi}, K_{M,\lambda}) + D\,(K_M) + A\,(K_M) + W_e\,(K_M) \tag{28}$$

where:

a)

$$C\,(K_E, K_M) \approx \int [\overline{u\,v}]_E \cos\varphi \frac{\partial}{a\,\partial\varphi}\left[\frac{[\overline{u}]}{\cos\varphi}\right] dm + \int [\overline{u\,w}]_E \frac{\partial\,[\overline{u}]}{\partial p}\, dm \tag{29}$$

is the conversion from eddy into zonal kinetic energy by horizontal

and vertical eddies, which depends upon the transport of angular momentum along the gradient of angular velocity;

b)

$$C\,(K_{M,\varphi},\, K_{M,\lambda}) = \int f\,[\bar{u}]\,[\bar{v}]\,dm + \int [\bar{v}]\,[\bar{u}]^2 \frac{tg\,\varphi}{a}\,dm \tag{30}$$

is the conversion of energy from the mean meridional motions into mean zonal motions due to the Coriolis effect in an Hadley regime;

c)

$$D\,(K_M) = \int [\bar{u}]\,[\bar{F}]\,dm \tag{31}$$

is the viscous, turbulent and frictional dissipation;

d)

$$A\,(K_M) = \int\int ([\bar{u}] + [\bar{\omega}])\,\frac{1}{2}\,[\bar{u}]^2 \frac{d\Sigma}{g} \tag{32}$$

is the advection of K_M across the boundary Σ by mean meridional overturnings; and finally:

e)

$$W_e\,(K_M) = \int\int [\bar{u}]\,([\overline{u'v'}]_E + [\overline{u'\omega'}]_E)\,\frac{d\Sigma}{g} \tag{33}$$

is the work performed on the volume τ by the eddy stresses at the boundary Σ.

The balance equation for the eddy kinetic energy is derived following an analogous procedure. The zonal equation of motion is multiplied by $u' + \bar{u}^*$ and the meridional equation by $v' + \bar{v}^*$. After adding them together and averaging in time, the integration in space over the mass of a polar cap will lead to the balance equation:

$$\frac{\partial K_E}{\partial t} = -C\,(K_E, K_M) + C\,(A_E, K_E) + D\,(K_E) + A\,(K_E) + \\ + W_p\,(K_E) + W_e\,(K_E) \tag{34}$$

where:

a)

$C\,(K_E, K_M)$ is the rate of conversion from eddy into zonal kinetic energy;

b)

$C(A_E, K_E)$ is the rate of conversion from eddy available potential into eddy kinetic energy:

$$C(A_E, K_E) = -\int \frac{R}{p} \left([\overline{\omega' T'}] + [\overline{\omega}^* \overline{T}^*] \right) dm; \tag{35}$$

c)

$D(K_E)$ is the dissipation of eddy kinetic energy due to friction:

$$D(K_E) = \int [\overline{u F_\lambda}]_E \, dm + \int [\overline{v F_\varphi}]_E \, dm; \tag{36}$$

d)

$A(K_E)$ is the advection of eddy kinetic energy through the boundary Σ by mean meridional circulations:

$$A(K_E) = \int\int_\Sigma \{[\overline{v}] + [\overline{\omega}]\} \cdot \frac{1}{2} \{[\overline{u}^2]_E + [\overline{v}^2]_E\} \frac{d\Sigma}{g} \tag{37}$$

and

e)

$W_e(K_E)$ is the work performed on the layer by the eddy stresses at the boundaries.

A net conversion from zonal to eddy kinetic energy would occur if the eddies acted to transfer angular momentum from latitudes of high angular velocity to those of low angular velocity in the manner of large scale viscosity. However, observations indicate that such a conversion does not take place (18), (20), but instead eddy kinetic energy is converted into zonal kinetic energy and appears to be the main source for the maintenance of the zonal currents against dissipation by turbulence, by friction, etc.

4.3. *Balance equations for the available potential energy*

The balance equation for the available potential energy can be derived from the equation (6) of first law of thermodynamics when it is multiplied by $\gamma [\overline{\theta}]''$ where γ is the stability parameter and resolving the potential temperature into the various eddy components $\theta'' = [\overline{\theta}]'' + \overline{\theta}^* + \theta'$.

The resulting equation after averaged in time and next integrated in space for a polar cap or for all the atmosphere and neglecting the triple correlations, assumes for the zonal available potential energy the form:

$$\frac{\partial A_M}{\partial t} = -C(A_M, A_E) - C(A_M, K_M) + G(A_M) \tag{38}$$

This equation expresses that there is a balance between the various processes:

a) The conversion $C(A_M, A_E)$ from zonal into eddy available potential energy by horizontal and vertical eddy processes:

$$C(A_M, A_E) = -c_p \int \gamma \left\{ [\overline{v' T'}] + [\overline{v}^* \overline{T}^*] \right\} \frac{\partial [\overline{T}]}{a \, \partial \varphi} dm - \\ - c_p \int \gamma \left(\frac{T}{\theta} \right) \left\{ [\overline{\omega' T'}] + [\overline{\omega}^* \overline{T}^*] \right\} \frac{\partial [\overline{\theta}]''}{\partial p} dm \tag{39}$$

which depends upon the horizontal and vertical eddy transports of sensible heat $[\overline{v T}]_E$ and $[\overline{\omega T}]_E$ along the gradient of temperature. When eddies transport sensible heat against the temperature gradient (from warm to cold zones) there is a conversion from zonal available potential energy A_M into eddy available potential energy A_E in the manner of large scale conductivity.

b) The conversion $C(A_M, K_M)$ from zonal available potential energy into zonal kinetic energy by mean meridional circulations:

$$C(A_M, K_M) = -R \int p^{-1} \, [\overline{\omega}]'' \, [\overline{T}]'' \, dm \tag{40}$$

c) The generation $G(A_M)$ of zonal available potential energy by non-adiabatic heating:

$$G(A_M) = \int \gamma \, [\overline{T}]'' \, [\overline{Q}]'' \, dm \tag{41}$$

The low latitude regions with a warm troposphere are continuously heated by the surplus of incoming solar radiation over outgoing terrestial long wave radiation, whereas middle and high latitude

regions with lower temperatures are cooled by the same radiation energy balances.

This results in a large positive value of the covariance $\widetilde{[T]''\ [Q]''}$ and consequently in a large generation of zonal available potential energy.

The equation of balance for the eddy available potential energy can be derived multiplying the equation of the first law of thermodynamics by $\gamma(\overline{\theta}^* + \theta')$ where γ is the static stability factor, next averaged with respect to time and then integrated in space. The final equation will be:

$$\frac{\partial A_E}{\partial t} = C(A_M, A_E) - C(A_E, K_E) + G(A_E) \tag{42}$$

where $G(A_E)$ is the generating function of eddy available potential energy and is given by:

$$G(A_E) = \int \gamma [\overline{T' Q'} + \overline{T}^* \overline{Q}^*]\, dm \tag{43}$$

and the other terms have the previous meaning.

As was mentioned in § 3.1 only a small part of the total potential energy is converted into kinetic energy in the atmosphere. The maximum possible value is the available potential energy. However, it may now be inferred that the principal via of conversion of available potential energy to kinetic energy is a conversion of eddy available potential into eddy kinetic energy accomplished by downward eddy motions of cooler air and upward eddy motion of warmer air.

4.4. *The energy cycle of the general circulation in the troposphere*

We are led to the following scheme of the energy cycle of the general circulation in the troposphere. The net heating of the atmosphere in low latitudes and the net cooling in high latitudes result in a continual generation of zonal available potential energy. The atmosphere is baroclinically unstable and virtually all this energy is converted into eddy available potential energy by the resulting eddies. Some of this energy may be dissipated in the eddies through the combined effects of radiation, condensation, evaporation, the heat flux near the ground and the heating of colder portions of the eddies

and the cooling of warmer portions; the remainder is partly converted into eddy kinetic energy through the sinking of colder air and the rising of warmer air in the eddies.

Some of the kinetic energy in the large scale eddies is dissipated in a cascade regime by generating smaller and smaller eddies and by friction; the remaining part of this energy is converted into kinetic energy for the zonal currents.

Most of the zonal kinetic energy is dissipated by turbulence and by friction; a small residual is converted into zonal available potential energy again by an indirect meridional circulation and this brings back to the beginning of the cycle. Schematically we accept that the energy cycle in the troposphere proceeds from A_M to K_M, through the following scheme:

$$A_M \longrightarrow A_E \longrightarrow K_E \longrightarrow K_M \longrightarrow A_M$$

It therefore appears that eddies play a crucial role in regulating the general circulation. It is this very basic fact that has laid down the foundation for the modern concepts on general circulation and has changed all the perspective of the dynamics of the atmosphere (STARR, 1958) (20).

5. *THE WATER VAPOR AND THE ENERGY CYCLE OF THE GENERAL CIRCULATION*

5.1. *Availability in a moist atmosphere*

The formulation of the energy cycle, as has been presented, does not incorporate directly the water component in the atmosphere. The fundamental reason lays in the difficulty in defining a *reference state* for such complex system as the moist atmosphere; the specification of the reference state is essential for the assessment of the *availability* of the energy of a system. The reference state has to be a *dead state*, inert for any thermodynamical transformation, characterized by the most stable state of thermodynamical equilibrium, without local contrast in entropy, suposed to have the maximum possible value compatible with the constraints imposed to the total system, and so with a minimum total potential energy.

The availability measures the maximum value of the *useful work*, W_u, corresponding to a state of a subsystem within an ideal atmosphere in a dead state and is denoted by A. Thus:

$$A \equiv \Phi^* - \Phi^*_{min} \tag{44}$$

It follows that for any state of any atmospheric subsystem in the ideal dead atmosphere

$$A \geqslant 0 \ .$$

For the most stable state of the subsystem, which is then a dead state,

$$A = 0$$

which corresponds to the identification of the subsystem with the ideal atmosphere. For a finite change from the subsystem in state a to the subsystem in state b

$$W_u = \int_{\widehat{a\,b}} dW \leqslant -\int_a^b d\Phi \tag{45}$$

or

$$W_u \leqslant \Phi^*_a - \Phi^*_b = \Delta A^b_a \tag{46}$$

It follows that it is impossible to transform into useful work (kinetic energy of the atmospheric motions) all the variation of the availability when the subsystem undergoes any transformation that brings it from a thermodynamic state to another.

The behaviour of the water component in the atmosphere makes it very difficult to define a «dead state» for the moist atmosphere. With the possible changes of phase there is a mass transfer from one phase to another within the atmospheric subsystem and eventually a transfer of mass out of the total system (the atmosphere) through precipitation. The atmosphere is an open system for the water component and, furthermore, its content in water vapor is not even statistically constant. All these processes and transformations alter profoundly the time and the spatial distribution of energy and entropy within the system and makes it extremely difficult to define and to find the balance of those quantities. Thus, any model of reference state for this system so complex has to be highly idealized and restrictive, involving rather gross simplifications and limitations when compared with the real moist atmosphere.

A possible reference state for a moist monophasic and trivariant atmosphere, useful perhaps under very simple conditions, would be that corresponding to an ideal atmosphere with a minimum total moist potential energy and with uniform isobaric distributions of temperature, entropy and moisture content, as given, for example, by the corresponding isobaric averaged values.

5.2. *Effects of water vapor on the general circulation*

In spite of the mentioned difficulties in taking into account explicitly the influence of the water component in the present theory of the general circulation, we can infer some effects of the water vapor on the energy cycle formulated for a dry atmosphere and discuss some implications due to the presence of water vapor in the atmosphere.

The rate of generation of total potential (internal plus potential) energy depends upon the total non-adiabatic heating. However, the generation of available potential energy is determined by the spatial distribution of non-adiabatic heating with respect to the temperature field. Zonal and eddy available potential energies are affected directly by the water vapor through absorption of solar radiation and the processes of long wave radiation, through the changes in the albedo and, finally, through condensation and, to a less extent, through evaporation.

Let us consider the heat energy stored in the moist atmosphere due to water vapor. The existence of the energy which we shall denote as *moist «available» potential energy* can play a part in the dynamics of the atmosphere only if it is converted into available potential energy, through the process of a phase change (mainly through condensation). Since the hemispheric distribution of water vapor is almost axially symetric with a well defined meridional gradient, there is in the atmosphere a large storage of *total moist zonal «available» potential energy*. The distribution has, of course, a non symetric component, which suggest the concept of *total moist eddy «available» potential energy*.

The rate of generation of available potential energy, $G(A)$, is proportional to the covariance of non-adiabatic heating and temperature. Thus, through the release of latent heat the water vapor plays a direct role in the production of zonal and eddy available potential energy, $G(A_M)$ and $G(A_E)$, as can be inferred from their corresponding equations (41) and (43).

It follows also from the mathematical expressions of the conversion terms of the various forms of energy, as presented in § 4, that the water vapor plays an indirect role in the conversion of the various forms of energy because the water vapor can introduce significant changes in the u, v, ω and T and γ fields.

The time averaged transport of latent heat by both transient and standing eddies is poleward at all latitudes as it is shown in the corresponding tables of § 4. Since the mean zonal temperature also decreases poleward (21), (22), this means that the eddies must, on the average, be converting latent zonal available potential energy into latent eddy available potential energy, $C(A_M, A_E) > 0$. We should expect this effect to be most intense in middle and high latitudes where there is a maximum of eddy activity. To the extent that at these latitudes condensation occurs predominantly near the frontal zones there is a generation of eddy available potential energy — that is, some of the moist available potential energy released — in the perturbations along the frontal zone. This is precisely where the conversion of available potential energy into kinetic energy, through baroclinic processes, is taking place.

In fact condensation ($\dot{Q}_L > 0$) in middle latitude perturbations occurs generally with southerly warm ascending currents ($T' > 0$), ($\omega < 0$) and evaporation ($\dot{Q}_L < 0$) with northerly cold subsiding currents ($T' < 0$), ($\omega > 0$). Since the correlation between $\dot{Q}_L$ and T is positive there is a generation of eddy available potential energy with the release of latent heat, $\{G(A_E)\}_L > 0$. However, when the radiation effects are considered the oposite takes place. The moist warm air from south ($T' > 0$) in its movement towards higher latitudes is cooled ($\dot{Q}_F + \dot{Q}_R < 0$), while the northerly cold air ($T' < 0$) is warmed ($\dot{Q}_R + \dot{Q}_F > 0$). In this case the covariance along the latitude circles between T and $\dot{Q}_R$ is negative which leads to a destruction of eddy available potential energy, $\{G(A_E)\}_R < 0$. The net value for $G(A_E)$ will depend upon the balance of these oposite effects; $G(A_E)$ is presumably negative (18), but it might happen that the release of latent heat could alter at times the sign of $G(A_E)$.

In these disturbances the covariance between T and ω is negative ($[\overline{\omega\, T}]_E < 0$) and there is a conversion of eddy available potential energy into eddy kinetic energy, $C(A_E K_E) > 0$. The condensation process reinforces the vertical motion field by heating warm rising air, thus augmenting the rate of generation of eddy

kinetic energy by baroclinic processes. AUBERT (23) has shown the importance of this effect.

It is also interesting to point out that, since the large-scale condensation and evaporation processes are accompanied simultaneously by rising of warm air and sinking of cold air, respectively, the available energy so generated is not exposed to the dissipation through long wave radiation as it would happen, with the potential energy generated by the transport of sensible heat. Probably the efficiency of the conversion of available potential energy generated through the release of latent heat into kinetic energy is very high.

The strong precipitation observed in equatorial regions due to the Hadley cell contributes decisively to the production of zonal available potential energy because the release of latent heat occurs in regions where the temperature is already higher than average and almost zonally uniform ($[\overline{T}]''[\overline{Q}_L]'' > 0$). It might appear, at first glance, that the secondary maximum in the curve of $\mathscr{L}(\varphi) \equiv < \overline{L}_j(0) \uparrow >$ at high latitudes is associated with the destruction of zonal available potential energy, because heating is taking place in a region where the zonally averaged temperature is relatively lower. However, in this case, the zonally averaged picture is misleading, for, as we have seen above, the heating due to the release of latent heat at these latitudes occurs selectively in the warm air giving rise, *de facto*, to the generation of eddy available potential energy, $G(A)_E > 0$. When we take the zonal average of the rate of generation of available potential energy, we find, in fact, that there is a relative maximum in these latitudes.

Let us consider still another aspect of the energy cycle where the effects of water vapor must be taken into account. All energy conversion processes involving available potential energy are dependent upon static stability. We note that static stability occurs in the denominators of equations (21), (23), (24), (39), (41), (43). The direction of conversion between available potential energy and kinetic energy depends upon the sign of this term, and the rate depends upon its numerical value, all other things being considered constant. If, initially, the reaction proceeded so as to generate kinetic energy, then eventually, the rising of warm air and sinking of cold air involved in the process, if unopposed by other factors, would stabilize the atmosphere, thus bringing the reaction to a halt. However, the release of latent heat alters this situation in the following manner. The condensation process occurs mainly near the 700 mb level, which is below the level of maximum rate of energy conversion. Hence, the

release of latent heat destabilizes the atmosphere in the regions where kinetic energy is being generated, thus contributing to the perpetuation of the conversion processes, because the dominant baroclinic waves become more unstable and the release of latent heat leads to an acceleration of their growth.

The adiabatic lapse rate Γ_d that figures in the stability parameter γ in various equations is applicable only in an unsaturated environment. In a saturated atmosphere it must be replaced by Γ_s, if the pseudo-adiabatic assumption is to be used. Hence, in a saturated atmosphere the rate of energy generation and conversion will have to be adjusted by the factor:

$$\frac{\Gamma_s}{\Gamma_d}\frac{(\Gamma-\Gamma_d)}{(\Gamma-\Gamma_s)}$$

5.3. *Heating of the atmosphere due to condensation*

A possible functional representation for $\dot{Q}_L$ can be obtained from the balance equation for the water component. At a given isobaric level p, the rate of heating, ${}_p\dot{Q}_L$, due to the condensation of dq grams of water vapor is given by:

$${}_p\dot{Q}_L = -L\frac{dq}{dt} \tag{47}$$

Using the water vapor continuity equation we can write the previous equation, averaging in time:

$${}_p\overline{\dot{Q}}_L = -L\left(\frac{\partial\overline{q}}{\partial t} + \overline{\mathbf{v}\cdot\nabla q} + \overline{\omega\frac{\partial q}{\partial p}}\right) \tag{48}$$

This equation transformed with the equation of continuity can be written as follows:

$${}_p\overline{\dot{Q}}_L = -L\left(\frac{\partial\overline{q}}{\partial t} + \nabla\cdot\overline{q\,\mathbf{v}} + \frac{\partial\overline{q\omega}}{\partial p}\right) \tag{49}$$

We should also include in this equation the vertical eddy difusion due to small scale turbulence. However, in large scale processes this effect can be neglected.

The vertical integration of this equation leads to the equation of the divergence of total water vapor transport referred in the previous paragraph:

$$\int_{p}^{p_0} \dot{\bar{Q}}_L \, dp \equiv \overline{\dot{Q}_L} = -L \frac{\partial \overline{W}}{\partial t} - L \, div \, . \, \overline{\mathbf{Q}} \tag{50}$$

because the contribution of the terms in ω and q, due to the boundary conditions is zero.

The analysis of the divergence of water vapor transport, proportional to the heating associated with the release of latent heat, shows centers of convergence ($div \, . \, \overline{\mathbf{Q}} < 0$) alterning with centers of divergence ($div \, . \, \overline{\mathbf{Q}} > 0$) over all the northern hemisphere (12). Therefore the spatial distribution the heating of the atmosphere due to the release of latent heat is not uniform. This illustrates the need for considering, in all problems involving the generation of available potential energy, the actual spatial covariance of the divergence of water vapor and temperature, rather than the covariance of the covariance of the zonally averaged values of the respective fields.

With the usual REYNOLDS expansion equation (49) will assume the form:

$${}_{p}\dot{Q}_L = -L \left(\frac{\partial \bar{q}}{\partial t} + \nabla \cdot \overline{q' \mathbf{v}'} + \frac{\partial \overline{\omega' q'}}{\partial p} + \nabla \cdot \bar{q} \bar{\mathbf{v}} + \frac{\partial \bar{\omega} \bar{q}}{\partial p} \right); \tag{51}$$

In a (λ, φ, p, t) coordinate system this equation is written:

$$\begin{aligned} {}_{p}\dot{Q}_L &= -L \left(\frac{\partial \bar{q}}{\partial t} \right) - L \frac{1}{a \cos \varphi} \left(\frac{\partial \overline{q}}{\partial \lambda} + \frac{\partial \overline{q v} \cos \varphi}{\partial \varphi} + \frac{\partial \overline{\omega q}}{\partial p} \right) \\ &= -L \frac{\partial \bar{q}}{\partial t} - L \frac{1}{a \cos \varphi} \left(\frac{\partial \overline{u' q'}}{\partial \lambda} + \frac{\partial \overline{q' v'}}{\partial \varphi} \cos \varphi + \frac{\partial \overline{\omega' q'}}{\partial p} \right) - \\ &\quad - L \frac{1}{a \cos \varphi} \left(\frac{\partial}{\partial \lambda} \bar{u} \bar{q} + \frac{\partial}{\partial \varphi} \bar{q} \bar{v} \cos \varphi + \frac{\partial}{\partial p} \bar{\omega} \bar{q} \right) \end{aligned} \tag{52}$$

In the long time average the local change $\frac{\partial \bar{q}}{\partial t}$ is very small and can be disregarded in comparison with the other terms. All the other terms, except $\frac{\partial \overline{q' \omega'}}{\partial p}$ and $\frac{\partial \bar{\omega} \bar{q}}{\partial p}$ can be computed from hemispheric humidity charts such as those already published (6).

The local values of the divergence associated with the transport of water vapor by the transient and standing eddies, $\nabla \cdot \overline{q'\mathbf{v}'}$, and $\nabla \cdot \overline{q}\,\overline{\mathbf{v}}$ are of the same order of magnitude. However, the mass integral for all the atmosphere gives in general higher values for the divergence associated with the standing eddies ($\nabla \cdot \overline{q^*}\,\overline{\mathbf{v}^*}$) than those associated with the divergence of transient eddies ($\nabla \cdot \overline{q'\mathbf{v}'}$). The values of the divergence, $\nabla \cdot \overline{q}\,\overline{\mathbf{v}}$, decrease rapidly with the altitude because $\overline{q}$ becames very small as the height incrases. The values of $\nabla \cdot \overline{q'\mathbf{v}'}$ decrease also with height, with a maximum at 850 mb level.

The evaluation of the vertical divergence given by the terms $\frac{\partial \overline{q'\omega'}}{\partial p}$ and $\frac{\partial \overline{q}\,\overline{\omega}}{\partial p}$ depends on the knowledge of the ω-field at various levels. The values of ω could be obtained from the observations using the method suggested by BARNES (24). For a given layer of the atmosphere the vertical divergence of water vapor may have values comparable to those of the horizontal divergence (and perhaps of oposite sign). However, for all the atmosphere, since the integration has to be done in p, the horizontal divergence field will predominate in view of the boundary values of $\overline{q}$ and $\overline{\omega}$ at the bottom and at the top of the atmosphere.

5.4. *Generation of available potential energy due to release of latent heat*

Since the effects of water vapor are so complex we shall only discuss here the effects of phase changes of water vapor in the atmosphere. Simultaneously a method for computing the rate of generation of available potential energy due to release of latent heat wil be presented.

The generation of available potential energy due to the release of latent heat is obtained substituing $\dot{Q}$ by the value of $\dot{Q}_L$, as given by equation (51), in the expressions (41) and (43):

$$G(A_M) = \int \gamma\, [\overline{T}]''\, [\overline{Q}]''\, dm$$

$$G(A_E) = \int \gamma\, [\overline{T'\,Q'} + \overline{T}^*\,\overline{Q}^*]\, dm$$

The rate of generation of zonal available potential energy due to the release of latent heat is therefore:

$$G(A_M)_L = -L\int \gamma\,[\overline{T}]''\frac{\partial\,[\overline{q}]''}{\partial t}\,dm - L\int \gamma\,[\overline{T}]''\,\nabla\cdot[\overline{q\,\mathbf{v}}'']\,dm - \\ - L\int \gamma\,[\overline{T}]''\frac{\partial\,[\overline{q\,\omega}]''}{\partial p}\,dm \tag{53}$$

The rate of generation of eddy available potential energy will be given by:

$$G(A_E)_L = -L\int \gamma\left[\overline{T'\frac{\partial q'}{\partial t}}\right]dm - L\int \gamma\,[\overline{T'\,\nabla\cdot(q\,\mathbf{v})'}]\,dm - \\ - L\int \gamma\left[\overline{T'\frac{\partial\,(q\,\omega)'}{\partial p}}\right]dm - L\int \gamma\left[\overline{T}^*\frac{\partial\overline{q}^*}{\partial t}\right]dm - \\ - L\int \gamma\,[\overline{T}^*\,\nabla\cdot\overline{q\,\mathbf{v}}^*]\,dm - L\int \gamma\left[\overline{T}^*\frac{\partial\overline{q\,\omega}^*}{\partial p}\right]dm \tag{54}$$

For computation purposes it is more convenient to write the expressions of $G(A_M)_L$ and of $G(A_E)_L$ in the (λ, φ, p, t) coordinate system as we did above.

In principle all the terms of $G(A_M)_L$ and of $G(A_E)_L$ due to the release of latent heat could be computed by using time series of spatial isobaric distributions (charts) of the fields of T, q and of $\overline{q\,\mathbf{v}} \equiv (\overline{q\,u}\,\mathbf{i} + \overline{q\,v}\,\mathbf{j} + \overline{q\,\omega}\,\mathbf{k})$. Through the analysis of these charts with a suitable grid point the calculations could be made using the standard finite differences method.

In longe time average the local change $\frac{\partial\overline{q}}{\partial t}$ is very small and can be neglected. However, for short time intervals, it may become significant, and cannot be disregarded in the evaluation of the covariances.

The contribution of the terms $\left[\overline{T'\frac{\partial\,(\omega\,q)'}{\partial p}}\right]$ and $\left[\overline{T}^*\frac{\partial\,(\overline{q\,\omega})^*}{\partial p}\right]$ for all the atmosphere is proportional to the difference of the surface covariances of $\overline{q\,\omega}$ and $\overline{T}$ over the boundary surfaces Σ_1 and Σ_2 of the atmosphere. In fact we may write for the last term:

$$\left[\overline{T}^*\frac{\partial\,\overline{(\omega q)}^*}{\partial p}\right] = \left[\frac{\partial}{\partial p}(\overline{T}^*\,(\overline{\omega}\,\overline{q})^*)\right] - \left[(\overline{\omega}\,\overline{q})^*\frac{\partial\,\overline{T}^*}{\partial p}\right] \tag{55}$$

The second term on the right hand side may be neglected because we accept as a good approximation that

$$\frac{\partial T}{\partial p} \simeq \frac{[T]}{\partial p} \tag{56}$$

For all the atmosphere, since $dm = g^{-1}\, dp\, d\Sigma$, the resulting contribution will be:

$$\iiint \left[\overline{T}^* \frac{\partial (\overline{\omega p})^*}{\partial p}\right] dm = \iiint_o^{p_o} \frac{\partial}{\partial p} [\overline{T}^* (\overline{\omega q})^*] \frac{dp}{g}\, d\Sigma =$$

$$= g^{-1} \iint_\Sigma [\overline{T}^*\, \overline{\omega q}^*]\, d\Sigma \Big|_o^{p_o} =$$

$$= g^{-1} \iint_{\Sigma_1} [\overline{T}^*\, \overline{\omega q}^*]\, d\Sigma_1 - g^{-1} \iint_{\Sigma_2} [\overline{T}^*\, \overline{\omega q}^*]\, d\Sigma_2 \tag{57}$$

The values of these covariances are presumably very small in view of the boundary conditions at the bottom and at the top of the atmosphere for both quantities $\overline{q}$ and $\overline{\omega}$.

It is expected that this suggested method for computating $G(A_E)_L$ will lead to good estimates of the rate of generation of eddy available potential energy in extratropical regions due to release of latent heat. In low latitudes the estimates are not so good, because the mesoscale phenomena, so important for the vertical transport of water vapor in this region, have not been taken into account.

6. *FINAL COMMENTS*

We have seen that water vapor plays a vital role in the energetics of the general circulation. It is the most important absorber of solar energy in the atmosphere, and hence, its distribution influences the form of the energy input into the system. The release of latent heat constitutes another important energy input. Through this process the water vapor distribution significantly influences the motions, and motions, in turn, deform the water field. This complex feedback mechanism constitutes what is probably the most important non-adiabatic effect in the general circulation.

To illustrate its importance let us consider the highly simplified situation where a mean meridional cell has formed in response to the temperature difference between the air at two latitudes. Let us examine what happens if there is evaporation at the surface below the descending part of the cell, a transport of water vapor by the

lower branch, and precipitation in the area of ascent. In a crude qualitative sense, this corresponds to the Hadley cell at low latitudes. The release of latent heat due to the moisture transport by the cell increases the temperature difference between the two latitudes, thus increasing the strength of the motions. In effect, the rising air is being warmed by the latent heat release, and is thus forced to rise more rapidly. Continuity demands that the entire cell be strengthened by this effect.

Until recently the many dynamical models which have been put forth in an attempt to explain the features of the general circulation have been formulated for a dry atmosphere. This approach has been necessitated by the difficulties which arise when one tries to describe analytically the mechanism which transport water vapor. Very close to the ground (in the lowest few meters) microscale effects predominate, while at higher levels, mesoscale motions affect the vertical transports, and horizontal transports are accomplished predominantly by macroscale motions. Further complications arise when one attempts to specify the necessary and sufficient conditions for the condensation process to take place. The subsequent precipitation process is also extremely difficult to describe, even if a pseudoadiabatic process is assumed. Although some of these difficulties have been dealt with sucessfully in a recent model put forth by the staff of the Geophysical Fluid Dynamics Laboratory, of ESSA (Environmental Sciences Services Administration), Washington (25), the understanding of the role of the water vapor in the dynamics of the atmosphere has not yet reached the stage where any single model can accurately simulate all the above processes (26).

ACKNOWLEDGMENTS — The author is grateful to Professor VICTOR P. STARR for his continuous interest, encouragement and advice, to Dr. BARRY SALTZMAN for his fruitful comments and discussions; and to Dr. JOHN WALLACE for his valuable suggestions and criticisms and for his most helpful cooperation and substantial contributions throughout the course of this study. He is indebted to Com. PEDRO MAGALHÃIS for translating from russian some of the articles referred in this study. Acknowledgment is made of support from U. S. National Science Foundation in the performance of this research at M. I. T.

REFERENCES

(1) HOUGHTON, H. G. — Jour. of Meteo., **11**, 1, 1954.

(2) SUTCLIFFE, R. C. — Quart. J. R. Met. Soc., **82**, 385, 1956.

(3) STARR, V. P. — *Compendium of Meteorology*. Amer. Met. Soc., Boston, 1954.

(4) PEIXOTO, J. P. — Revista Faculdade Ciências de Lisboa, 2.ª série B — VI, 1958.

(5) SALTZMAN, B. — Jour. of Meteo., **14**, 66, 1957.

(6) PEIXOTO, J. P. — *Sci. Rpt.* No. 3, *General Circulation Project*, M. I. T., 1958.

(7) STARR, V. P., PEIXOTO, J. P. and LIVADAS, G. C. — Geof. Pura e Appl., **39**, 174, 1958.

(8) BUDYKO, M. I. — *Atlas of heat balance*, Leningrad, 1955.

(9) BUDYKO, M. I., BERYLAND, I. G. and ZUBENCK, L. I. — Bull. Acadm. Sc., U. S. R. R., Geog. Serv., **3**, 17, 1955.

(10) BUDYKO, M. I. — A. I. M. — UGGI, Toronto, 1957.

(11) STARR, V. P. and PEIXOTO, J. P. — Arch. f. Met., und Biokli., **14**, 111, 1964.

(12) STARR, V. P., PEIXOTO, J. P. and CRISI, A. — Tellus, **17**, 4, 1965.

(13) STARR, V. P. and WHITE, R. M. — *Final Report, Part* 2, General Circulation Project, M. I. T., 1954.

(14) STARR, V. P. and PEIXOTO, J. P. — Tellus, **10**, 189, 1958.

(15) PEIXOTO, J. P. — Revista Faculdade Ciências de Lisboa, 2.ª série B — VII, 25, 1959.

(16) MARGULES, M. — Jahrb. Kaiserlich-Koniglichen Zentralanstalt Meteor., 1903.

(17) LORENZ, E. N. — Tellus, **7**, 157, 1955.

(18) OORT, A. H. — Tellus, **16**, 309, 1964.

(19) NEWELL, R. E. — Jour. Geophys. Res., 68, 3949, 1963.

(20) STARR, V. P. — Jour. Meteor. Soc. of Japan, **36**, 167, 1958.

(21) PEIXOTO, J. P. — *Sci. Rpt.* No. 4, *Planetary Circulations Project*, M. I. T., 1960.

(22) PEIXOTO, J. P. — Prize «Artur Malheiros» of the Academy of Sciences of Lisbon, 1960.

(23) AUBERT, E. — M. I. T., Ph. D. Thesis, Dep. of Meteo., M. I. T., 1957.

(24) BARNES, A. A. — *Final Report* — C. No. AF19 (604) — 5223, *Planetary Circulations Project*, M. I. T., 1963.

(25) MANABE, S., SMAGORINSKI, J. and STRICKLER, R. — «*Simulated Climatology of a General Circulation Model with a Hidrologic Cycle*» — Geophysical Fluid Dynamics of ESSA, Washington 1965 (to be published in Month. Wea. Review).

(26) PEIXOTO, J. P. — Memórias da Academia das Ciências de Lisboa, vol. X, 1966.

VARIATIONAL APPROACH TO THE NUCLEAR COLLECTIVE MOTION (*)

J. DA PROVIDÊNCIA

(Laboratório de Física, Universidade de Coimbra - Portugal)

ABSTRACT — A new method for obtaining a classical collective hamiltonian is presented. The starting point is the many-body hamiltonian and the derivation is based on the variational principle of quantum mechanics. The force and mass parameters are determined without ambiguity by the single particle energies and by some matrix elements of the two-body interaction. The theory is applied to the dipole state of $^{16}0$. Our results, which have been obtained by a simple calculation, compare favourably with results obtained by the diagonalisation of the R. P. A. matrix, but the present method is valid even when the groundstate of the nucleus can not be represented by a single Slater determinant.

RÉSUMÉ — On présente une dérivation de l'hamiltonien collectif fondée sur le principe variationel dependent du temp de la mécanique quantique. La théorie developée est apliquée à l'étude de l'état dipolaire de $^{16}0$. Les résultats, obtenus par un calcul très simple, peuvent être comparés favorablement avec les résultats de la diagonalisation de la matrice de la R. P. A. La présente méthode est valable même quand l'état nucléaire fondamentale ne peut pas être représenté par un seul determinant de Slater.

1. *INTRODUCTION*

The collective behaviour of nuclei may be understood from two different starting points. The first one is based on a phenomenological collective hamiltonian (1) which governs the motion of a small number of collective variables, but contains unspecified parameters, to be

(*) Received December 4, 1965

determined experimentally. This approach leads to a relatively simple calculational scheme, but, since it is phenomenological, it contains arbitrary features. The second starting point for the description of collective states is based on the consideration of the exact many-body hamiltonian. This approach gives rise to the so called microscopic theory (2) of the collective motion, is more powerful, more fundamental, but is also harder to carry out in practice. Therefore it would be convenient to eliminate the arbitrariness from the collective hamiltonian used in the first approach by determining its parameters, not phenomenologically but from first principles. As it has recently been remarked by BELYAEV (3), who has investigated already this question, one would obtain in this way a method having the advantages, but not the drawbacks, of the two previously mentioned methods. Actually, the problem of determining the parameters of the collective hamiltonian on a more or less fundamental basis is not new, since it has been treated in the past by several authors (4). We will consider again the same problem, but from a different point of view, which is related to the time-dependent Hartree-Fock derivation of the Random Phase Approximation (R. P. A.). We will derive the equations of motion for the collective variables — and, therefore, the collective hamiltonian — by a rather simple procedure, based directly on the time dependent variational principle of quantum mechanics.

2. *THE COLLECTIVE HAMILTONIAN*

The exact hamiltonian of a N-body system, having two-body interactions between the particles, is of the form

$$H = \sum_{i=1}^{N} \frac{p_i^2}{2M} + \sum_{i<j=1}^{N} v_{ij} \quad . \tag{1}$$

Since in general it is practically impossible to diagonalise a hamiltonian of this kind, it is convenient to describe the states of the system to which it corresponds by means of an independent particle wave functions Φ. These model wave functions $\Phi = \Phi(\zeta)$ contain a number of real parameters ζ, corresponding to the size and deformation of the potential well with the help of which the single particle wave functions have been determined, or refering to the distance between the centers of the wells for protons and neutrons, etc. We may assume, without loss of generality, that the values $\zeta = 0$ of

the parameters minimize the expectation value of the hamiltonian,

$$\left[\frac{\partial}{\partial \zeta} < \Phi(\zeta) \mid H \mid \Phi(\zeta) >\right]_{\zeta=0} = 0 . \tag{2}$$

Then, the wave function $\Phi_o = \Phi(0)$ will represent the groundstate. It may be remarked that, since the wave functions $\Phi(\zeta)$ are (usually) real, for real ζ, the minimum of the expectation value of the hamiltonian will be obtained for $\zeta = 0$, even if one allows the parameters ζ to become complex.

In order to describe the excited states of our system we may use the time dependent variational principle (we consider $\hbar/2\pi = 1$),

$$-i\,[\,<\delta\Phi \mid \dot{\Phi}> - <\dot{\Phi} \mid \delta\Phi>\,] + \delta <\Phi \mid H \mid \Phi> = 0, \tag{3}$$

but now we must allow the parameters ζ to become complex,

$$\zeta = \xi + i\,\eta\ , \tag{4}$$

so that the norm of the wave functions is not preserved. Considering $\Phi(\zeta)$ to be real and normalized to unity for real ζ, we have, indeed,

$$<\Phi(\zeta) \mid \Phi(\zeta)> = <\Phi_o \mid \Phi_o> - \frac{1}{2}(\zeta^* - \zeta)^2 <\partial\Phi/\partial\xi \mid \partial\Phi/\partial\xi> + \ldots . \tag{5}$$

The wave function Φ must, therefore, be multiplied by a complex normalising factor. Instead of eq. (3), we obtain in this way the following equation (5)

$$-\frac{i}{2}\left[\delta\frac{<\Phi \mid \dot{\Phi}> - <\dot{\Phi} \mid \Phi>}{<\Phi \mid \Phi>} + \frac{d}{dt}\,\frac{<\delta\Phi \mid \Phi> - <\Phi \mid \delta\Phi>}{<\Phi \mid \Phi>}\right] + \\ + \delta\,\frac{<\Phi \mid H \mid \Phi>}{<\Phi \mid \Phi>} = 0 . \tag{6}$$

A simple calculation leads to the following results

$$-\frac{i}{2}\left[\delta\frac{<\Phi \mid \dot{\Phi}> - <\dot{\Phi} \mid \Phi>}{<\Phi \mid \Phi>} + \frac{d}{dt}\,\frac{<\delta\Phi \mid \Phi> - <\Phi \mid \delta\Phi>}{<\Phi \mid \Phi>}\right] = \\ = 2\,\mathrm{M}\,(\delta\xi\,\dot{\eta} - \delta\eta\,\dot{\xi}) \tag{7}$$

$$\frac{<\Phi \mid H \mid \Phi>}{<\Phi \mid \Phi>} = E_o + N\,\xi^2 + P\,\eta^2 + \ldots \tag{8}$$

with

$$E_o = <\Phi_o \mid H \mid \Phi_o> \tag{9}$$

$$M = <\partial\Phi / \partial\xi \mid \partial\Phi / \partial_\xi >_{\zeta=0} \tag{10}$$

$$N = \frac{1}{2}\left[\frac{\partial^2}{\partial\xi^2}<\Phi \mid H \mid \Phi>\right]_{\zeta=0} \tag{11}$$

$$P = 2 <\partial\Phi / \partial\xi \mid H \mid \partial\Phi / \partial\xi>_{\zeta=0} - 2\,E_o\,M - N \tag{12}$$

With the help of eq. (6) we arrive finally at the equations of motion for one collective variable, in the limit of small oscillations,

$$M\,\dot{\eta} + N\,\xi = 0\ , \tag{13}$$

$$M\,\dot{\xi} - P\,\eta = 0\ . \tag{14}$$

The case of several collective variables may also be obtained as a straight forward generalisation of these equations but, for simplicity, we do not consider that situation now. By eliminating η we finally have

$$\frac{M^2}{P}\,\ddot{\xi} + N\,\xi = 0\ , \tag{15}$$

so that the frequency of the collective oscillations, which can be interpreted as the excitation energy of the collective state, is given by

$$\omega_o = \frac{\sqrt{P\,N}}{M}\cdot \tag{16}$$

We are now able to write down the classical collective hamiltonian H_c, corresponding to eq. (15),

$$H_c = \frac{1}{2}\frac{\mathrm{P}}{\mathrm{M}^2}\,\not{p}_\xi^2 + \frac{1}{2}\,\mathrm{N}\,\xi^2, \tag{17}$$

where $\not{p}_\xi$ denotes the momentum conjugated with the variable ξ and is given by

$$\not{p}_\xi = \frac{\mathrm{M}^2}{\mathrm{P}}\,\dot{\xi} = \mathrm{M}\,\eta\,. \tag{18}$$

We obtain in this way a simple interpretation of the imaginary part of ζ.

If Φ_o is a SLATER determinant of orthonormalized single particle wave functions and if $\Phi(\xi)$ may be written in the form

$$\Phi(\xi) = exp\left[i\,\xi \sum_{i=1}^{N} \varkappa_i\right]\Phi_o\,, \tag{19}$$

where $\varkappa$ represents an hermitian operator, then we may rewrite eqs. (9) — (12) as follows

$$\mathrm{E}_o = \sum_i < i \mid \frac{\not{p}^2}{2\,M} \mid i > + \sum_{i<j} < ij \mid v \mid ij > \tag{20}$$

$$\mathrm{M} = \sum_{i\,m} < i \mid \varkappa \mid m > < m \mid \varkappa \mid i > \tag{21}$$

$$\mathrm{N} = -\frac{1}{2}\left[\sum_i < i \mid [\varkappa, [\varkappa, \frac{\not{p}^2}{2M}]] \mid i > \right.$$

$$\left. + \sum_{i<j} < ij \mid [\,(\varkappa_1 + \varkappa_2), [\,(\varkappa_1 + \varkappa_2), v_{12}\,]\,] \mid ij > \right], \tag{22}$$

$$\mathrm{P} = 2\Big\{\sum_{i\,m\,n} < i \mid \varkappa \mid m > \Big[< m \mid \frac{\not{p}^2}{2M} \mid n > + \sum_k < mk \mid v_{12} \mid nk > \Big] < n \mid \varkappa \mid i >$$

$$- \sum_{i\,j\,m} < m \mid \varkappa \mid i > \Big[< i \mid \frac{\not{p}^2}{2M} \mid j > + \sum_k < ik \mid v_{12} \mid jk > \Big] < j \mid \varkappa \mid m >$$

$$+ \sum_{i\,m\,j\,n} < i \mid \varkappa \mid m > < mj \mid v_{12} \mid in > < n \mid \varkappa \mid j > \Big\} - \mathrm{N}\,. \tag{23}$$

We use the letters i, j, k, etc., to denote occupied single particle states and the lecters m, n, etc., to denote unoccuppied states, and by the kets $| a\ b >$ we mean normalized antissymmetric two-body wave functions.

We end this section by noting that eqs. (13) and (14), governing the time evolution of the collective variable, might also have been derived, together with eqs. (20) — (23), from the THOULESS variational principle (2) for the R. P. A.. Nevertheless, in some sense, the present method is more general than the R. P. A., because it might be applied even if the groundstate could not be represented by a single Slater determinant (for instance, if the groundstate is the result of a superposition of two Slater determinants).

3. *TRANSITION PROBABILITIES*

We will study now the effect of an external time dependent field $W(t)$. In order to investigate the evolution of our system in the presence of this perturbation, we add to the previously calculated expectation value of the hamiltonian H (eq. (8)), the linear terms in ζ of the expectation value of $W(t)$,

$$\frac{< \Phi \mid W(t) \mid \Phi >}{< \Phi \mid \Phi >} = \mathrm{W}^{(0)}(t) + 2\,\xi\,\mathrm{W}^{(1)}(t) \tag{24}$$

with

$$\mathrm{W}^{(0)}(t) = < \Phi_o \mid W(t) \mid \Phi_o > , \tag{25}$$

$$\mathrm{W}^{(1)}(t) = < \partial\,\Phi \,/\, \partial\,\xi \mid W(t) \mid \Phi >_{\zeta=0} . \tag{26}$$

Now we have, with the help of the variational principle expressed by eq. (6),

$$\mathrm{M}\,\dot{\eta} + \mathrm{N}\,\xi + \mathrm{W}^{(1)}(t) = 0 , \tag{27}$$

$$\mathrm{M}^{\cdot} - \mathrm{P}\,\eta = 0 . \tag{28}$$

Although it is very easy to integrate this system as it stands, it is convenient to make the transformation

$$\zeta = \xi + i\,\eta , \tag{29}$$

$$\zeta^* = \xi - i\,\eta , \tag{30}$$

in order to establish the connection with the usual R. P. A. result (2). The equations for the variables ζ, ζ^* may be cast into the matrix form

$$i\,\mathrm{M}\begin{pmatrix} \dot{\zeta} \\ -\dot{\zeta}^* \end{pmatrix} - \begin{pmatrix} \frac{1}{2}(\mathrm{N}+\mathrm{P}) & \frac{1}{2}(\mathrm{N}-\mathrm{P}) \\ \frac{1}{2}(\mathrm{N}-\mathrm{P}) & \frac{1}{2}(\mathrm{N}+\mathrm{P}) \end{pmatrix}\begin{pmatrix} \zeta \\ \zeta^* \end{pmatrix} = \mathrm{W}^{(1)}(t)\begin{pmatrix} 1 \\ 1 \end{pmatrix}. \tag{31}$$

We start by considering the eigenvalue problem,

$$\mathrm{M}\,\omega\begin{pmatrix} x \\ -y \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} \frac{1}{2}(\mathrm{N}+\mathrm{P}) & \frac{1}{2}(\mathrm{N}-\mathrm{P}) \\ \frac{1}{2}(\mathrm{N}-\mathrm{P}) & \frac{1}{2}(\mathrm{N}+\mathrm{P}) \end{pmatrix}\begin{pmatrix} x \\ y \end{pmatrix}. \tag{32}$$

The solutions of this problem are the following

$$\begin{pmatrix} x_{+1} \\ y_{+1} \end{pmatrix} = \frac{1}{2}(\mathrm{N}\,\mathrm{P})^{-\frac{1}{4}}\begin{pmatrix} \sqrt{\mathrm{N}}+\sqrt{\mathrm{P}} \\ \sqrt{\mathrm{N}}-\sqrt{\mathrm{P}} \end{pmatrix},\quad \omega_{+1} = \omega_o \tag{33}$$

$$\begin{pmatrix} x_{-1} \\ y_{-1} \end{pmatrix} = \frac{1}{2}(\mathrm{N}\,\mathrm{P})^{-\frac{1}{4}}\begin{pmatrix} \sqrt{\mathrm{N}}-\sqrt{\mathrm{P}} \\ \sqrt{\mathrm{N}}+\sqrt{\mathrm{P}} \end{pmatrix},\quad \omega_{-1} = -\omega_o \tag{34}$$

These eigenvectors satisfy the following normalisation condition

$$(x_\lambda \quad -y_\lambda)\begin{pmatrix} x_\gamma \\ y_\gamma \end{pmatrix} = \frac{\omega_\gamma}{|\,\omega_\gamma\,|}\,\delta_{\lambda\gamma}. \tag{35}$$

In order to solve eq. (31) we expand the vector $(\zeta \;\; \zeta^*)$ in the basis of the eigenvectors of eq. (32)

$$\begin{pmatrix} \zeta(t) \\ \zeta^*(t) \end{pmatrix} = \sum_\lambda c_\lambda(t)\begin{pmatrix} x_\lambda \\ y_\lambda \end{pmatrix} e^{-i\omega_\lambda t} \tag{36}$$

Then, eqs. (31) and (35) lead to the following equation for the quantities $c_\lambda(t)$,

$$i\,\mathrm{M}\,\dot{c}_\lambda = \lambda\,(x_\lambda + y_\lambda)\,\mathrm{W}^{(1)}(t)\,e^{i\omega_\lambda t} = \lambda\,(\mathrm{N}/\mathrm{P})^{\frac{1}{4}}\,\mathrm{W}^{(1)}(t)\,e^{i\omega_\lambda t} \tag{37}$$

This equation is easily integrated. Assuming the field $W(t)$ is switched on at time $-T$, we get for $c_\lambda(T)$,

$$c_\lambda(T) = -i\frac{\lambda}{M}\left(\frac{N}{P}\right)^{\frac{1}{4}} \int_{-T}^{+T} W^{(1)}(t)\ e^{i\omega_\lambda t}\ dt$$

$$\cong -i\frac{\lambda}{M}\left(\frac{N}{P}\right)^{\frac{1}{4}} 2\pi\, W^{(1)}(\omega_\lambda)\ , \tag{38}$$

where we denote by $f(\omega)$ the FOURIER transform of $f(t)$,

$$f(\omega) = \frac{1}{2\pi}\int_{-\infty}^{+\infty} f(t)\ e^{i\omega t}\ dt \tag{39}$$

In order to interpret eq. (29) we consider now the change in the expectation value of the unperturbed hamiltonian. A simple calculation yields

$$\frac{<\Phi \mid H \mid \Phi>}{<\Phi \mid \Phi>} - E_o = \frac{1}{2}(\zeta^* \quad \zeta)\begin{pmatrix} \frac{1}{2}(N+P) & \frac{1}{2}(N-P) \\ \frac{1}{2}(N-P) & \frac{1}{2}(N+P) \end{pmatrix}\begin{pmatrix} \zeta \\ \zeta^* \end{pmatrix} \tag{40}$$

$$= \omega_o M\, c_{+1}\, c_{-1}$$
$$= \omega_o M \mid c_{+1} \mid^2 \ .$$

This result shows that the matrix element of an operator W, between the groundstate $|0)$ and the excited (dipole) state $|d)$, should be identified with

$$(d \mid W \mid 0) = \frac{1}{\sqrt{M}}\left(\frac{N}{P}\right)^{\frac{1}{4}} W^{(1)} \ . \tag{41}$$

We note, finally, that under the hypothesis of eq. (19), $W^{(1)}$ may be written

$$W^{(1)} = -i \sum_{in} <i \mid \varkappa \mid n> <n \mid W \mid i> \ . \tag{42}$$

4. *NUMERICAL EXAMPLE: THE DIPOLE STATE OF* ^{16}O. *CONCLUSIONS.*

As a numerical example we will investigate the dipole state of ^{16}O. We will represent the groundstate of this nucleus by a Slater determinant of harmonic oscillator wave functions and we will neglect the spin orbit splitting (this is permissible because ^{16}O is a closed shell nucleus in both *j-j* and *L-S* coupling schemes). The single particle wave functions may, therefore, be represented by

$$|\, i\,) = |\, t_i\,)\, |\, s_i\,)\, |\, \mu_i\,) \tag{43}$$

were $|\, t_i)$ denotes an isospin statevector, $|\, s_i)$ a spin statevector and $|\, \mu_i)$ an orbital wave function. Actually $|\, \mu_i) = |\, \mu_i', \mu_i'', \mu_i''')$ the quantum numbers μ_i', μ_i'' and μ_i''' denoting the number of oscillator quanta in the three spacial directions. We only need the following one-dimensional oscillator wave functions

$$\varphi_o(q) = \sqrt{\frac{\alpha}{\pi}}\, e^{-\frac{1}{2}\alpha q^2} \tag{44}$$

$$\varphi_1(q) = \sqrt{\frac{\alpha}{\pi}} \cdot \sqrt{2\alpha}\, q\, e^{-\frac{1}{2}\alpha q^2} \tag{45}$$

$$\varphi_2(q) = \sqrt{\frac{\alpha}{\pi}} \cdot \frac{1}{\sqrt{2}} (2\alpha q^2 - 1)\, e^{-\frac{1}{2}\alpha q^2} \tag{46}$$

We assume a δ-function 2-body interaction, which we write in standard notation,

$$v_{12} = V_o (a + b\, \vec{\sigma}_1 \cdot \vec{\sigma}_2 + c\, \vec{\tau}_1 \cdot \vec{\tau}_2 + d\, (\vec{\sigma}_1 \cdot \vec{\sigma}_2)\, (\vec{\tau}_1 \cdot \vec{\tau}_2))\, \delta(\vec{r}_1 - \vec{r}_2) \tag{47}$$

The parameter ξ is the distance between the centers of the wells for protons and neutrons. We describe the dipole oscilations of ^{16}O with the help of the wave function

$$\Phi(\vec{r}_1, \vec{r}_2, \ldots, \vec{r}_{N/2}, \vec{r}_1', \vec{r}_2', \ldots, \vec{r}_{N/2}') =$$
$$= \Phi_o(\vec{r}_1 + \tfrac{\vec{\xi}}{2}, \vec{r}_2 + \tfrac{\vec{\xi}}{2}, \ldots, \vec{r}_{N/2} + \tfrac{\vec{\xi}}{2}, \vec{r}_1' - \tfrac{\vec{\xi}}{2}, \vec{r}_2' - \tfrac{\vec{\xi}}{2}, \ldots, \vec{r}_{N/2}' - \tfrac{\vec{\xi}}{2}),$$

where $\vec{r}$ and $\vec{r'}$ are the coordinates of protons and neutrons. The wave function Φ may also be written in the form

$$\Phi = exp\left[-i\frac{\xi}{2}\sum_{k=1}^{N}\tau_{z_k}\,p_{z_k}\right]\Phi_o\ . \tag{48}$$

Denoting now by $\mu, \nu, \lambda, \ldots$ the occupied space orbitals and by $\sigma, \rho, \ldots$ the unoccupied space orbitals, we have, with the help of eqs. (20)-(23),

$$\begin{aligned} M &= \sum_{\mu\rho}(\mu\,|\,p_z\,|\,\rho)\,(\rho\,|\,p_z\,|\,\mu) \\ &= 2\,\alpha \end{aligned} \tag{49}$$

$$\begin{aligned} N &= -\frac{V_o}{2}(a-2\,c-3\,d)\sum_{\mu\nu}(\mu\nu|\,[(p_{z_1}+p_{z_2}),[(p_{z_1}+p_{z_2}),v_{12}]]\,|\,\mu\nu) \\ &= -V_o\left(\frac{\alpha}{2\pi}\right)^{\frac{3}{2}}(a-2\,c-3\,d)\ .\ \frac{19}{2}\,\alpha \end{aligned} \tag{50}$$

$$\begin{aligned} P+N = 2\Big\{&\sum_{\mu\rho}(\mu\,|\,p_z\,|\,\rho)\Big[(\rho\,|\,\frac{\vec{p}^2}{2M}\,|\,\rho)+V_o(3\,a-3\,b-3\,c-9\,d) \\ &\sum_{\lambda}(\mu\,\lambda\,|\,\delta(\vec{r}_1-\vec{r}_2)\,|\,\rho\,\lambda) \\ &-\Big((\mu\,|\,\frac{\vec{p}^2}{2M}\,|\,\mu)+V_o(3\,a-3\,b-3\,c-9\,d) \\ &\sum_{\lambda}(\mu\,\lambda\,|\,\delta(\vec{r}_1-\vec{r}_2)\,|\,\mu\,\lambda)\Big)\Big](\rho\,|\,p_z\,|\,\mu) \\ &+V_o(-a-3\,b+5\,c+3\,d)\sum_{\mu\rho\nu\sigma}(\mu\,|\,p_z\,|\,\rho) \\ &(\rho\,\nu\,|\,\delta(\vec{r}_1-\vec{r}_2)\,|\,\mu\,\sigma)\,(\sigma\,|\,p_z\,|\,\nu)\Big\} \\ = \frac{2}{M}\alpha^2 &- V_o\left(\frac{\alpha}{2\pi}\right)^{\frac{3}{2}}(4\,a-8\,c-12\,d)\ .\ \frac{19}{8}\,\alpha\ . \end{aligned} \tag{51}$$

For the dipole operator

$$D = \frac{1}{2}\sum_i \tau_{z_i}\,z_i \tag{52}$$

we have

$$\begin{aligned} D^{(1)} &= < \partial \Phi \,/\, \partial \xi \,|\, D \,|\, \Phi >_{\zeta=0} \\ &= -i \sum_{\mu\rho} (\mu \,|\, z \,|\, \rho)\ (\rho \,|\, \dot{p}_z \,|\, \mu) \\ &= \mathrm{M}\,\alpha^{-1} \ . \end{aligned} \tag{53}$$

The size of the oscillator well and parameters of the force are given the same numerical values which had been used by BROWN, CASTILLEJO and EVANS (6)

$$\sqrt{\alpha} = 0{,}675 \ \ f^{-1} \ , \qquad a = 0{,}865 \ ,$$

$$\frac{V_o}{4\pi}\,\alpha^{\frac{3}{2}} = -8{,}5 \ Mev \ , \qquad b = 0{,}135 \ ,$$

$$c = d = 0 \ .$$

Considering also that $\mathrm{M}^{-1} = 41,\ 48\ Mev$ and using eqs. (16) and (41), we finally get

$$\omega_o = 24{,}5 \ Mev \ ,$$
$$(d \,|\, \mathrm{D} \,|\, 0) \ = \ 2\,f \ .$$

We have obtained the whole dipole strength localized in one single level because we are using a collective hamiltonian to describe the nuclear dinamics. Of course, in actual fact the dipole strength appears distributed over several levels, and if one solves the complete R. P. A. equations (7), the main features of the structure of the dipole state appear already. With the exception of this aspect our slide-rule results agree well with the results of more sophisticated calculations (consider, for instance, ref. (7)).

ACKNOWLEDGEMENTS — We are deeply indebted to Prof. J. R. DE ALMEIDA SANTOS for his kind interest in the present work and for the facilities provided at the Laboratório de Física da Universidade de Coimbra.

We are also very grateful to Profs. D. BRINK, F. VILLARS and V. GILLET for very interesting discussions relating to this work.

Finally we aknowledge a grant from «Comissão de Estudos de Energia Nuclear, Instituto de Alta Cultura».

REFERENCES

(1) Å. BOHR — Mat. Fys. Medd. Dan. Vid. Selsk., No. 14, (1952).
(2) M. BARANGER — Phys. Rev., 120, (1960), 957;
D. J. THOULESS — Nuclear Physics, 22, (1961), 78.

(3) S. T. BELYAEV — Nuclear Physics, 64, (1965), 17.
(4) J. M. ARAÚJO — Nuclear Physics, 1, (1956), 259;
13, (1959), 360.
E. R. MARSHALEK and J. O. RASMUSSEN — Nuclear Physics, 43, (1963), 438.
P. VAN LEUVEN — Nuclear Physics, 45, (1963), 591.
(5) J. DA PROVIDENCIA — Nuclear Physics, 46, (1963), 401.
(6) G. E. BROWN, L. CASTILLEJO and J. A. EVANS — Nuclear Physics, 22, (1961), 1.
(7) V. GILLET — Rapport C E A, No. 2177 (Saclay, 1962).

Bertrand (Irmãos), Lda. — Lisboa

Toute la correspondance concernant la rédaction de PORTUGALIAE PHYSICA doit être adressée à

PORTUGALIAE PHYSICA
Laboratório de Física da Faculdade de Ciências
LISBOA - 2 (Portugal)

Prix de l'abonnement:	250 escudos (US $8.50) par volume
Prix des volumes déjà parus:	300 escudos (US $10)
Prix du fascicule:	75 escudos (US $2.50)

Les membres de la "Sociedade Portuguesa de Química e Física" ont une réduction de 50 % sur les prix indiqués.

Les Universités, les Laboratoires de Physique, les Académies, les Sociétés Scientifiques et les Revues de Physique sont invités à recevoir cette revue en échange de leurs publications.

PORTUGALIAE PHYSICA donnera un compte-rendu detaillé de tous les ouvrages soumis à la rédaction en deux exemplaires.

All mail concerning PORTUGALIAE PHYSICA to be addressed to:

PORTUGALIAE PHYSICA
Laboratório de Física da Faculdade de Ciências
LISBOA - 2 (Portugal)

Subscription rates:	250 escudos (US $8.50) per volume
Price of past volumes:	300 escudos (US $10)
Price of copy:	75 escudos (US $2.50)

Members of the "Sociedade Portuguesa de Química e Física" may obtain *Portugaliae Physica* at a reduced price (50 %).

Universities, Physics Laboratories, Academies, Scientifica Societies and Physics Publications are invited to receive this review in exchange for their publications.

PORTUGALIAE PHYSICA will give a detailed report of any book if two copies have been submitted.

PORTUGALIAE PHYSICA

VOLUME 4
FASCÍCULO 3
1 9 6 6

INSTITUTO DE ALTA CULTURA
CENTRO DE ESTUDOS DE FÍSICA DAS UNIVERSIDADES PORTUGUESAS

PORTUGALIAE PHYSICA

Fundadores: A. Cyrillo Soares, M. Telles Antunes, A. Marques da Silva, M. Valadares.

VOLUME 4 1966 FASCÍCULO 3

VOLUMES PUBLICADOS:

Vol. 1 — 1943-45 — 326 pp.
Vol. 2 — 1946-47 — 256 pp.
Vol. 3 — 1949-54 — 173 pp.

Redacção: Laboratório de Física da Faculdade de Ciências — Lisboa-2 (Portugal)

Comissão de redação:

J. Moreira de Araújo — Carlos Braga — Carlos Cacho — A. Pires de Carvalho — M. Abreu Faro — J. Gomes Ferreira — António Gião — F. Bragança Gil — Manuel Laranjeira. Amaro Monteiro — J. Pinto Peixoto — J. da Providência — Lídia Salgueiro — J. de Almeida Santos — José Sarmento — António da Silveira — J. Veiga Simão.

ÍNDICE

(Table des matières)

Solutions singulières et guidage du photon d'après la théorie de la fusion, par THIOUNN MUMM 185

The ordering of the σ-phase Cr_2 Ru, by L. M. ALTE DA VEIGA.... 205

Étude de la désintégration du noyau de tungstène 187, par F. WIDEMANN et C. SEBILLE 215

CDU 53 (469) (05)

PORTUGALIAE PHYSICA

VOLUME 4
FASCÍCULO 3
1 9 6 6

SOLUTIONS SINGULIÈRES ET GUIDAGE DU PHOTON D'APRÈS LA THÉORIE DE LA FUSION (*)

THIOUNN MUMM
(Institut Henri Poincaré — 11, rue Pierre Curie, Paris V)

RÉSUMÉ — La première partie de cet exposé reprend brièvement quelques points de la théorie de la double solution et de la théorie de la fusion de M. Louis de Broglie. On écrit alors les solutions singulières des équations du photon, obtenues par la fusion de deux solutions des équations de Dirac, et on montre que, sous des conditions très simples, ces solutions obéissent au théorème du guidage. Dans la dernière partie ces résultats sont illustrés par un exemple.

1. *THÉORIE DE LA DOUBLE SOLUTION ET GUIDAGE D'UNE PARTICULE*

Dans sa théorie de la double solution [1], M. L. DE BROGLIE admet que la fonction d'onde Ψ, considérée usuellement en Mécanique ondulatoire, ne fournit qu'une représentation statistique des propriétés de la particule, la véritable onde physique devant être une onde u dont l'amplitude est très grande à l'endroit où se trouve localisé le corpuscule. En dehors de cette région, l'onde u se réduit à une onde regulière qui coincide sensiblement (à une constante de normalisation près) avec l'onde Ψ ordinaire.

Précisons quelque peu ces hypothèses. Soit pour fixer les idées, l'équation d'onde

$$A(\Psi) = \Box \Psi - K^2 \Psi = 0 . \qquad (1)$$

(*) Reçu le 5 juin 1966.

Ψ doit vérifier cette équation en tout point de l'espace, u ne la vérifie que dans le complémentaire de la région où son amplitude est très grande. Dans la région «singulière» elle-même, u doit vérifier une équation du genre

$$A\ (u) = T\ (u) \tag{2}$$

où $T\ (u)$ est un second membre dont la forme exacte reste pour l'instant inconnue. Il semble naturel de supposer que les dimensions de la région singulière sont de l'ordre de 10^{-13} cm, qui est l'ordre de grandeur généralement admis pour le «rayon» des particules connues.

Ignorant $T\ (u)$, il ne nous est pas possible de connaître la forme exacte de u. Mais on peut espérer en obtenir une forme approchée en considérant des ondes u', possédant une singularité du type pôle et qui vérifient l'équation (1) partout, sauf au voisinage du point singulier. Nous admettrons donc que u' donne une bonne représentation de u partout en dehors d'une boule de rayon 10^{-13} cm entourant le pôle de u'; étant donné qu'à l'intérieur de cette boule on doit remplacer u' par u, la véritable fonction d'onde u ne présente nulle part d'amplitude infinie. De ce fait, la divergence éventuelle de l'intégrale de u' prise dans un domaine comprenant le point singulier ne soulève pour nous aucune difficulté.

Dans ce qui suit nous ne considérons que des ondes de type u' et nous les appellerons solutions singulières de l'équation (1) au sens de DE BROGLIE.

Précisons notre pensée par quelques exemples. Le potentiel retardé de Liénard-Wiéchert et celui de Lorentz présentent tous deux une singularité du type pôle et sont solutions de l'équation

$$\Box\ \Psi = 0 \tag{3}$$

en dehors d'un voisinage de ce pôle. Ce sont donc des solutions singulières au sens de DE BROGLIE de l'équation (3). Nous savons que ces deux potentiels sont chacun en tout point de l'espace solutions distributions d'une équation du type (2), où le second membre est lui-même une distribution. Par exemple, pour le potentiel retardé de Lorentz on aura

$$T\ (u) = -4\ \pi\ \delta \tag{2'}$$

où δ désigne la distribution de Dirac.

On observera que les intégrales des dérivées partielles premières de ces deux potentiels sont encore convergentes dans tout domaine fini de l'espace, mais il n'en sera plus de même pour leurs dérivées d'une ordre plus élevé. Toutes ces dérivées partielles ne sont pas des solutions distributions des équations de type (2) à second membre distribution. Cependant, nous les considérons comme des solutions singulières des équations (3) au sens de DE BROGLIE.

Étudions maintenant comment l'onde Ψ habituelle exprimant des repartitions de probabilités est reliée à l'onde u, de façon telle que la particule semble décrire l'une des lignes définies par le théorème du guidage et calculées à partir de Ψ. M. L. DE BROGLIE pose en principe l'existance «d'un raccordement entre les lignes de courant de l'onde extérieure avec les lignes de courant intérieures à la très petite région de hautes valeurs du champ: celle-ci, c'est-à-dire le corpuscule, se trouve ainsi emprisonnée dans un tube très délié de lignes de courant du champ extérieur et la formule de guidage en résulte immédiatement» [2].

Ainsi, pour chaque sorte de corpuscule, le théorème de guidage de M. L. de Broglie stipule que si:

a) Ψ est une solution de type usuelle des équations décrivant le corpuscule.

b) $\Gamma_n(t)$ est à chaque instant t l'ensemble des lignes tangentes en tout point au vecteur courant, défini à l'aide de Ψ. Les $\Gamma_n(t)$ sont les lignes de courant et, en régime permanente, sont indépendants de t.

c) M est un point décrivant une trajectoire Γ qui à chaque instant t est tangente à la courbe Γ_n passant par ce point. Ainsi, à tout instant t, le quadrivecteur vitesse de M est colinéaire à celui de $\Gamma_n(t)$ au point de coincidence. En régime permanent Γ est tout simplement l'une des courbes Γ_n.

Alors, il existe une solution singulière u de l'équation (2), dont la singularité mobile est concentrée sur M, parcourt Γ suivant la même loi que M, et de façon telle que le quadrivecteur courant en ce point à l'instant t calculé à partir de u soit colinéaire à celui calculé à partir de Ψ.

Mais, ignorant la forme exacte de l'équation (2), et ayant admis que les fonctions d'onde u' donnent une bonne représentation de u à l'extérieur de la région singulière et sur sa frontière dans les conditions énumérées ci-dessus, les quadrivecteurs courant calculés respectivement à partir des ondes Ψ et des ondes u' doivent être colinéaires au voisinage du point singulier M. Effectivement, dans la

suite de cet exposé nous montrerons qu'il existent des solutions du type u' qui obéissent au théorème de guidage de M. L. de Broglie.

2. *SOLUTIONS SINGULIÈRES ET THÉORÈME DE GUIDAGE DANS LE CAS DES ÉQUATIONS DE DIRAC*

Indiquons d'abord une classe de solutions singulières de l'équation (1).

Soit Ψ une solution du type usuelle, Γ une courbe définie comme ci-dessus et v^σ les composantes du quadrivecteur vitesse de M, calculées à partir de Ψ. Définissons une quantité algébrique scalaire D, que nous astreindrons à être nulle constamment en M et à vérifier une certaine équation aux dérivées partielles du second ordre [5]. Par exemple, dans le cas où Γ est confondu avec l'axe Oz, parcouru par M avec une vitesse constante v, nous pouvons prendre

$$D = r' = \sqrt{x^2 + y^2 + \frac{(z - vt)^2}{1 - v^2/c^2}} \tag{4}$$

Mais nous pourrions aussi choisir pour D le denominateur du potentiel de Liénard-Wiéchert ou bien d'autres fonctions encore.

Si nous dérivons maintenant D suivant Γ, nous trouvons aisément, du fait que D est nul au point $M(t)$:

$$[\partial_\sigma D dx^\sigma]_{M(t)} = ds\left[\partial_\sigma D \frac{dx^\sigma}{ds}\right]_{M(t)} = ds\,[\partial_\sigma D v^\sigma]_{M(t)} = 0 \tag{5}$$

où ds est l'élément d'arc de Γ. On montre alors qu'il existe une solution singulière de l'équation (1), de type u' et de la forme

$$u' = \frac{\omega}{D} + U \tag{6}$$

ω étant une fonction non nulle en $M(t)$ et continue; ses dérivées premières et secondes sont également continues. U est continue et ses dérivées premières sont continues partout, sauf peut-être en $M(t)$.

Prenons maintenant les équations de Dirac pour un corpuscule numéroté l et de masse m_l:

$$k_l \varphi_l = \gamma^\sigma \partial_\sigma \varphi_l \tag{7}$$

on aura $k_l = \frac{2\pi}{h} m_l c$ et les γ^σ sont les matrices de Von Neumann; φ_l est la matrice colonne

$$\varphi_l = \left| \begin{matrix} \varphi_{l1} \\ \varphi_{l2} \\ \varphi_{l3} \\ \varphi_{l4} \end{matrix} \right| \tag{8}$$

Nous adoptons la convention des indices muets, en désignant par des lettres grecques les indices susceptibles de varier de 1 à 4 et par des lettres latines les indices susceptibles de varier de 1 à 3. Nous utilisons un système d'unités tel que $c = 1$ et, pour les calculs explicites, nous choisissons les γ^σ de manière que (7) s'écrive

$$k_l \varphi_{l1} = (\partial_1 + i\partial_2)\varphi_{l3} - (\partial_3 - \partial_4)\varphi_{l4};\ k_l \varphi_{l3} = (\partial_1 - i\partial_2)\varphi_{l1} - (\partial_3 - \partial_4)\varphi_{l2}$$
$$k_l \varphi_{l2} = -(\partial_3 + \partial_4)\varphi_{l3} - (\partial_1 - i\partial_2)\partial_{l4};\ k_l \varphi_{l4} = -(\partial_3 + \partial_4)\varphi_{l1} - (\partial_1 + i\partial_2)\varphi_{l2} \tag{7'}$$

Nous savons déjà qu'il existe une solution des équations (7) présentant une singularité en M, mobile suivant Γ, et de la forme

$$\varphi_l = \gamma^\sigma \partial_\sigma u_l + k_l u_l \tag{9}$$

avec

$$u_l = \left| u_{l\sigma} \right| = \left| \begin{matrix} u_{l1} \\ u_{l2} \\ u_{l3} \\ u_{l4} \end{matrix} \right|, \tag{10}$$

chacun des $u_{l\sigma}$ étant une solution singulière du type (6) de l'équation (1) avec $k = k_l$, soit

$$u_{l\sigma} = \frac{\omega_{l\sigma}}{D} + U_{l\sigma} \tag{11}$$

$\omega_{l\sigma}$ et $u_{l\sigma}$ ayant les mêmes propriétés que ω et U respectivement.

En effet, si nous introduisons (9) dans (7), on peut montrer qu'en raison des propriétés des γ^σ, on obtient:

$$[\,\Box - k_l^2\,]\, u_{l\sigma} = 0 \tag{12}$$

Calculons alors le vecteur courant de Dirac au voisinage du point singulier

$$j_l^\mu = -\varphi_l^* \gamma^4 \gamma^\mu \varphi_l \sim \frac{1}{D^4}\left[(X^\rho X_\rho)\,\lambda_l^\mu - 2\,X^\mu(\lambda_l^\beta X_\beta)\right] \tag{13}$$

où le signe ~ désigne l'équivalence au sens des valeurs principales et où nous posons en outre

$$\lambda_l^\sigma = -\Omega_l^* \gamma^4 \gamma^\sigma \Omega_l \text{ avec } \Omega_l = |\omega_{l\sigma}| = \begin{vmatrix} \omega_{l1} \\ \omega_{l2} \\ \omega_{l3} \\ \omega_{l4} \end{vmatrix}$$

$$X_\rho = \partial_\rho D \tag{14}$$

Le théorème de guidage s'exprime dans ce cas par

$$[j_l^\mu]_{M(t)} \sim \frac{1}{D^4}\rho_l v^\mu \tag{15}$$

et il est facile de montrer, grâce à la relation (5), que (15) entraîne

$$\lambda_l^\mu = \rho'_l v^\mu \tag{16}$$

Nous savons en effet que, pour des vitesses de la particule inférieures à c, $X^\rho X_\rho$ est différent de zéro; alors, en multipliant (13) par X_μ et en sommant:

$$j_l^\mu X_\mu \sim \frac{1}{D^4}\left[-X^\rho X_\rho\left(\lambda_l^\beta X_\beta\right)\right]$$

Mais (5) et (15) montrent que la partie entre crochets doit être nulle en $M(t)$ et il est donc nécessaire que nous ayons

$$[\lambda_l^\beta X_\beta]_{M(t)} = 0$$

ou, ce qui revient au même, par comparaison avec (5), la relation (16) [5].

Nous vérifions reciproquement que la condition (16) suffit à assurer la validité du théorème de guidage, car (13) s'écrit alors

$$[j_l^\mu]_{M(t)} \sim \frac{1}{D^4}(X^\rho X_\rho)\,\rho\, v^\mu \tag{13'}$$

Explicitons les conditions (16), en tenant compte du choix des matrices γ^σ:

$$\begin{aligned}
\lambda_l^1 &= \omega_{l1}\,\bar{\omega}_{l2} + \bar{\omega}_{l1}\,\omega_{l2} + \omega_{l3}\,\bar{\omega}_{l4} + \bar{\omega}_{l3}\,\omega_{l4} = \rho_l' v^1 \\
\lambda_l^2 &= -i\,[\omega_{l1}\,\bar{\omega}_{l2} - \bar{\omega}_{l1}\,\omega_{l2} - \omega_{l3}\,\bar{\omega}_{l4} + \bar{\omega}_{l3}\,\omega_{l4}] = \rho_l' v^2 \\
\lambda_l^3 &= \omega_{l1}\,\bar{\omega}_{l1} - \omega_{l2}\,\bar{\omega}_{l2} + \omega_{l3}\,\bar{\omega}_{l3} - \omega_{l4}\,\bar{\omega}_{l4}] = \rho_l' v^3 \\
\lambda_l^4 &= \omega_{l1}\,\bar{\omega}_{l1} + \omega_{l2}\,\bar{\omega}_{l2} + \omega_{l3}\,\bar{\omega}_{l3} + \omega_{l4}\,\bar{\omega}_{l4} = \rho_l' v^4
\end{aligned} \tag{16'}$$

Nous nous proposons de calculer ω_{l1} et ω_{l2} en fonction des ω_{l3}, ω_{l4} et v^σ. Pour cela (16') est équivalent à

$$\begin{aligned}
\omega_{l1}\,\bar{\omega}_{l2} + \bar{\omega}_{l3}\,\omega_{l4} &= \frac{\rho_l'}{2}(v^1 + i\,v^2) \\
\bar{\omega}_{l1}\,\omega_{l2} + \omega_{l3}\,\bar{\omega}_{l4} &= \frac{\rho_l'}{2}(v^1 - i\,v^2) \\
\omega_{l1}\,\bar{\omega}_{l1} + \omega_{l3}\,\bar{\omega}_{l3} &= \frac{\rho_l'}{2}(v^3 + v^4) \\
\omega_{l2}\,\bar{\omega}_{l2} + \omega_{l4}\,\bar{\omega}_{l4} &= \frac{\rho_l'}{2}(v^3 - v^4)
\end{aligned} \tag{16''}$$

La première et la quatrième égalités (16'') donnent

$$\frac{\omega_{l1}}{\omega_{l2}} = \frac{\rho_l'(v^1 + i\,v^2) - 2\,\bar{\omega}_{l3}\,\omega_{l4}}{\rho_l'(v^4 - v^3) - 2\,\bar{\omega}_{l4}\,\omega_{l4}}$$

tandis que de la deuxième et de la troisième nous tirons

$$\frac{\omega_{l1}}{\omega_{l2}} = \frac{\rho_l'(v^3 + v^4) - 2\,\omega_{l3}\,\bar{\omega}_{l3}}{\rho_l'(v^1 - i\,v^2) - 2\,\omega_{l3}\,\bar{\omega}_{l4}}$$

et, donc,

$$\begin{aligned}
\omega_{l1} &= \chi\,[(v^1 + i\,v^2)\,\omega_{l3} - (v^3 + v^4)\,\omega_{l4}] \\
\omega_{l2} &= -\chi\,[(v^3 - v^4)\,\omega_{l3} + (v^1 - i\,v^2)\,\omega_{l4}]
\end{aligned} \tag{17}$$

χ étant un coefficient qu'on détermine en portant ces valeurs (17) dans (16'). On trouve

$$\varkappa \bar{\varkappa} = 1 \tag{17'}$$

c'est-à-dire,

$$\varkappa = e^{i\delta_l} \tag{17''}$$

où δ_l est une fonction arbitraire des coordonnées x^σ de M.

3. *LA THÉORIE DE LA FUSION*

La théorie de la fusion [4] a pour objet d'obtenir les équations d'une particule de spin maximum $S = n/2$ à partir des équations de deux particules de spins respectivement $p/2$ et $q/2$ ($p + q = n$), n, p et q étant des nombres entiers positifs.

Nous allons appliquer la méthode générale à deux cas précis:

1) $n = 0$, alors $p = q = 0$; 2) $n = 2$ et $p = q = 1$.

1) Soient deux corpuscules sans spin, de masses m_l ($l = 1, 2$) et décrits par les équations

$$(\Box - K_l^2)\varphi_l = 0 \; ; \quad K_l = 2\pi m_l c / h \tag{18}$$

Représentons la particule A, résultant de la fusion, par la fonction d'onde

$$\Psi = \varphi_1 \varphi_2 \tag{19}$$

Ψ devant vérifier encore l'équation de la particule sans spin, c'est-à-dire

$$(\Box - K^2)\,\Psi = 0\,, \tag{18'}$$

où K est une fonction des k_l qui reste à déterminer.

Il est facile de voir que la condition nécessaire et suffisante pour que (18') ait lieu est que

$$\frac{2\, g^{\sigma\sigma}\, \partial_\sigma \varphi_1\, \partial_\sigma \varphi_2}{\varphi_1 \varphi_2} = f(k_1, k_2)\,, \tag{20}$$

$g^{\sigma\sigma}$ étant la matrice diagonale correspondante à l'opérateur de d'Alembert et f une fonction de deux variables.

Donnons deux exemples où la relation (20) est vérifiée:

a) Si les φ_l sont des solutions ondes planes, (20) est bien vérifiée pour

$$f(k_1, k_2) = 2\, k_1\, k_2 .$$

Alors,

$$K^2 = (k_1 + k_2)^2 ,$$

et on voit que la masse de la particule A est égale à la somme aritmétique de celles des particules composantes.

b) Prenons pour la particule 1 la solution *singulière*

$$\varphi_1 = (a/r)\ \ exp\ [r\sqrt{k_r^2 - k_1'^2} + i\ k_1'\ t]\ ;\ a,\ k_1' = C^{te},$$

avec

$$r = \sqrt{x^2 + y^2 + z^2}$$

et pour la particule 2 une solution onde plane, soit

$$\varphi_2 = b\ \ exp\ [i\ k_2\ t]\ ;\ b = C^{te}\ .$$

Dans ces conditions,

$$\Psi = (a\, b/r)\ \ exp\ [r\sqrt{k_1^2 - k_1'^2} + i\,(k_1' + k_2)\, t]$$

et alors

$$f(k_1, k_2) = 2\, k_1'\, k_2$$

Donc,

$$K^2 = k_1^2 + k_2^2 + 2\, k_1' k_2 \qquad (21)$$

ou encore, si nous revenons aux masses propres

$$M^2 = m_1^2 + m_2^2 + 2\, \varepsilon_1\, m_2\ ;\ \varepsilon_1 = 2\pi\, k_1'/h \qquad (21')$$

La masse propre de la particule résultante n'est plus égale à la somme de celles des particules composantes.

Pour interpréter la relation (21), considérons dans le système de coordonnées du laboratoire la particule 2 au repos et la particule 1

ayant la quantité de mouvement p_1. Dans notre système d'unités où $c = 1$, l'énergie totale de la particule 1 est donc

$$\varepsilon_1^2 = m_1^2 + p_1^2$$

et l'énergie totale de l'ensemble des deux particules sera

$$E = \varepsilon_1 + m_2$$

D'autre part, nous savons que pour une particule isolée la masse propre est un invariant qui est reliée à son énergie et à sa quantité de mouvement par la relation

$$m^2 = \varepsilon^2 - p^2$$

Dans le cas d'un système de r particules, d'énergies et de quantités de mouvement respectivement ε_r et p_r, l'invariant correspondant à m est la quantité M donnée par

$$M^2 = (\Sigma \varepsilon_r)^2 - (\Sigma p_r)^2$$

et M peut donc être considéré comme la masse propre du système de r corpuscules. Elle est égale à l'énergie calculée par rapport au système de coordonnées du centre de masse des r particules.

Si nous revenons maintenant au cas des deux particules considerées plus haut, nous retrouvons bien la relation (21′) car

$$M^2 = (m_2 + \varepsilon_1)^2 - p_1^2 = m_1^2 + m_2^2 + 2\,\varepsilon_1\, m_2$$

Ainsi, la fusion entre une solution régulière et une solution singulière des équations d'onde permet eventuellement de tenir compte du defaut de masse de la particule résultante.

Nous venons de constater que la fusion est possible entre deux solutions de type usuel, comme entre une solution de type usuel et une solution singulière. On peut démontrer en outre que la fusion de deux solutions singulières est en général impossible.

2) En ce qui concerne la fusion de deux corpuscules de spin 1/2 pour former une particule de spin 1, nous allons exposer ci-dessous les points essentiels, en calculant effectivement les fonctions d'onde du photon.

4. *SOLUTIONS SINGULIÈRES DES ÉQUATIONS DU PHOTON D'APRÈS LA THÉORIE DE LA FUSION* [6]

Soient deux particules c_l ($l = 1, 2$), de spin 1/2 et de masse m_l, décrites par deux systèmes d'équations du type (7). Nous désignerons par $\varphi_{l\sigma}$ les deux spineurs qui représentent ces deux particules. Nous allons montrer que la particule de spin 1 résultant de la fusion peut être décrite par la matrice Φ de composantes

$$\Phi_{\alpha\beta} = \varphi_{1\alpha}\,\varphi_{2\beta} \tag{22}$$

Pour cela nous allons tout d'abord déduire de Φ les grandeurs de nature tensorielle sous une transformation de Lorentz. Introduisons donc les 16 matrices linéairement indépendantes qu'on peut définir à partir des γ^σ, c'est-à-dire,

la matrice unité I ,
les 4 matrices γ^ρ,
les trois matrices $i\,\gamma^a\,\gamma^b$ avec $(a, b) = (1, 2), (2, 3), (3, 1)$,
les trois matrices $i\,\gamma^4\,\gamma^a$.
les quatre matrices $i\,\gamma^\alpha\,\gamma^\beta\,\gamma^\rho$ avec $(\alpha, \beta, \rho) = (1, 2, 3), (2, 3, 4), (3, 4, 1), (4, 2, 1)$,
et la matrice $\gamma^1\,\gamma^2\,\gamma^3\,\gamma^4$.

Nous devons ensuite déterminer une certaine matrice γ qui, du fait de notre choix des γ^σ, est ici [4]

$$\gamma = i\,\gamma^1\,\gamma^3 \tag{23}$$

et, en représentant par γ^n l'une des 16 matrices énumérées ci-dessus, il est alors possible de faire la décomposition unique suivante:

$$\Phi\,\gamma = \sum_{n=1}^{16} \Phi_n\,\gamma^n \tag{24}$$

D'après les variances tensorielles des γ^n, on peut identifier (à un facteur constant près que nous préciserons) les coefficients Φ_ρ des quatre γ^ρ aux quatre composantes du quadrivecteur potentiel et les coefficients des six $i\,\gamma^a\,\gamma^b$, $i\,\gamma^4\,\gamma^a$ aux composantes du tenseur champ électromagnétique. Les cinq autres coefficients correspondent à la description d'une particule de spin total $S = 0$, dont nous ne pouvons pas *a priori* affirmer l'existence réelle.

Dans le cas où les $\varphi_{l\sigma}$ sont des solutions ondes planes, on peut vérifier aisément que le quadrivecteur potentiel et le tenseur champ électromagnétique ainsi définis vérifient identiquement les équations de Maxwell; on retrouve bien les équations d'une particule de spin 1, notamment celles du photon. Mais, lorsque l'un des spineurs $\varphi_{l\sigma}$ est une solution singulière, la vérification des équations de Maxwell exige, en général, une condition supplémentaire que nous allons étudier.

En effet, écrivons explicitement les composantes du vecteur potentiel tirées de (24)

$$\begin{aligned} A_1 &= \alpha\,[\varphi_{11}\,\varphi_{24} + \varphi_{14}\,\varphi_{21} + \varphi_{12}\,\varphi_{23} + \varphi_{13}\,\varphi_{22}] \\ A_2 &= -i\,\alpha\,[\varphi_{11}\,\varphi_{24} + \varphi_{14}\,\varphi_{21} - \varphi_{12}\,\varphi_{23} - \varphi_{13}\,\varphi_{22}] \\ A_3 &= \alpha\,[\varphi_{11}\,\varphi_{23} + \varphi_{13}\,\varphi_{21} - \varphi_{12}\,\varphi_{24} - \varphi_{14}\,\varphi_{22}] \\ A_4 &= \alpha\,[\varphi_{11}\,\varphi_{23} + \varphi_{13}\,\varphi_{21} + \varphi_{12}\,\varphi_{24} + \varphi_{14}\,\varphi_{22}] \end{aligned} \tag{25}$$

avec [4]

$$\alpha = \frac{i\,h}{16\,\pi\,\sqrt{m_o}} \tag{26}$$

On désigne ici par m_o la masse de la particule résultante de la fusion qui, comme nous avons vu, n'est pas nécessairement la somme de celles des particules composantes.

Le calcul de la condition de Lorentz concernant la jauge ne présente aucune difficulté et, en tenant compte de (7), donne

$$J = \partial_\sigma A^\sigma = \alpha\,(k_1 - k_2)\,[\varphi_{11}\,\varphi_{22} - \varphi_{12}\,\varphi_{21} + \varphi_{13}\,\varphi_{24} - \varphi_{14}\,\varphi_{23}] \tag{27}$$

La jauge est donc nulle soit quand $k_1 = k_2$ soit quand le deuxième facteur du troisième membre de (27) est nul. Or, quand nous appliquons la théorie de la fusion à deux corpuscules, ceux-ci occupent (à 10^{-13} cm près) le même point au même instant; il faut alors que les deux spineurs qui représentent les deux corpuscules engendrent les mêmes lignes de courant et nous devons avoir en chaque point, d'après (16),

$$\lambda_l^\sigma = -\varphi_l^*\,\gamma^4\,\gamma^\sigma\,\varphi_l = \rho_l\,v^\sigma \tag{28}$$

ou, sous une forme équivalente, d'après (17),

$$\begin{aligned} \varphi_{l1} &= e^{i\delta_l}\,[(v^1 + iv^2)\,\varphi_{l3} - (v^3 + v^4)\,\varphi_{l4}] \\ \varphi_{l2} &= e^{i\delta_l}\,[(v^3 - v^4)\,\varphi_{l3} + (v^1 - iv^2)\,\varphi_{l4}] \end{aligned} \tag{28'}$$

En rapportant ces valeurs dans (27) nous constatons que $J = 0$ pour

$$e^{i(\delta_1+\delta_2)} + 1 = 0 \tag{29}$$

et on remarque que (29) est automatiquement vérifiée lorsque les $\varphi_{l\sigma}$ sont des solutions ondes planes, vu que dans ce cas $e^{i\delta_1} = e^{i\delta_2} = i$. Nous nous bornerons dorénavant à des solutions vérifiant cette condition. Cependant, à cause du second membre de l'équation (2), la jauge de Lorentz peut être différente de zéro au point singulière et dans son voisinage quand l'un des spineurs présente une singularité; on le constatera sur l'exemple développé à la fin de ce travail.

Calculons maintenant les composantes du tenseur électromagnétique à partir de (24). On trouve des formules analogues à (25), c'est-à-dire des formes bilinéaires en $\varphi_{l\sigma}$ comme, par exemple,

$$F_{23} = H_x = \frac{\sqrt{m_o}}{8}\left[\varphi_{11}\,\varphi_{21} - \varphi_{12}\,\varphi_{22} - \varphi_{13}\,\varphi_{23} + \varphi_{14}\,\varphi_{24}\right] \tag{25'}$$

Donc, si on adopte pour $\varphi_{l\sigma}$ des solutions du type pôle, les composantes du potentiel vecteur et celles du tenseur électromagnétique ont des pôles du même ordre.

Représentons le corpuscule c_2 par une fonction d'onde de type usuel $\varphi_{2\sigma}$, à partir de laquelle nous définissons les lignes de courant Γ_n. Soit Γ une des courbes enveloppes des Γn et M son point de contact à l'instant t. Choisissons pour représenter le corpuscule c_1 une solution singulière en M de type (9). On veut calculer la valeur principale du quadrivecteur potentiel au voisinage de M et on obtient d'abord

$$\varphi_1 = \| \varphi_{1\sigma} \| \sim -\gamma^\sigma \frac{X_\sigma}{D^2} \| \omega_{1\sigma} \| = -\gamma^\sigma \frac{X_\sigma}{D^2}\,\Omega_1 \tag{30}$$

et enfin, à l'aide de (14) et (17)

$$\vec{A} \sim \frac{-ih}{16\pi\sqrt{m_o}}\,\frac{1}{D^2}\left\{(e^{-i\delta_1} + e^{-i\delta_2})\left[\vec{X}\left(\vec{\Lambda}.\,\vec{v}\right) + \vec{X}\left(\vec{v}\wedge\vec{\Lambda}\right)\right] + \right.$$
$$\left. + (e^{-i\delta_2} - e^{-i\delta_1})\,\vec{X}\left(\vec{v}\wedge\vec{\Lambda}\right)\right\} \tag{31}$$

où l'on a écrit

$\vec{X}$ pour le vecteur de composantes $X_\sigma = \partial_\sigma D$,

$\vec{v}$ pour le vecteur vitesse de composantes v^σ, avec $v^\sigma v_\sigma = -1$,

$\vec{\Lambda}$ pour le vecteur dont les composantes sont de la forme

$$\begin{aligned} &\lambda_1 = \omega_{14}\varphi_{21} + \omega_{13}\varphi_{22}\,;\ \lambda_2 = -i(\omega_{14}\varphi_{21} - \omega_{13}\varphi_{22})\,; \\ &\lambda_3 = \omega_{13}\varphi_{21} - \omega_{14}\varphi_{22}\,;\ \lambda_4 = \omega_{13}\varphi_{21} + \omega_{14}\varphi_{22} \end{aligned} \tag{32}$$

et $\vec{v} \wedge \vec{\Lambda}$ est le tenseur polaire de $\vec{v} \wedge \vec{\Lambda}$

Nous allons maintenant exprimer les conditions nécessaires pour que le potentiel (25) et le champ (25') vérifient les équations de Maxwell. D'après une remarque faite plus haut, il faut que le tenseur électromagnétique calculé à partir de (31) soit aussi du second ordre en 1/D. C'est bien le cas si, au voisinage de $M(t)$, A est colinéaire à $\vec{X}$ et il faut donc que $\vec{v} \wedge \vec{\Lambda}$ soit nul ou que $\vec{\Lambda}$ soit colinéaire à $\vec{v}$. Mais les composantes (32) de Λ satisfont l'égalité

$$\lambda^\sigma \lambda_\sigma = (\lambda^1)^2 + (\lambda^2)^2 + (\lambda^3)^2 - (\lambda^4)^2 = 0 \tag{33}$$

et il s'ensuit alors que, si le module v de la vitesse de la particule résultante de la fusion est inférieure à la vitesse limite de la lumière c, $\vec{\Lambda}$ ne peut pas être colinéaire à $\vec{v}$ et les équations de Maxwell ne pourront pas être vérifiées.

Pourtant, nous tenons essentiellement au cas où $v < c$ et cela pour une double raison. D'une part, parce que dans la théorie du photon de M. L. DE BROGLIE la masse du photon est très petite mais non-nulle; de ce fait, la vitesse v est très voisine de c mais ne coincide pas avec c. D'autre part, la théorie doit s'appliquer à d'autres particules de spin 1, dont les masses peuvent, le cas écheant, être très différentes de zéro.

Pour pouvoir en tenir compte nous partirons alors de la remarque suivante. Dans tout ce qui précède nous avons fait jouer aux deux corpuscules composantes des rôles dissymétriques, car nous avons pris une solution singulière de c_1 et une solution de c_2 du type usuel. Pour remedier à cela, nous allons donc ajouter à (31) le potentiel

vecteur obtenu par fusion d'une solution singulière de c_2 avec une solution usuelle de c_1; à cause de la linéarité de (31) par rapport à $\vec{\Lambda}$ on vérifie que les formules finales gardent la forme (31), à cela près que les composantes de $\vec{\Lambda}$ s'écrivent maintenant

$$\begin{aligned}
\lambda^1 &= \omega_{14}\,\varphi_{21} + \omega_{13}\,\varphi_{22} + \omega_{24}\,\varphi_{11} + \omega_{23}\,\varphi_{12} \\
\lambda^2 &= -i\,[\omega_{14}\,\varphi_{21} - \omega_{13}\,\varphi_{22} + \omega_{24}\,\varphi_{11} - \omega_{23}\,\varphi_{12}] \\
\lambda^3 &= \omega_{13}\,\varphi_{21} - \omega_{14}\,\varphi_{22} + \omega_{23}\,\varphi_{11} - \omega_{24}\,\varphi_{12} \\
\lambda^4 &= \omega_{13}\,\varphi_{21} + \omega_{14}\,\varphi_{22} + \omega_{23}\,\varphi_{11} + \omega_{24}\,\varphi_{12}
\end{aligned} \tag{34}$$

On voit que les nouvelles composantes (34) ne satisfont plus la relation (33) et qu'on peut imposer ici

$$\lambda^\sigma = \rho' v^\sigma \tag{35}$$

Après un calcul similaire à celui qui conduisait aux relations (17) on obtient

$$\begin{aligned}
\omega_{13} &= \mu\,[(v^1 - iv^2)\,\varphi_{11} - (v^3 + v^4)\,\varphi_{12}] \\
\omega_{13} &= \mu\,[(v^4 - v^3)\,\varphi_{11} - (v^1 + iv^2)\,\varphi_{12}] \\
\omega_{23} &= -\mu\,[(v^1 - iv^2)\,\varphi_{21} - (v^3 + v^4)\,\varphi_{22}] \\
\omega_{24} &= -\mu\,[(v^4 - v^3)\,\varphi_{11} - (v^1 + iv^2)\,\varphi_{22}]
\end{aligned} \tag{36}$$

μ étant une fonction arbitraire des coordonnées X_σ de $M(t)$ de Γ. En tenant compte des relations (28') on vérifie aisément que

$$\begin{aligned}
\omega^{13} &= -\mu\,e^{i\delta_1}\,\varphi_{13} \qquad \omega_{14} = \mu\,e^{i\delta_1}\,\varphi_{14} \\
\omega_{23} &= \mu\,e^{i\delta_2}\,\varphi_{23} \qquad \omega_{24} = \mu\,e^{i\delta_2}\,\varphi_{24} \\
\rho' &= 2\mu\,e^{(i\delta_1 + \delta_2)} \quad [\varphi_{13}\,\varphi_{24} - \varphi_{14}\,\varphi_{23}]
\end{aligned}$$

et, grâce à (36), $\vec{v} \wedge \vec{\Lambda} = 0$; le potentiel vecteur de la particule résultante de la fusion a donc pour valeur principale

$$\vec{A} \sim -\frac{\alpha}{D^2}\,(e^{-i\delta_1} + e^{-i\delta_2})\,\rho' X \tag{37}$$

et le tenseur électromagnétique qui en résulte est bien du second ordre en 1/D.

Nous devons maintenant rechercher les conditions pour que le tenseur électromagnétique ainsi obtenu soit identique à celui qu'on

obtient par décomposition directe de (24). Nous arrivons ainsi à des relations entre ρ', δ_1, δ_2 et leurs dérivées, mais elles ne modifient pas la forme de (37), ce qui est l'essentiel dans l'étude du guidage du photon. En supposant que ces relations sont satisfaites, le calcul du tenseur électromagnétique à partir de (24) donne finalement, à cause de (35),

$$\begin{aligned}
F_{23} &= H_x \sim -\frac{i}{D^2}\frac{\sqrt{m_o}}{4}\rho'\,[X_2 v_3 - X_3 v_2] \\
F_{31} &= H_y \sim -\frac{i}{D^2}\frac{\sqrt{m_o}}{4}\rho'\,[X_3 v_1 - X_1 v_3] \\
F_{12} &= H_3 \sim -\frac{i}{D^2}\frac{\sqrt{m_o}}{4}\rho'\,[X_1 v_2 - X_2 v_1] \\
F_{14} &= E_x \sim -\frac{i}{D^2}\frac{\sqrt{m_o}}{4}\rho'\,[X_1 v_4 - X_4 v_1] \\
F_{24} &= E_y \sim -\frac{i}{D^2}\frac{\sqrt{m_o}}{4}\rho'\,[X_2 v_4 - X_4 v_2] \\
F_{34} &= E_3 \sim -\frac{i}{D^2}\frac{\sqrt{m_o}}{4}\rho'\,[X_3 v_4 - X_4 v_3]
\end{aligned} \tag{38}$$

ou encore, si on désigne par F le tenseur de composantes $F_{\mu\nu}$,

$$F \sim -\frac{i}{D^2}\frac{\sqrt{m_o}}{4}\rho'\left[\vec{X}\wedge\vec{v}\right] \tag{38'}$$

On voit donc que dans la théorie de la fusion appliquée aux solutions singulières, le quadrivecteur potentiel et le tenseur électromagnétique des particules de spin 1 (notamment le photon) ont pour valeurs principales au voisinage de la singularité, respectivement, les expressions (37) et (38').

5. *LE GUIDAGE DU PHOTON. EXEMPLE D'UNE SOLUTION*

On sait [7] que le vecteur courant correspondant aux équations du photon est

$$j_\mu = \frac{2\tau i}{h}\,[A^{\mu *} F_{\mu\nu} - F^*_{\mu\nu} A^\mu] \tag{39}$$

Au voisinage du point singulier, la valeur principale de $\vec{j}$ s'obtient en remplaçant les composantes A^μ et $F_{\mu\nu}$ par leurs valeurs principales (37) et (38'), ce qui donne

$$\vec{j} \sim \frac{\rho' \rho'^* \sin \delta_{,}}{8 D^4} \left[\left(\vec{X}. \vec{X} \right) \vec{v} - \left(\vec{X}. \vec{v} \right) \vec{X} \right] \tag{39'}$$

soit encore, en tenant compte de (5),

$$\vec{j} \sim \frac{\rho \rho'^* \sin \delta_{,}}{8 D^4} \left[\vec{X}. \vec{X} \right] \vec{v} \tag{39''}$$

Nous constatons qu'au voisinage du point singulier le vecteur courant est colinéaire à la vitesse de la singularité, ce qui est un résultat remarquable.

En effet, soient deux systèmes de fonctions d'onde de type usuel, $\varphi_{1\sigma}$ et $\varphi_{2\sigma}$, correspondantes aux corpuscules c_1 et c_2 de spin 1/2, et possédant à tout instant les mêmes familles de lignes de courant $\Gamma_n(t)$. Désignons par Γ une enveloppe des Γ_n et par $\varphi'_{1\sigma}$ et $\varphi'_{2\sigma}$ deux systèmes de fonctions d'onde à singularité mobile qui vérifient le théorème de guidage des corpuscules de spin 1/2.

Les propriétés de particule de spin 1 qui résulte de la fusion de ces deux corpuscules étant décrites par le système symétrisé de fonctions d'onde $\Phi_{\alpha\beta}$.

$$\Phi_{\alpha\beta} = \varphi_{1\alpha} \varphi'_{2\beta} + \varphi'_{1\alpha} \varphi_{2\beta} \tag{40}$$

et la décomposition (24) permettant d'en calculer les composantes du potentiel vecteur et du tenseur électromagnétique, si certaines conditions de compatibilité sont satisfaites ces composantes auront pour valeurs principales au voisinage du point singulier (37) et (38); en conséquence, le théorème du guidage concernant les particules de spin 1 est automatiquement vérifié. Le calcul montre ainsi une corrélation inattendue entre les théorèmes de guidage et la théorie de la fusion. Nous allons la retrouver en examinant explicitement un exemple de solution.

Prenons le cas simple où les courbes Γ_n sont des droites parallèles à Oz que l'onde usuelle parcourt à la vitesse v et supposons que $\varphi_{1\sigma}$ et $\varphi_{2\sigma}$ sont les ondes planes

$$\varphi_{l\sigma} = b_{l\sigma} \varepsilon_l \; ; \; \varepsilon_l = e^{\frac{2\pi i}{h} \frac{me}{\sqrt{1-v^2}} (t - z\, v)} \tag{41}$$

les $b_{l\sigma}$ étant reliés par (28') où $e^{i\delta} = i$. Comme ici le régime est permanent, parce que les Γ_n ne dépendent pas de t, Γ coïncidéra avec l'une des Γ_n et on choisi celle qui coïncide avec l'axe Oz lui-même. On prendra ensuite

$$D = r' = \sqrt{x^2 + y^2 + \frac{(z - vt)^2}{1 - v^2}} \tag{42}$$

et les composantes de $\vec{v}$ s'écrivent

$$v^1 = v^2 = 0\ ,\ v^3 = \frac{v}{\sqrt{1 - v^2}}\ ,\ v^4 = \frac{1}{\sqrt{1 - v^2}} \tag{43}$$

tandis que celles de $\vec{X}$ seront

$$X_1 = \frac{x}{r'}\ ,\ X_2 = \frac{y}{r'}\ ,\ X_3 = \frac{z - vt}{(1 - v^2)\, r'}\ ,\ X_4 = \frac{-v\,(z - vt)}{(1 - v^2) r'} \tag{44}$$

On vérifie immédiatement que

$$v^\sigma\, X_\sigma = 0 \tag{45}$$

et, dans ce cas particulier, cette relation n'est pas simplement valable au point singulier mais dans tout l'espace. En outre, les $\omega_{l\sigma}$ des solutions singulières sont ici de la forme

$$\omega_{l\sigma} = a_{l\sigma}\, \varepsilon_l \tag{46}$$

avec

$$a_{1\sigma} = -i\,\mu\,\varphi_{1\sigma}\ ;\ a_{2\sigma} = i\,\mu\,\varphi_{2\sigma}$$

où μ est ici une constante arbitraire. Donc,

$$\varphi'_{l\sigma} = \gamma^\sigma\, \partial_\sigma\, \mu_l + k_l\, \mu_l \tag{47}$$

avec

$$u_l = \left| u_{l\sigma} \right| = \frac{1}{D} \begin{vmatrix} \omega_{l1} \\ \omega_{l2} \\ \omega_{l3} \\ \omega_{l4} \end{vmatrix} \tag{48}$$

et nous vérifions que dans le cas présent

$$m_0 = m_1 + m_2 \tag{49}$$

Les potentiels et les champs s'écrivent, avec $\rho' = c^{te}$,

$$\vec{A} = -\frac{h}{8\pi\sqrt{m_o}}\frac{\rho'}{r^{12}} E_o \vec{X} ;$$

$$H_x = -\frac{i\sqrt{m_o}}{4\sqrt{1-v^2}}\frac{\rho'}{r^{13}} yv\, E_o ; H_y = \frac{i\sqrt{m_o}}{4\sqrt{1-v^2}}\frac{\rho'}{r^{13}} xv\, E_o$$

$$H_z = O ; \qquad E_x = \frac{i\sqrt{m_o}}{4\sqrt{1-v^2}}\frac{\rho'}{r^{13}} x\, E_o \qquad (50)$$

$$E_y = \frac{i\sqrt{m_o}}{4\sqrt{1-v^2}}\frac{\rho}{r^{13}} y\, E_o ; E_z = E_z = \frac{i\sqrt{m_o}}{4\sqrt{1-v^2}}\frac{\rho'}{r^{13}} (3-vt)\, E_o$$

et on constate tout de suite que les équations de Maxwell sont vérifiées. On peut d'autre part remarquer sur (50) que la jauge transverse est nulle vu que

$$\vec{A}.\vec{v} = 0 \qquad (51)$$

tandis que la jauge de Lorentz

$$J = \partial_\sigma A^\sigma = \frac{h\rho'}{8\pi\sqrt{m_o}} \varepsilon_o \Box\left(\frac{1}{r'}\right) \qquad (52)$$

n'est nulle que dans le complémentaire du point singulier; plus exactement, J est égale, à un facteur près, à la distribution de Dirac. Ce fait provient de ce que nous avons adopté des solutions singulières en $1/r'$, qui sont solutions de (2) où le second membre est aussi, à un facteur près, une distribution de Dirac.

Enfin, le vecteur courant a pour valeur principale au voisinage du point singulier

$$\vec{j} \sim \frac{1}{r'^4}\frac{\rho'\rho'^*}{8}\vec{v} \qquad (53)$$

et le théorème du guidage est bien automatiquement vérifié.

Nous voudrions exprimer notre reconnaissance à M. LOUIS DE BROGIE pour l'intêret qu'il a accordé à ces recherches. Nous remercions aussi MM. J. ANDRADE E SILVA et G. LOCHAK pour plusieurs discussions utiles.

BIBLIOGRAPHIE

[1] DE BROGLIE, L. — *Une Tentative d'Interprétation Causale et Non Linéaire de la Méchanique Ondulatoire,* Paris, Gauthier-Villars, 1956.

[2] DE BROGLIE, L. — *La Thermodynamique de la Particule Isolée.* Paris, Gauthier-Villars, 1964.

[3] THIOUNN MUMM — *C. R. Ac. Sc. Paris,* 259, 2366, 1964.

[4] DE BROGLIE, L. — *Théorie Générale des Particules à Spin.* Paris, Gauthier--Villars, 1954.

[5] THIOUNN MUMM — *Cahier de Physique,* n.º 174, 1965.

[6] THIOUNN MUMM — *C. R. Ac. Sc. Paris,* 260, 422, 1965.

THE ORDERING OF THE σ-PHASE Cr_2Ru

L. M. ALTE DA VEIGA

Laboratório de Física, Universidade de Coimbra, Coimbra, Portugal

The σ-phase structure of Cr_2Ru has been confirmed by single crystal measurements. Six out of seven parameters have been refined. The distribution of atoms in the available sites appears to be disordered; the ratio of the two atoms is almost the same in the different sites.

1. *INTRODUCTION*

The sigma phases and related structures have been previously investigated by the present author. The structures of the phases μ-Mo_6Co_7 and σ-Mo_3Co_2 have already been refined (FORSYTH and ALTE DA VEIGA, 1962 and 1963) and a comparative study of the sigma phases with those having the $A15$ type of structure (β-W structure) has also been undertaken (ALTE DA VEIGA, 1963). It appeared from this study that it was likely that the phase σ-Cr_2Ru would be completely ordered, like σ-Nb_2Al (BROWN and FORSYTH, 1961), with the larger atom, Ru, occupying the two 12-coordinated sites and Cr the two 14-coordinated and the 15-coordinated sites.

WATERSTRAT and KASPER (1957) have determined, from powder work, that the structure of σ-Cr_2Ru was disordered, and stated that their measurements were not accurate enough to detect small amounts of ordering. As our experience in the refinement of σ-Mo_3Co_2 had shown that the low angle reflections were also sensitive to small

Received August 20, 1966.

adjustments of the atomic parameters, we have decided to undertake both the determination of the ordering of σ-Cr_2Ru and the refinement of the structure using the single crystal technique.

2. *MATERIAL, UNIT CELL AND SPACE GROUP*

The phase Cr_2Ru is homogeneous over about 2 at. % in the region of 66 at. % *Cr*; $a = 9.007$ and 9.03, $c = 4.6630$ and 4.671 Å (PEARSON, 1958, p. 558). The ingot of σ-Cr_2Ru was kindly supplied by Dr. M. Nevitt, Argonne National Laboratory, Illinois, U. S. A.. A great difficulty was experienced in findind a single crystal.

Laue, oscillation and Weissenberg photographs were consistent with the space groups $P4_2nm$, $P\bar{4}n2$ and $P4_2/mnm$. The subsequent refinement of the structure has justified the choice of the last space group.

3. *REFINEMENT OF THE STRUCTURE*

Our main purpose was the investigation of the ordering and this can be well determined from reflections from the zero layer of the [001] projection. This projection also allows the refinement of six out of seven atomic parameters. The reflections were collected using normal-beam Weissenberg photographs; filtered $MoK\alpha$ radiation and a multiple-film technique were used. The reflections were measured by visual comparison with an intensity scale obtained using the 410 reflection from the same crystal. The intensities were corrected for Lorentz and polarization factors and allowance was made for resolution of the $\alpha_1\alpha_2$ doublet by scalling F_o and F_c in regions of $\sin\theta/\lambda$; this method of scaling also makes adequate allowance for the variation of absorption in the crystal used.

The structure was refined using $(F_o - F_c)$ syntheses. The atomic scattering factors were generated from the analytical constants for Cr^{2+} and *Ru* proposed by FORSYTH and WELLS (1959).

The refinement was started with an ordered arrangement of atoms, *Ru* in *A* and I_1 sites and *Mo* in I_2, *G* and *J*, using the σ-Mo_3Co_2 parameters (FORSYTH and ALTE DA VEIGA, 1963), shown in table 1; the corresponding initial *R*-factor was 0.48. A completely disordered arrangement (i. e. one in which all the sites are occupied by the two atoms in the same ratio) was then tried and the corresponding initial

R-factor was 0.24. The final *R*-factors obtained for reflections out to $\sin\theta/\lambda = 0.99\ \text{Å}^{-1}$ were 0.076 for the arrangement shown in table 2 and 0.092 for a completely disordered arrangement.

The final F_o and $(F_o - F_c)$ syntheses corresponding to the arrangement which gave lowest *R*-factor are shown in fig. 1. The $(F_o - F_c)$ Fourier synthesis corresponding to a completely disordered arrangement but using the final atomic parameters is shown in fig. 2.

There was no evidence that even the strongest reflections are afected by extinction. The final parameters are listed in table 1. The standard deviations were estimated from the final F_o and $(F_o - F_c)$ Fourier syntheses by the method suggested by LIPSON and COCHRAN (1953).

Values of SF_o and F_c are listed in table 3.

4. *DISCUSSION*

It is our intention to complete the refinement of the structure of σ-Cr_2Ru and determine accurately the unit cell dimensions, but the results obtained so far are the relevant ones.

Table 2 shows that the structure appears to be almost completely disordered. It may possibly be argued that there is a slight trend to an ordering, as table 2 and figs. 1 and 2 show that both the *R*-factor and the difference map are slightly better for that arrangement than for a complete disordering. The same conclusion may possibly be better reached if the calculated structure factors for a complete disordering, but using the final atomic parameters, are compared with those (listed in table 3) which give the lowest *R*-factor. The comparison is made in table 4 only for the calculated structure factors which are in worst agreement with the observed ones.

The trend to an ordering is shown by an increase of the *A*-transition metal, *Cr*, in the *J* site and a decrease in the I_2 site, which is surprising because the two sites are similar. They both are 14-coordinated and the *J* sites are those which form rows of sites ...*JJJJ*... between which the distances are very short, while the I_2 sites form rows GI_2I_2G and between these sites the distances are also short, mainly $I_2 - I_2$ (FORSYTH and ALTE DA VEIGA, 1963; ALTE DA VEIGA, 1963).

In the comparative study of the σ-phases and structures of the *A*15 type (ALTE DA VEIGA, 1963) we had assumed that all these were

ordered as they exist only at a stoichiometric composition. In the case of (*Cr,Ru*) alloys, the cell dimensions of Cr_3Ru (which has an *A*15 type of structure) and σ-Cr_2Ru have suggested, under the assumption that Cr_3Ru is completely ordered, that the *J* sites of σ-Cr_2Ru would be completely occupied by *Cr;* this is in some agreement with the trend of the *Cr* atoms to occupy the *J* site (see table 2). It is certainly of interest to determine the ordering of Cr_3Ru; this work is being undertaken in our laboratory.

It has been mentioned above that we had noticed that the low angle reflections were also sensitive to small adjustments of the atomic parameters. For the reflections out to sin $\theta/\lambda = 0.99$ $\mathring{A}^{-1}$ an *R*-factor of 0.23 was obtained from structure factors calculated for the arrangement which gave the lowest *R*-factor (0.076), but using the initial atomic parameters. This corresponds to a determination of the ordering without refining the atomic parameters. The *R*-factors for the different ranges of sin θ/λ are compared in table 5; they clearly show how sensitive the low angle reflections are to small adjustements of the atomic parameters. The determination of an ordering which is done without refining the structure is likely to lead to less precise results even if only the low angle reflections are used.

I wish to thank Prof. Dr. J. R. de Almeida Santos for his interest and encouragement. I am also grateful to Prof. Sir Nevill Mott, F. R. S., and Dr. W. H. Taylor for provision of facilities during my short visit to the Cavendish Laboratory, Cambridge, England. I am indebted to Centro de Cálculo Científico da Fundação Calouste Gulbenkian for providing time in the computer. I would like to express my gratitude to Miss Margarida R. da Costa for her help. I also wish to thank Comissão de Estudos de Energia Nuclear for the award of a Research Fellowship.

The equipment used was purchased with the help of generous awards from Instituto de Alta Cultura and the N. A. T. O Scientific Committee.

TABLE 1

Atomic parameters and their standard deviations in σ-Mo_3Co_2 and σ-Cr_2Ru

Type	Site	σ-Mo_3Co_2	σ-Cr_2Ru
2 (*a*) (0,0,0)	*A*		
8 (*i*) (x_1, y_1, 0)	I_1	$x_1 = 0.0670 \pm 0.0003$	0.0643 ± 0.0003
		$y_1 = 0.2550 \pm 0.0003$	0.2585 ± 0.0003
8 (*i*) (x_2, y_2, 0)	I_2	$x_2 = 0.5365 \pm 0.0002$	0.5365 ± 0.0002
		$y_2 = 0.1283 \pm 0.0002$	0.1338 ± 0.0002
4 (*g*) (x_3, $\bar{x}_3$, 0)	*G*	$x_3 = 0.3973 \pm 0.0002$	0.4007 ± 0.0003
8 (*j*) (x_4, x_4, z_4)	*J*	$x_4 = 0.3180 \pm 0.0001$	0.3159 ± 0.0001
		$z_4 = 0.2500 \pm 0.0001$	—

TABLE 2

Possible ordering arrangements in σ-Cr_2Ru. The last column shows the arrangement which gives lowest *R*-factor

Site	Atom	Ordered	Completely disordered	Ordering determined
A	*Ru*	2	0.667	0.5
	Cr	0	1.333	1.5
I_1	*Ru*	8	2.667	2.8
	Cr	0	5.333	5.2
I_2	*Ru*	0	2.667	3.2
	Cr	8	5.333	4.8
G	*Ru*	0	1.333	1.5
	Cr	4	2.667	2.5
J	*Ru*	0	2.667	2
	Cr	8	5.333	6
R-factor			0.092	0.076

TABLE 3

Observed and calculated structure amplitudes of *hk*0 reflections from σ-Cr_2Ru

sin θ/λ	h	k	F^c	SF_o	h	k	F_c	SF_o
0 — 0.29	0	0	873	—	2	3	— 14	17
	1	1	— 1	—	3	3	289	275
	0	2	5	8	1	4	— 308	291
	1	2	— 11	12	2	4	3	7
	2	2	— 17	19	3	4	11	12
	1	3	— 6	8	1	5	17	19
0.29 — 0.40	4	4	— 14	19	1	6	— 12	8
	2	5	7	9	2	6	— 23	29
	3	5	— 9	11	4	6	16	19
	4	5	11	14	1	7	— 29	29
	5	5	182	172	2	7	210	206
0.40 — 0.51	5	6	— 41	43	0	8	— 18	24
	6	6	166	159	2	8	189	178
	3	7	6	12	4	8	8	11
	4	7	— 6	15	1	9	15	13
	6	7	23	27	2	9	— 26	28
0.51 — 0.60	5	8	37	33	0	10	— 14	14
	6	8	— 29	31	1	10	— 26	31
	3	9	5	9	2	10	— 10	12
	5	9	— 42	40	3	10	12	14
	6	9	— 135	127	4	10	— 24	25
0.60 — 0.68	7	9	32	32	2	11	23	20
	8	9	— 37	33	3	11	— 39	39
	5	10	116	115	5	11	— 27	29
	6	10	39	38	0	12	10	11
	7	10	— 24	22	1	12	39	56
	1	11	135	129	3	12	— 111	107
0.68 — 0.78	9	9	80	78	6	12	— 21	19
	8	10	— 12	11	7	12	25	25
	9	10	46	44	3	13	23	27
	10	10	100	98	4	13	— 40	37
	8	11	28	28	5	13	— 22	25
	9	11	— 12	15	0	14	— 57	52
	4	12	19	17	2	14	18	22
	5	12	— 19	19				

sin θ/λ	h	k	F_c	SF_o	h	k	F_c	SF_o
0.78 — 0.89	10	11	— 24	26	3	14	— 20	20
	11	11	20	26	4	14	90	97
	8	12	— 32	30	5	14	20	10
	9	12	— 15	18	6	14	— 13	15
	10	12	35	34	7	14	— 30	34
	6	13	35	32	2	15	— 29	30
	7	13	66	62	3	15	— 15	15
	8	13	65	63	4	15	58	54
	9	13	37	34	0	16	59	58
0.89 — 0.99	11	12	— 21	19	9	15	— 15	16
	12	12	52	56	2	16	— 18	19
	11	13	— 37	33	3	16	23	19
	12	13	34	35	4	16	71	70
	8	14	47	46	6	16	18	16
	10	14	— 29	23	8	16	— 43	46
	11	14	— 41	42	3	17	— 26	30
	6	15	— 9	16	4	17	— 43	43
	7	15	31	32	5	17	34	33

TABLE 4

a) Arrangement which gives lowest *R*-factor.
b) Complete disordering.

sin θ/λ	h	k	*a*)		*b*)	
			F_c	SF_o	F_c	SF_o
0.123	1	2	— 11	12	1	12
0.156	2	2	— 17	19	— 5	19
0.296	2	5	7	9	— 2	9
0.550	0	10	— 14	14	— 3	15

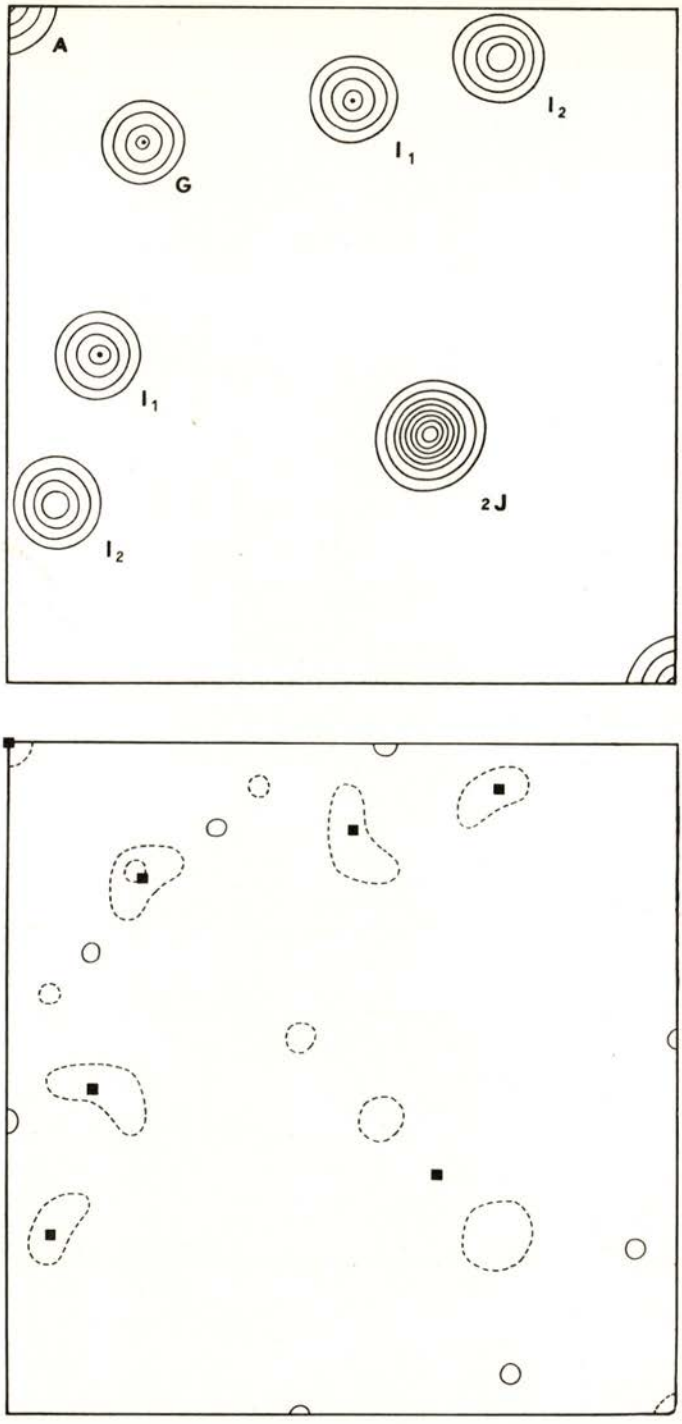


Fig. 1 — Final F_o and $(F_o - F_c)$ [001] Fourier projections.

a) F_o. The contours are at equal arbitrary intervals.

b) $(F_o - F_c)$. The contour intervals are one-tenth those of the F_o; negative contours are shown as broken lines. Squares mark the atomic sites.

TABLE 5

a) Final *R*-factors for the different ranges of sin θ/λ.

b) *R*-factors from structure factors calculated using the final ordering, the same as in *a*), but the initial atomic parameters.

sin θ/λ	*R* — factors	
	a)	*b*)
0 — 0.29	0.069	0.146
0.29 — 0.40	0.074	0.168
0.40 — 0.51	0.104	0.200
0.51 — 0.60	0.087	0.254
0.60 — 0.68	0.066	0.115
0.68 — 0.78	0.061	0.443
0.78 — 0.89	0.082	0.225
0.89 — 0.99	0.076	0.227

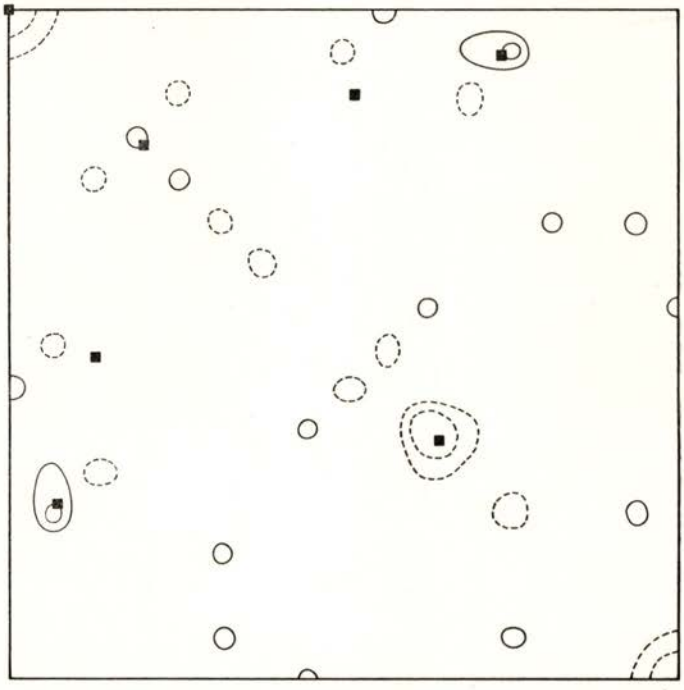


Fig. 2 — $(F_o - F_c)$ [001] Fourier projection assuming that all the sites are occupied by the two atoms in the same ratio. The atomic parameters are the same as those used for the Fourier projections shown in fig. 1.

REFERENCES

ALTE DA VEIGA, L. M. — *Dissertation for the Ph. D. Degree*, University of Cambridge, England, 1963.

BROWN, P. J., and FORSYTH, J. B. — *Acta Cryst.*, **14**, 362, 1961.

FORSYTH, J. B., and ALTE DA VEIGA, L. M. — *Acta Cryst.*, **15**, 543, 1962.

FORSYTH, J. B., and ALTE DA VEIGA, L. M. — *Acta Cryst.*, **16**, 509, 1963.

FORSYTH, J. B., and WELLS, M. — *Acta Cryst.*, **12**, 412, 1959.

LIPSON, H., and COCHRAN, W. — *The Crystalline State*, vol. III. London, G. Bell and Sons, 1953.

PEARSON, W. B. — *Handbook of Lattice Spacings and Structures of Metals and Alloys*. New York, Pergamon Press, 1958.

WATERSTRAT, R. M., and KASPER, J. S. — *Trans. Amer. Inst. Min. (metall) Engrs.*, **209**, 872, 1957.

ETUDE DE LA DESINTEGRATION DU NOYAU DE TUNGSTENE 187 (1)

F. WIDEMANN et C. SEBILLE

(Centre de Spectrométrie Nucléaire et de Spectrométrie de Masse du C. N. R. S. — ORSAY (Essonne) — France)

ABSTRACT — The scheme of the levels of Re^{187} fed by the β-decay of W^{187} has been investigated. Added to the two transitions of 746 and 880 keV which have been found with $Ge - Li$ γ spectrometer, an internal conversion study with 180° magnetic spectrometers equiped with preacceleration shows a number of new transitions. Two of them, 7,1 keV and 77,2 keV are tentatively placed on the level scheme. The multipolarities are given with precision through $L_I/L_{II}/L_{III}$ conversion ratios up to 480 keV, where intensity allows it. Uncertainties on certain spins are eliminated through branching ratios calculations. The nature of the 880 keV level is discussed.

RÉSUMÉ — Le schéma des niveaux du Re^{187} alimentés par la radioactivité β du W^{187} a été étudié. S'ajoutant aux deux transitions de 746 et 880 keV déjà trouvées avec un spectromètre γ au $Ge - Li$, une étude en conversion interne à l'aide de spectrographes magnétiques à 180° équipés pour la préaccélération montre un certain nombre de transitions nouvelles. Pour deux d'entre elles, de 7,1 et 77,2 keV, il est proposé une place sur le schéma de niveaux. Les multipolarités sont données avec précision par les rapports de conversion $L_I/L_{II}/L_{III}$ jusqu'à 480 keV pour les transitions assez intenses. Les ambiguïtés sur certains spins sont levées par des calculs de rapports d'embranchement. La nature du niveau de 880 keV est discutée.

INTRODUCTION

Le noyau de rhénium 187, avec 75 protons et 112 neutrons, est, avec le rhénium 185, le moins déformé de la région $150 < A < 190$, sa déformation à l'équilibre étant $\delta = 0{,}19$ (1). Il est donc à la limite d'application du modèle unifié et l'on peut penser en particulier que

(*) Reçu le 1 octobre 1966.

l'approximation du couplage fort n'est plus tout à fait valable. La connaissance précise de son schéma de niveaux présente donc un grand intérêt.

Bien que la désintégration $W^{187} \rightarrow Re^{187}$ ait été étudiée par de nombreux auteurs (8 à 55), plusieurs points du schéma de niveaux du Re^{187} restent contreversés. Nous avons repris l'étude de cette transmutation en spectrométrie β et γ de haute résolution et observé, en préaccélérant les électrons, la totalité du spectre de conversion interne de très basse énergie qui n'avait pas été étudié en dessous de 23 keV.

1. *TRAVAUX ANTERIEURS*

Les premières études importantes ont été faites par J. M. CORK et coll. (13) en 1952, V. S. DUBEY et coll. (14) en 1957 et M. VERGNES (16) (17) en 1959. Tous ces auteurs, s'ils sont en bon accord sur les transitions les plus intenses, donnent des schémas de niveaux différents (celui de M. VERGNES est basé sur des expériences plus variées et la séquence des premiers niveaux est en accord avec celle des plus récents auteurs).

Un progrès important a été réalisé par C. J. GALLAGHER et coll. (18) en 1960; ils proposent, à partir de résultats de diffraction cristalline, de conversion interne et de corrélations angulaires, un schéma qui, bien qu'incomplet, est encore la base adoptée actuellement. Cette étude venant peu après l'élaboration du modèle de BOHR et MOTTELSON (2) et les calculs de NILSSON (3), GALLAGHER et coll. donnent une interprétation suivant ce modèle. Mais ils se heurtent à des difficultés pour expliquer tout le schéma en termes de niveaux de particules et bandes de rotation, et suggèrent que deux niveaux, situés à 511 keV et 686 keV, soient des niveaux γ — vibrationnels. (Dans le même temps NATHAN et POPOV (35) proposaient une interprétation semblable pour des niveaux aperçus au cours d'une expérience d'excitation coulombienne dont nous reparlerons par la suite). Le Re^{187} aurait donc été le premier noyau déformé impair dans lequel on aurait mis en évidence des niveaux vibrationnels (on a identifié depuis de tels niveaux dans d'autres noyaux impairs, fig 13). D'autre part, ils ne peuvent souvent choisir entre plusieurs valeurs du spin des niveaux.

Deux études en coïncidences γ — γ ont été faites par R. G. ARNS et N. L. WIEDENBECK (20) en 1960 et W. MICHAELIS (26) en 1963 (complétées par des mesures de corrélations angulaires pour ceux-là), ils sont en désaccord, aussi bien sur le schéma de niveaux que sur

l'existence d'un grand nombre de transitions faibles. K. M. BISGÅRD et coll. (22) (47), ayant effectué des mesures à l'aide d'un spectromètre du type «orange» ainsi que des coïncidences $\gamma - \gamma$ et $\beta - \gamma$, adoptent avec peu de modifications le schéma de GALLAGHER et coll. (18) et proposent un niveau supplémentaire. K. M. BISGÅRD et coll. (49) ont récemment présenté, lors du Congrès de Moscou, des résultats d'excitation coulombienne (p, p') et (d, d') non encore publiés.

Nous citerons aussi des expériences d'excitation coulombienne par des protons (27 à 34) et par des particules α par O. NATHAN et V. I. POPOV (35).

Des mesures de vie moyenne ont été faites par différents auteurs (36 à 42); en particulier les résultats de H. A. VARTAPETIAN (38), YU. SHUBNY, D. K. KAIPOV et R. B. BEGJANOV (40), et U. HAUSER, G. KNISSEL et J. MORITZ (41) les amènent à rejeter l'interprétation vibrationnelle d'un niveau. Au contraire, la mesure de H. LANGHOFF (39) et celles plus récentes de H. ABOU-LEILA, N. PERRIN, et F. WIDEMANN (42) et de SALLING (76) sont en faveur de cette interprétation.

2. *PREPARATION DES SOURCES*

Les niveaux du Re^{187} sont alimentés par la désintégration β du W^{187} de période 24,1 h (13). Le Re^{187} se désintègre lui-même par voie β avec la période de 6.10^{10} ans-vers le niveau fondamental de l'Os^{187} stable.

Le W^{187} est formé par capture radiative de neutrons thermiques par le W^{186}, la section efficace de la réaction étant $\sigma_0 = 40$ barns pour l'isotope W^{186} pur, et $\sigma_1 = 9{,}65$ barns si l'on considère le mélange isotopique naturel.

Les sources pour spectromètre β semi-circulaire étaient constituées par un dépôt de tungstène naturel sur feuille d'aluminium formé par évaporation sous vide, l'évaporation étant obtenue en faisant passer dans un fil de tungstène de diamètre 1 mm un courant de 70 ampères sous 3 volts. On recueillait le tungstène sur des feuilles d'aluminium de pureté 99,99 % ayant la dimension des porte-sources des spectromètres (8 × 25 mm) et de $\frac{1}{100}$ et $\frac{2}{100}$ mm d'épaisseur, maintenues dans un support d'aluminium dont la fente donnait aux dépôts les dimensions de 2 × 21 mm et 3 × 21 mm. Les dépôts que nous avons utilisés avaient des masses superficielles allant de 50 μ g/cm^2 à

$300\,\mu\,g/m^2$. Afin d'obtenir une intensité suffisante avec une bonne résolution, nous avons renouvelé dans certains cas jusqu'à cinq fois la source en conservant le mêne film.

Les dépôts étaient irradiés à la pile EL3 de Saclay par un flux de 2.10^{13} n/cm^2/sec pendant des périodes allant de 2 à 3 jours. Les seuls autres isotopes susceptibles de se former étaient le W^{181} et le W^{185}. Or, le W^{185} se désintègre vers le niveau fondamental du Re^{185}, stable (71), avec la période de 74 jours, et n'intervenait donc que par un spectre β- continu peu intense, et le W^{181} se désintègre vers le Ta^{181}, stable, avec la période de 130 jours. La section efficace de la réaction W^{180} (n, γ) W^{181} étant inférieure à 20 barns pour l'isotope W^{180} pur et l'abondance isotopique du W^{180} étant de 0,14 % (contre 28,41 % pour le W^{186}), le rapport de l'activité du W^{181} à celle du W^{187} était inférieur à

$$\frac{n(W^{180})\,\sigma(W^{180})\,\lambda(W^{181})}{n(W^{186})\,\sigma(W^{186})\,\lambda(W^{187})} = \frac{0{,}14 \times 20 \times 1}{28{,}41 \times 40 \times 130} = 1{,}9.\ 10^{-4}$$

D'autre part, nous n'utilisions les sources que pendant les trois jours qui suivaient la fin de l'irradiation, et nous avons effectué des poses plusieurs semaines après, vérifiant ainsi qu'il n'apparaissait sur les clichés aucune raie du W^{181}, ni d'aucun des éléments indiqués par l'analyse spectroscopique du tungstène et de l'aluminium sur lequel il était déposé (l'aluminium lui-même ne produisant qu'un isotope de 2,20 mm de période que nous laissions décroître pendant au moins deux heures). Nous n'étions donc gênés par aucune activité parasite.

Etant données ces circonstances, nous avons pu utiliser du tungstène naturel, qui présentait le grand avantage de pouvoir être fourni sous forme de fil métalique permettant l'évaporation sous vide d'une manière extrêmement simple, ce qui assurait à la fois une meilleure homogénéité et une épaisseur de dépôt aisément contrôlable (proportionnelle au temps de dépôt pour une intensité donnée).

3. *TECHNIQUES DE MESURE*

Le spectre de conversion interne a été observé dans trois spectrographes semi-circulaires à détection photographique dont les inductions respectives étaient 61, 128 et 380 gauss; le premier était muni d'un dispositif de préaccélération des électrons (5) (6) (73), la tension utilisée au cours de cette étude étant de 10 kV.

L'étalonnage en énergie a été effectué à l'aide des raies de conversion correspondant aux transitions mesurées au cristal courbe par I. MARKLUND et B. LINDSTRÖM (51).

$$71{,}995 + 0{,}004 \text{ keV}$$
$$134{,}237 + 0{,}009 \text{ keV}$$
$$479{,}56 + 0{,}13 \text{ keV}$$
$$685{,}50 + 0{,}30 \text{ keV}$$

Nous avons utilisé, pour l'étalonnage des énergies électroniques inférieures à 45 keV, le dépôt actif du radon 220 (thoron).

Les intensités ont été mesurées avec un microdensitomètre Vassy (C.D.C.). Nous avons effectué une correction de luminosité inversement proportionnelle au rayon des trajectoires électroniques et, entre 20 et 200 keV, une correction d'efficacité de l'émulsion photographique en fonction de l'énergie des électrons obtenue en comparant, pour les raies les plus intenses (ou groupes de raies), nos résultats à ceux obtenus par BISGARD et coll. (22) avec un spectromètre «orange». L'imprécision due à cette méthode atteint 20 % entre 20 et 200 keV, mais elle est négligeable lorsqu'on considère les rapports des raies L entre elles, à partir desquels nous avons déterminé la multipolarité des transitions de cette région. Nous n'avons pas observé de raies électroniques entre 200 et 400 keV. Au-dessus de 400 keV, nous avons supposé l'efficacité indépendante de l'énergie, et n'avons plus fait de correction. Lorsqu'une préaccélération avait été employée, nous avons utilisé les résultats de F. GAUTIER (77) pour tenir compte de la variation de densité due à cet effet.

Nous avons essayé de déterminer la multipolarité des transitions de la manière la plus précise, c'est-à-dire à partir des rapports d'intensité des raies *L* entre elles, ce qui a été possible jusqu'à 480 keV. Au-dessus de cette énergie, nous avons comparé le spectre de conversion interne au spectre γ pour obtenir les coefficients de conversion absolus des transitions.

Les coefficients de conversion théoriques utilisés sont ceux des tables de SLIV et BAND (52), et pour une transition de très basse énergie (7 keV) les coefficients calculés par O'CONNELL et CAROLL (63) pour des valeurs voisines du seuil de conversion.

Le spectre γ avait été étudié en collaboration avec R. HENCK, L. STAB et P. SIFFERT (46) avec une jonction au germanium appartenant au Laboratoire de Chimie Nucléaire de Strasbourg (72).

4. *RÉSULTATS EXPÉRIMENTAUX*

1°) LE SPECTRE γ

Les résultats concernant la spectrométrie γ ont déjà été publiés (46) (73). Nous représentons ici une partie du spectre obtenu (fig. 1 et 2) comparé aux résultats de DJELEPOV et coll. (19) qui avaient observé les photoélectrons émis par un radiateur d'or (fig. 3).

2°) LE SPECTRE DE CONVERSION INTERNE

a) *Les spectres Auger et Coster-Krönig*

Au cours de l'étude du spectre d'électrons de basse énergie de la transmutation $W^{187} \longrightarrow Re^{187}$, nous avons été amenés à étudier le spectre Auger du rhénium afin de déceler les raies nucléaires éventuellement situées dans cette région.

Les énergies ont été calculées d'après la formule de BERGSTRÖM et HILL (55).

$$E_z(V_o\ XY) = E_z(V_o) - E_z(X) - E_{z+\Delta z}(Y)$$

— V_o étant la couche où la vacance initiale a été produite
— X et Y étant les couches plus externes d'où provient le réarrangement, un électron venant combler la vacance initiale, l'autre étant extrait du noyau avec l'énergie résiduelle.

L'électron Auger provient d'un atome de charge Z ionisé dans une couche extérieure; on tient compte empiriquement de l'effet d'écran dû à cette ionisation en considérant l'énergie de liaison $E_{z+\Delta z}(Y)$ d'un atome neutre fictif de charge $Z + \Delta Z$.

N'ayant pas de données plus précises, nous avons pris $\Delta Z = 1$ pour le spectre Auger L, et les valeurs déterminées par J. O. NEWTON (61) pour le spectre Auger K. Soit — pour KLL, $\Delta Z = 0{,}48$ pour les vacances L_I et L_{II}, et $\Delta Z = 0{,}71$ pour L_{III}; pour XLX, $\Delta Z = 0{,}75$ pour toutes les vacances L.

L'interprétation du spectre Auger L (44) a été faite en comparant les intensités visuelles de nos films à celles données par SANT'ANA DIONÍSIO (59) et J. SUJKOWSKI et H. S. SLÄTIS (60) pour $Z = 83$. Les résultats sont très cohérents (tableau 1).

Les spectres Coster-Krönig et Auger M ont été observés sous forme de bandes. On trouve dans le spectre Auger M des maxima

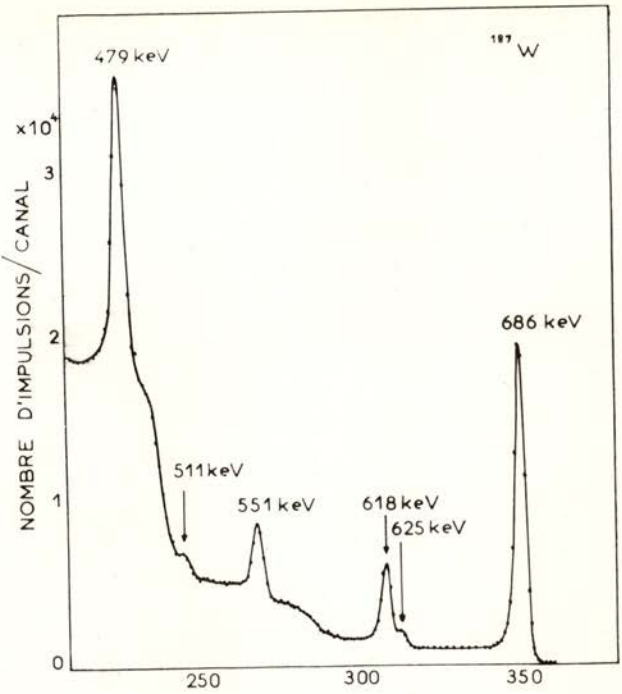


Fig. 1

Spectre γ — avec un détecteur germanium-lithium
C. SEBILLE, F. WIDEMANN, R. HENCK, L. STAB et P. SIFFERT
C. R. Acad. Sc. Paris, **260**, 3926, 1965.

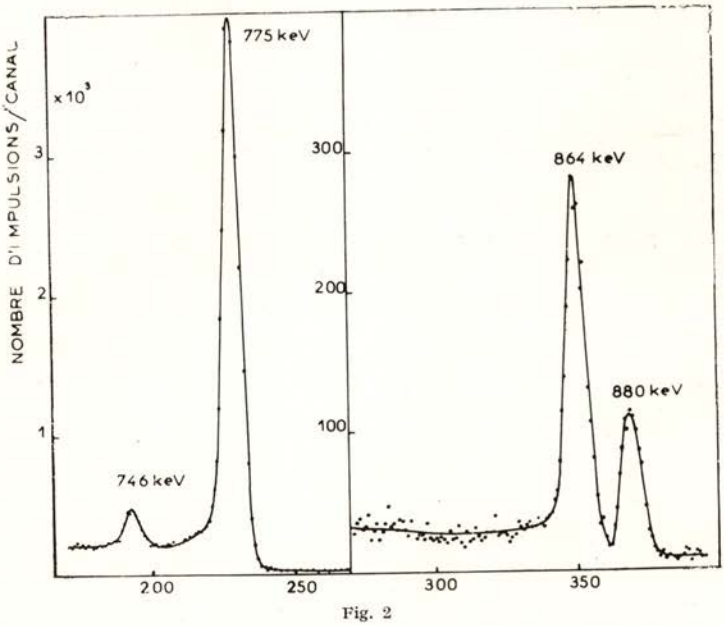


Fig. 2

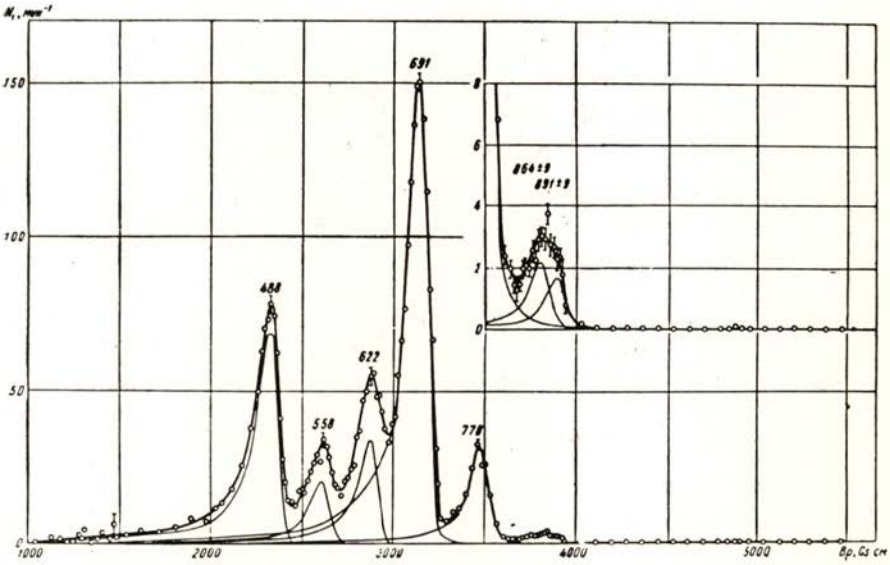


Fig. 3

Spectre de conversion externe de DZELEPOV et coll. (19)

TABLEAU 1

Spectre Coster-Krönig et Auger M et L

E_{exp} (keV)	Interprétation	E calculé ($\Delta Z=1$) (keV)	I exp	I Dioniso $Z=83$	I Seätis $Z=83$
0-0,13 . . .	Coster-Krönig				
0,22-1,84 . . .	Auger M				
5,14	$L_{III}M_IM_{III}$	5,15	tf	tf	tf
5,40	$L_{III}M_{II}M_{III}$	5,40	tf	f	f
5,68	$L_{III}M_IM_V$	5,65	f	tf	tf
	$L_{III}M_{III}M_{III}$	5,72		m	—
5,88	$L_{III}M_{II}M_{IV}$	5,82	tf		f
	$L_{III}M_{II}M_V$	5,90		tf	tf
6,22	$L_{III}M_{III}M_{IV}$	6,14	F	m	m
	$L_{III}M_{III}M_V$	6,22			m
6,63	$L_{III}M_{IV}M_V$	6,55	tF	tF	tF
	$L_{III}M_VM_V$	6,70			F
6,89	$L_{II}M_{II}M_{III}$	6,83	tf	f	f
7,39	$L_{II}M_{II}M_V$	7,32	f	—	f
	$L_IM_{II}M_{III}$	7,39		f	—
7,62	$L_{II}M_{III}M_{IV}$	7,57	m	m	m
	$L_IM_IM_V$	7,64			—
7,96	$L_{II}M_{IV}M_{IV}$	7,98	m	m	m
8,08	$L_{II}M_{IV}M_V$	8,05	tF	tF	tF
8,37	$L_IM_{III}M_V$	8,20	m	m	—
8,54	$L_IM_{IV}M_{IV}$	8,55	m	—	—
	$L_{III}M_VN_{VI,VII}$	8,60			m
	$L_IM_{IV}M_V$	8,61			f
9,06	$L_{II}M_IN_{VI,VII}$	8,98	f	—	f
	$L_{II}M_{III}N_{II}$	9,05			tf
9,34	$L_IM_IN_{IV}$	9,31	tf	—	tf
	$L_{II}M_{III}N_{IV}$	9,32			tf
9,58	$L_{II}M_VN_I$	9,42	tf	—	
9,80	$L_{III}N_{II}N_V$	9,75	F	—	f
	$L_{II}M_VN_{IV}$	9,79			f
10,07	$L_IM_{III}N_{VI}$	10,11	m	—	tf
10,34	$L_{III}N_VN_{VI,VII}$	10,22	tf	—	f
11,56	$L_{II}N_{IV}N_{IV,V}$	11,40	tf	—	f
	$L_{II}N_VN_V$	11,43			

d'intensités pour les énergies suivantes: 0,30, 1,10, 1,30, 1,39 et 1,88 keV, le premier pouvant être interprété comme la raie K d'une transition de 72 keV dont nous parlerons dans le prochain paragraphe.

Nous avons observé, entre les spectres Auger M et L, deux raies d'origine nucléaire que nous tentons d'interpréter dans le prochain paragraphe.

J. O. NEWTON (61) avait déjà étudié le spectre Auger KLX du rhénium émis après la transmutation $Os^{183} \longrightarrow Re^{183}$. Nous avons comparé dans le tableau 2 nos résultats à ses valeurs expérimentales ainsi qu'aux valeurs déterminées par lui, d'après la formule de Bergström et Hill.. J. O. Newton n'ayant pas observé les spectres Auger KMX et KNX, nous avons comparé nos valeurs d'intensité à celles obtenues par F. A. JOHNSON et J. S. FOSTER (62) pour le spectre Auger K de l'argent (les intensités étant normalisées d'après l'intensité KL_1L_1). Un seul groupe de raies est visible sur nos films.

Nos résultats (45) sont en bon accord, tant pour les énergies que pour les intensités relatives (1). Seule une raie à 56,18 keV a une intensité trop forte, compte tenu de la précision des mesures, pour être interprétée comme une raie Auger seule. Nous en avons déduit qu'une raie nucléaire lui était superposée; nous verrons plus loin qu'elle peut s'interpréter comme la raie K d'une transition dont nous avons par ailleurs observé une raie L et une raie M.

b) *Le spectre de conversion interne*

Nous présentons dans le tableau 3 les énergies et les intensités des raies de conversion interne que nous avons observées ainsi que leur interprétation; l'intensité de la raie K de 134 keV a été posée égale à 100. Les figures 4 à 7 montrent les résultats de quelques-uns des microdensitogrammes que nous avons effectués avec leur décomposition, les figures 8 à 10 quelques-uns des clichés obtenus.

5. *ANALYSE DES RESULTATS EXPERIMENTAUX*

Nous avons mis en évidence plusieurs transitions nouvelles de 7,1 à 880 keV, porté une attention spéciale à une transition de 72,00 keV interdite par K, tenté de donner une détermination précise de certaines multipolarités.

(1) Ces résultats ont été depuis confirmés par BISGÅRD et coll. (47).

TABLEAU 2

Spectre Auger K

Newton $Os \rightarrow Re$		Présent travail [45] $W \rightarrow Re$		Interprétation	Calculs théoriques	
E_e	Int	E_e	Int		E_e	Int
46,40	1,0	46,37	(1,0) ± 0,1	KL_IL_I	46,40	1,00
47,01	1,4	46,91	1,5 ± 0,15	KL_IL_{II}	46,97	1,20
47,51	0,1 ± 0,05	47,41	0,1 ± 0,05	$KL_{II}L_{II}$	47,55	0,15
48,37	1,1	48,35	0,9 ± 0,1	KL_IL_{III}	48,37	2,27
48,91	2,0	48,91	1,7 ± 0,15	$KL_{II}L_{III}$	48,93	4,32
50,37	0,95	50,32	0,8 ± 0,1	$KL_{III}L_{III}$	50,36	2,40
56,19	0,44	56,18	0,8 ± 0,15	KL_IM_I	56,12	0,31
56,39	0,30			KL_IM_{II}	56,38	0,19
			0,69 ± 0,15	KL_IM_{III}	56,71	0,37
56,68	0,62	56,65		$KL_{II}M_I$	56,68	0,16
57,30	0,38	57,25	0,55 ± 0,15	$KL_{II}M_{III}$	57,27	0,93
57,71	0,32	57,76	0,39 ± 0,2	$KL_{II}M_{IV}$	57,69	0,055
58,11	0,32		0,75 ± 0,2	$KL_{III}M_I$	58,11	0,31
58,35	0,59	58,19		$KL_{III}M_{II}$	58,37	0,80
58,65	0,60	58,69	0,70 ± 0,2	$KL_{III}M_{III}$	58,70	0,85
60,66	0,16 ± 0,008	60,57	0,61 (1) ± 0,2	$KL_{III}N$	60,60	
				$KM_{II}N_{II}$	66,23	
	0,3 ± 0,2 (2)	66,1	0,30 ± 0,15	$KM_{II}M_{III}$	66,56	
				$KM_{III}M_{III}$	66,88	

(1) Superposée à une raie de conversion

(2) Valeur obtenue par Johnson et Foster pour le spectre Auger de l'argent

TABLEAU 3

Spectre de conversion interne

E_{e^-}	E	couche électronique	Intensité	E_{e^-}	E	couche électronique	Intensité
4,14	7,07	M_I	(a)	103,47	114,01	L_{III}	$\leq 0,04$
4,4	7,1	M_{II}	(a)		+		
23,69	36,22	L_I	$0,56 \pm 0,05$		106,40	M_I	
24,30	36,26	L_{II}	$0,12 \pm 0,01$	106,29	106,92	N	$\leq 0,04$
25,70	36,24	L_{III}	$0,10 \pm 0,01$	108,5	180,2	K ?	$\leq 0,04$
26,51	98,19	K	$0,026 \pm 0,01$?	110,81	113,74	M_I	$0,07 \pm 0,02$
	ou 38	L		113,6	114,2	N_I	$\leq 0,04$
33,36	36,29	M_I	$0,13 \pm 0,02$	116,3	188,0	K	$\leq 0,04$
33,61	36,29	M_{II}	$0,04 \pm 0,02$	119,6	132,1	L_I	$0,06 \pm 0,02$
34,87	106,55	K	$0,7 \pm 0,07$	121,71	134,24[b]	L_I	$15,3 \pm 0,5$
34,25	49,21	L_{II}	$\leq 0,03$	122,28	134,24[b]	L_{II}	$2,1 \pm 0,2$
38,59	49,13	L_{III}	$\leq 0,03$	123,70	134,24[b]	L_{III}	$0,73 \pm 0,8$
42,03	113,71	K	$1,3 \pm 0,1$	125,2	196,9	K	$\leq 0,02$
44,66	57,19	L_I	$\leq 0,03$	128,8	131,7	M_I	$\leq 0,02$
45,16	57,12	L_{II}	$\leq 0,035$		ou 200,5	K	
45,46	57,99	L_I	$0,05 \pm 0,02$	131,31	134,24[b]	M_I	$4,2 \pm 0,2$
46,02	57,98	L_{II}	$0,08 \pm 0,04$	131,59	134,27	M_{II}	$\leq 0,05$
49,56	62,09	L_I	$0,07 \pm 0,03$	133,63	134,26	N	$1,2 \pm 0,1$
50,86	122,24	K	$\leq 0,03$	134,24	134,25	O	$0,4 \pm 0,1$
	ou 63	L		134,52	206,20		$2,0 \pm 0,2$
51,56	62,10	L_{III}	$\leq 0,03$	138,4	210,1	K	$\leq 0,04$
59,47	72,00[b]	L_I	$5,5 \pm 0,3$	145,2	216,9	K ?	$\leq 0,04$
60,04	72,00[b]	L_{II}	$2,6 \pm 0,2$	151,3	223,0	K ?	$\leq 0,04$
60,57[c]	132,25	K	$0,32 \pm 0,13$	167,2	238,9	K	$0,31 \pm 0,02$
61,46	72,00[b]	L_{III}	$2,8 \pm 0,2$	169,3	241,0	K ?	$0,08 \pm 0,02$
62,56	134,24[b]	K	100	174,4	246,1	K	$0,24 \pm 0,04$
64,64	77,2	L_I	$0,1 \pm 0,05$	175,3	247,0	K ?	$\leq 0,04$
69,07	72,00[b]	M_I	$1,3 \pm 0,1$	188,0	259,7	K ?	$\leq 0,02$
69,33	72,01	M_{II}	$0,63 \pm 0,05$	193,7	206,2	L_I	$0,48 \pm 0,18$
69,64	72,01	M_{III}	$0,77 \pm 0,05$	194,2	206,2	L_{II}	$\leq 0,06$
70,02	71,97	M_{IV}	$0,19 \pm 0,05$	195,6	206,1	L_{III}	$\leq 0,06$
70,09	71,98	M_V	$0,11 \pm 0,04$	203,2	206,1	M	$0,27 \pm 0,05$
71,36	72.03	N_I	$0,48 \pm 0,05$	209,4	281,1	K ?	$\leq 0,04$
71,66	72,04	$N_{II}+N_{III}$	$0,25 \pm 0,05$	214,4	286,1	K ?	$\leq 0,04$
71,91	71,99	O_I	$0,15 \pm 0,05$	221,3	293,0	K ?	$\leq 0,04$
73,46	145,14	K	$\leq 0,04$	286,4	238,9	L_I	$0,08 \pm 0,03$
	ou 85	L		232,9	245,4	L_I	$0,08 \pm 0,03$
94,04	106,57	L_I	$0,16 \pm 0,02$	407,9	479,6[b]	K	$5,9 \pm 0,2$
94,53	106,49	L_{II}	$\leq 0,03$	440,3	512,0	K	$0,15 \pm 0,02$
96,01	106,55	L_{III}	$\leq 0,03$	467,1	479,6[b]	L_I	$0,85 \pm 0,08$
101,15	113,68	L_I	$0,35 \pm 0,04$	467,6	479,6[b]	L_{II}	$0,43 \pm 0,06$
101,81	113,77	L_{II}	$\leq 0,04$	469,1	479,6[b]	L_{III}	$0,27 \pm 0,04$

E_{e^-}	E	couche électronique	Intensité	E_{e^-}	E	couche électronique	Insnteité
476,7	479,6 [b]	M	0,35±0,02	613,8	685,5 [b]	K	1,5 ±0,08
480,2	551,9	K	0,33±0,02	620,8	692,5	K	≤0,08
499,3	511,8	L_I+L_{II}	≤0,04				
538,5	551,0	L_I+L_{II}	≤0,05	673,2	685,7	L	0,30±0,03
546,7	618,4	K	3,0 ±0,15		745	K	
548,5	620,2	K	≤0,1	682,6	685,5	M	0,08±0,02
550,3	622,0	K	≤0,1	685	686	N	≤0,04
551,2	622,9	K	≤0,1	691	763	K	0,06±0,02
553,8	625,5	K	≤0,1	701,0	772,7	K	1,2 ±0,06
569,4	641,1	K	≤0,08	760	772,5	L	0,20±0,03
597,3	669,0	K	≤0,08	770,2	773,1	M	0,05±0,01
605,7	618,2	L	0,46±0,04	792	864	K	0,08±0,02
613,5	626,0	L	≤0,02	807	879	K	0,016±0,005

(*a*) $\frac{M_I}{M_{II}} \geqslant 5$

(*b*) Ces raies ont été prises comme étalons d'énergie, le rayonnement correspondant ayant été mesuré au cristal courbe.

(*c*) Raie superposée à $K\ L_{III}\ N$.

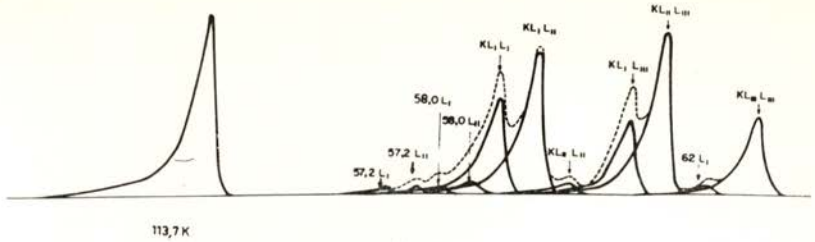


Fig. 4

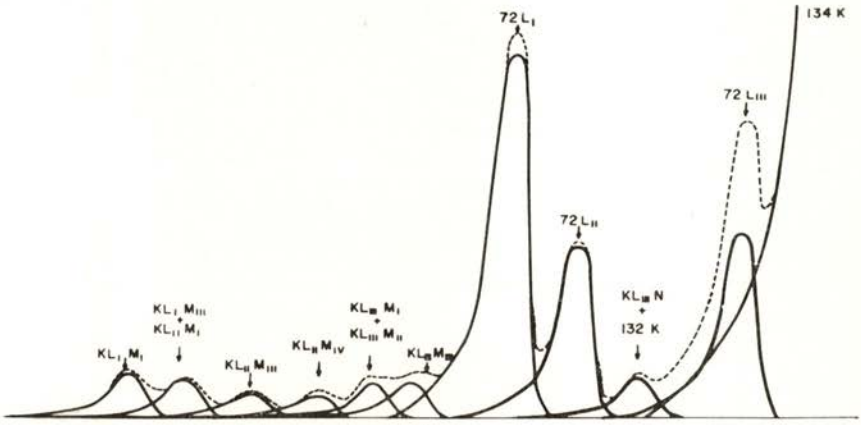


Fig. 5

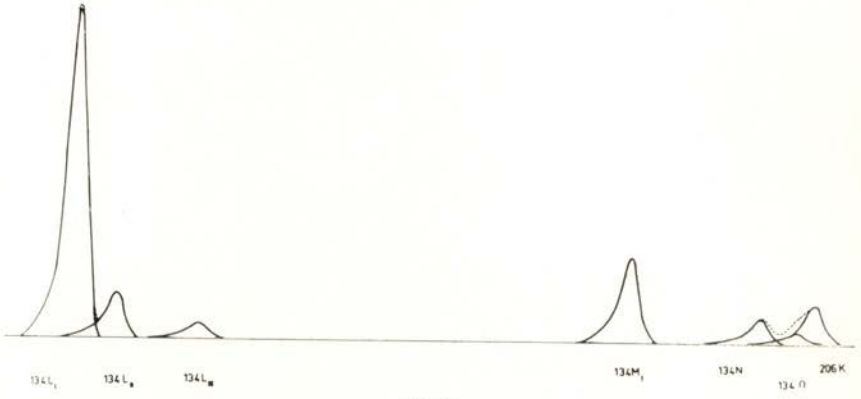
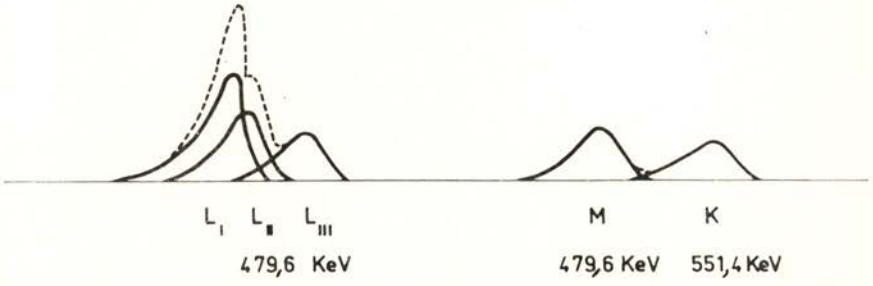
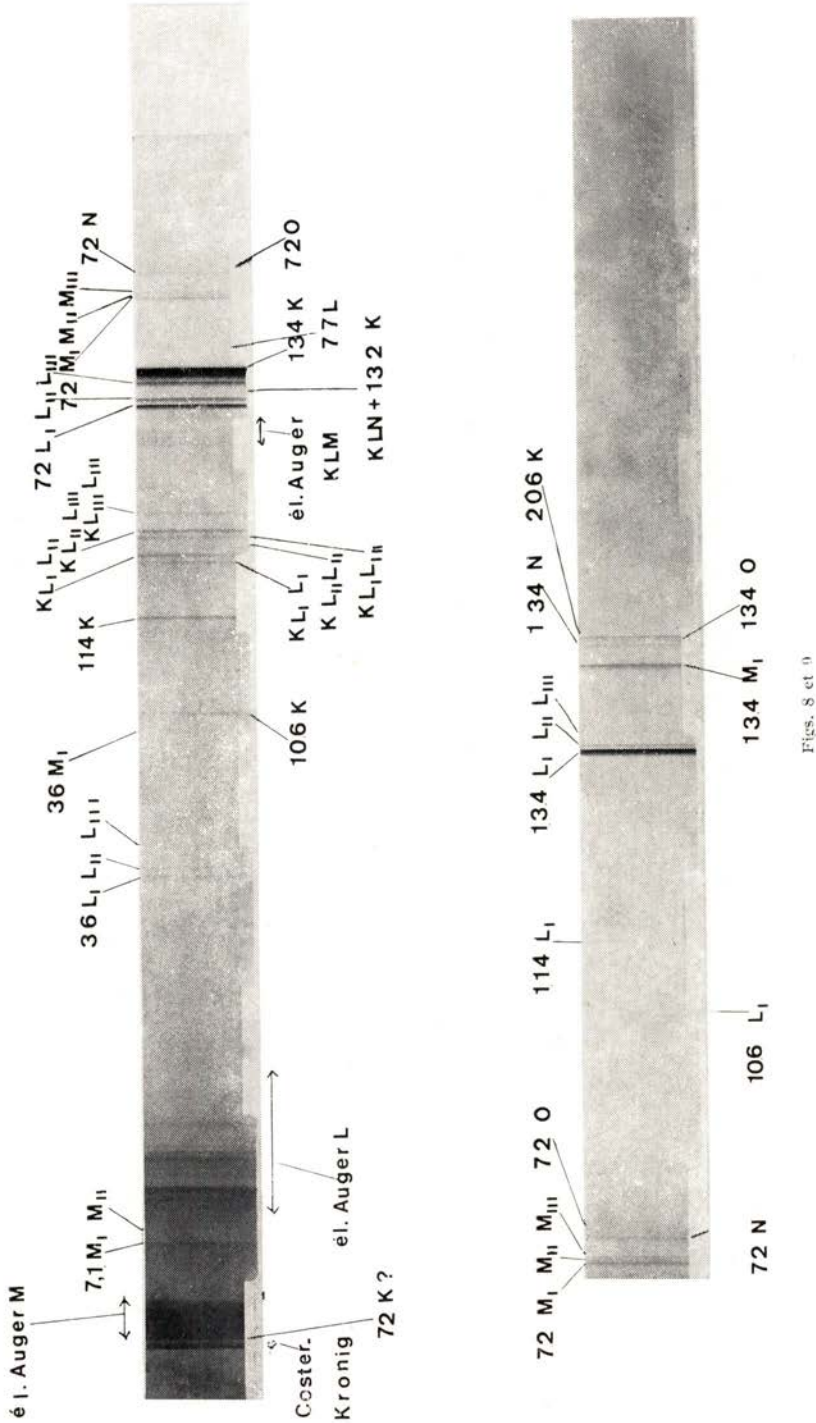


Fig. 6



Fig, 7


él. Auger M
7,1 M_I M_II
72 K ?
Coster. Kronig
él. Auger L
36 L_I L_II L_III
36 M_I
114 K
106 K
72 L_I L_II L_III
72 M_I M_II M_III 72 N
KL_I L_II
KL_II L_III
KL_III L_III
KL_I L_I
KL_II L_II
KL_I L_III
él. Auger KLM
KLN + 132 K
134 K 72 O
77 L
134 L_I L_II L_III
1 34 N 206 K
134 M_I 134 O
114 L_I
106 L_I
72 M_I M_II M_III 72 O
72 N

Figs. 8 et 9

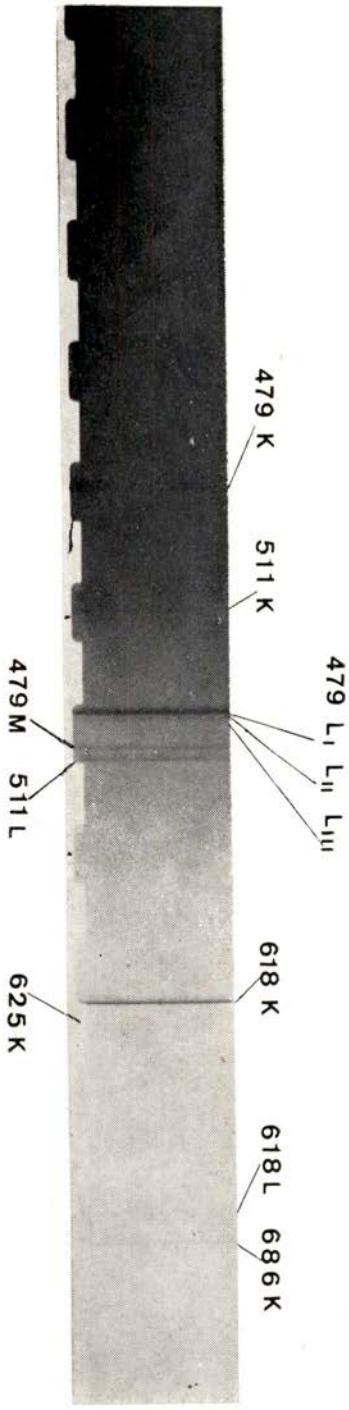


FIG. 10

Nous avons enfin essayé de vérifier expérimentalement la correction apportée par CHU et PERLMAN (54) aux tables de ROSE (53) pour tenir compte de l'effet d'écran.

Transition de 7,1 keV

Comme nous l'avons remarqué dans le paragraphe précédent, nous avons observé, entre les spectres Auger M et Auger L, deux raies nucléaires à 4,14 ± 0,05 keV et 4,4 ± 0,2 keV. Si ces deux raies étaient des raies K, étant donnée la très faible efficacité photographique du film à une aussi basse énergie, elles correspondraient à des transitions très fortement converties et dont les raies L, situées vers 60 keV, dans une région où l'efficacité du film est environ 16 fois plus forte, devraient être très intenses; or, elles n'apparaissent pas. De même, si c'étaient des raies L, on devrait pouvoir observer au moins une raie du groupe M vers 14 keV, et l'on ne décèle aucune raie entre 12 et 23 keV. Ceci nous conduit à penser que ce sont les raies M_{I} et M_{II} d'une transition de 7,1 keV.

La raie de 4,4 keV est très faible et son intensité n'est pas mesurable au microdensitomètre, nous en déduisons que $\frac{M_{\mathrm{I}}}{M_{\mathrm{II}}} \geqslant 5$. Le fait que la raie M_{III} ne soit pas observée nous donne une limite inférieure du rapport $\frac{M_{\mathrm{I}}}{M_{\mathrm{III}}} \geqslant 20$. Nous ne pouvons rien déduire de la non-observation des raies M_{IV} et M_{V} qui seraient situées dans la région où commence le spectre Auger L.

Les tables de ROSE (55) ne donnent pas de coefficient théorique α_{M} pour des transitions d'énergie inférieure à 25 keV et il semblait difficile d'extrapoler les rapports des coefficients pour une transition de 7 keV. Nous avons utilisé les résultats théoriques de O'CONNEL et CARROL (63) qui ont effectué des calculs de coefficients de conversion pour des valeurs voisines du seuil de conversion; pour $Z = 75$, les valeurs des coefficients α_{M} sont donnés pour une énergie de transition de 9 keV.

Nous comparons dans le tableau 4 nos résultats pour une transition de 7 keV aux valeurs de O'Connel et Carrol pour une transition de 9 keV; il nous semble raisonnable d'en déduire que la transition de 7 keV est dipolaire magnétique avec une contribution de E_2 ($\delta^{-2} \leqslant 10^{-3}$). Nous avons trouvé intéressant de rapprocher dans ce tableau les valeurs théoriques des rapports pour des transitions de 9 keV et

TABLEAU 4

Transition de 7,1 keV

Rapport mesuré	Valeur expérimentale	*E*1		*E*2		*M*1		*M*2		Multipolarité déduite de chaque rapport	Conclusion
		O'CONNEL (9 keV)	ROSE (25 keV)	O'CONNEL (9 keV)	ROSE (25 keV)	O'CONNEL (9 keV)	ROSE (25 keV)	O'CONNEL (9 keV)	ROSE (25 keV)		
M_I/M_{II}	$\geqslant 5$	0,81	1,2	0,015	0,017	9,77	9,47	22,6	13,8	*M*1 ou *M*2 (+ *E*2)	*M*1
M_I/M_{III}	$\geqslant 20$	0,39	0,82	0,013	0,014	62,9	79,2	0,94	1,6	*M*1 (+ *E*2)	(+ *E*2)

TABLEAU 5

Transition de 36,23 keV

Rapport mesuré	Présent travail	BISGÅRD et coll.	*E*1	*E*2	*M*1	*M*2	Multipolarité déduite de chaque rapport	Conclusion
L_I/L_{II}	$4,7 \pm 1$	7,3	1,32	0,0141	10,15	13,53	$M1 + (0,9 \pm 0,4)\ \%\ E2$ ou $E1 + M2$	
L_I/L_{III}	$4,9 \pm 1$	4,6	0,96	0,0117	78,4	2,0	$M1 + (1,2 \pm 0,4)\ \%\ E2$	$M1 + (0,8 \pm 0,4\ \%)\ E2$
L_{II}/L_{III}	$1,2 \pm 0,2$	0,63	0,73	0,83	7,7	0,15	$M1 + \left(0,4\ ^{+0,4}_{-0,2}\right)\ \%\ E2$	

25 keV respectivement et remarqué que, exception faite d'une divergence pour un rayonnement M_2, ils ne différaient pas d'une manière sensible; ceci montre que, si les coefficients absolus varient très vite, les rapports de conversion entre sous-couches varient très lentement dans cette région.

L'incertitude sur l'effet de préaccélération à si basse énergie rend très aléatoire une comparaison de l'intensité de ces raies avec celles du reste du spectre de conversion.

Transition de 36,23 keV

GALLAGHER et coll. (18) n'avaient vu qu'une raie d'électrons à 24 keV, et l'avaient interprétée comme la raie K d'une transition de 96 keV. Par la suite, BISGÅRD et coll. (22) (47) ont, comme nous (45), observé les trois raies L et la raie M_{I}, établissant ainsi d'une façon certaine l'existence de cette transition.

D'après nos résultats, ce serait un rayonnement dipolaire magnétique avec une adjonction de E_2 de $(0{,}8 \pm 0{,}4\ \%)$. BISGÅRD et coll. trouvent $(0{,}6 \pm 0{,}1\ \%)$ bien que leurs rapports de coefficients L diffèrent des nôtres; mais ils semblent n'avoir employé pour calculer la multipolarité que le rapport $\dfrac{L_{\mathrm{I}} + L_{\mathrm{II}}}{L_{\mathrm{III}}}$.

Transitions de 49, 57, 58 et 62 keV

Ces quatre transitions ne sont établies chacune que par deux raies L extrêmement faibles. Le fait que seules les raies L_{II} et L_{III} de la transition de 49 keV soient observées nous conduits à penser que sa multipolarité est $E2$.

Remarques sur les raies de conversion de 26,51 et 50,86 keV

Etant donné que ces raies sont très faibles, rien ne nous permet de déterminer si elles doivent être interprétées comme les raies K de transitions de 98,2 et 122,5 keV, ou des raies L de transitions de 38 et 63 keV respectivement.

Transition E_1 de 72 keV interdite par K

a) *Conversion dans la couche K*

Ainsi que l'ont montré différents travaux (17) (18) (50) (51), l'énergie de la transition de 71 keV (71,995 $\pm$ 0,004 keV) (51) est supérieure à l'énergie de liaison K (71,678 keV).

Comme nous l'avons dit précédemment (44), nous avons observé, entre 0 et 2 keV, des bandes correspondant aux spectres Coster-Krönig et Auger M et N, où apparaissent des maxima de noircissement, mais qu'il n'est pas possible de décomposer. Nous avons comparé ce spectre à celui obtenu dans les mêmes conditions par MOREIRA (7) pour la transmutation $Ta^{182} \rightarrow W^{182}$; la comparaison des deux films ne montre pas de différence appréciable (en particulier on retrouve exactement les mêmes maxima pour le spectre Auger M) sauf à 0,3 keV où il apparaît par différence une raie pouvant correspondre à la conversion K de la raie de 72 keV.

De nouvelles expériences sont en cours pour tenter d'approfondir cette question; il serait intéressant en particulier de comparer le spectre de basse énergie d'une transmutation aboutissant à un autre isotope du rhénium.

b) *Conversion dans la couche L.*

La transition de 72 keV est une des plus intenses et tous les auteurs s'accordent pour lui assigner la multipolarité E_1; l'étude précise de sa conversion L présente poutant un grand intérêt pour les raisons suivantes:

Cette transition est interdite par K au premier ordre ($\nu = K - 1 = 1$). Or, VERGNES (17) a remarqué qu'elle était retardée d'un facteur $3{,}5.10^6$ par rapport à la valeur de Weisskopf et $2{,}9.10^5$ par rapport à la valeur de Moszkowski, ce qui est plus important que ce que l'on observe habituellement pour une telle interdiction.

ASARO, STEPHENS, HOLLANDER et PERLMAN (64) ont observé, dans une étude systématique, que les rayonnements E_1 fortement retardés pouvaient présenter des anomalies dans leurs coefficients de conversion L (les coefficients L_I et L_{II} seraient plus importants que les coefficients théoriques, le coefficient L_{III} restant inchangé), l'anomalie se produisant au voisinage ou en-dessous du seuil de conversion K et son amplitude augmentant avec le retard de la transition. HERR-

LANDER et EWAN (65) en ont récemment montré de nouveaux exemples, ainsi que J. VALENTIN et N. N. PERRIN (66).

CHURCH et WENESER (67) donnent la première explication théorique de ce phénomène; il serait dû à la pénétration des électrons du cortège à l'intérieur du noyau; les électrons liés seraient plus sensibles à cet effet dans les états $\frac{1}{s_2} \longleftrightarrow \mathrm{P}\frac{1}{p_2}$ et ces transitions apparaissent dans la conversion L_{I} et L_{II} et non dans la conversion L_{III}.

Il serait donc intéressant de savoir si la transition de 72 keV présente une anomalie, bien que ce ne soit pas prévu théoriquement pour les transitions interdites par K (68).

Il est assez difficile de séparer les trois raies L, car la très forte raie K de la transition de 134 keV et la raie L_{III} de celle de 72 keV ne sont distantes que de 1,1 keV (fig. 5). GALLAGHER et coll. (18) n'ont pas séparé la raie L_{III}; plus tard HAN et coll. (23), STEPIC et MLADJENOVIC (24), et BISGÅRD et coll. (47) ont pu isoler cette raie mais leur décomposition ne fait pas apparaître, entre les raies L_{II} et L_{III}, la raie de 60,57 keV que nous avons mise en évidence (45) (73) et dont l'existence a été confirmée depuis par une mesure de BISGÅRD et coll. 147). Nous avons séparé ces trois raies (fig. 5, tableau 6) et notre conclusion est que la transition de 72 keV est un E_1 pur ne présentant pas d'anomalie.

Transition de 77,2 keV

La découverte par BISGÅRD et coll. (47) du niveau de 589 keV, confirmée récemment par REIDY et WIEDENBECK (83), rend très probable l'existence d'une transition $M1$ $(+ E2)$ entre ce niveau rotationnel et le niveau de 511 keV sur lequel il est construit. Nous avons observé une raie de 64,64 keV qui peut s'interpréter comme la conversion dans la couche L_{I} d'une transition de 77,2 $\pm$ 0,1 keV [d'après les dernières mesures au cristal courbe (83), l'énergie de cette transition serait 588,96 $\pm$ 0,06 — (511,648 $\pm$ 0,045) = 77,3 $\pm$ 0,1].

Le fait que l'on n'observe que la raie L_{I} de cette transition est compatible avec la multipolarité attendue, en tenant compte du fait que la raie L_{I} même n'est pas loin de la limite d'intensité observable (fig. 11) (deux à trois fois le bruit de fond). Tout ce qu'on peut dire sur la multipolarité est que les multipolarités électriques d'ordre supérieure à deux sont exclues.

TABLEAU 6

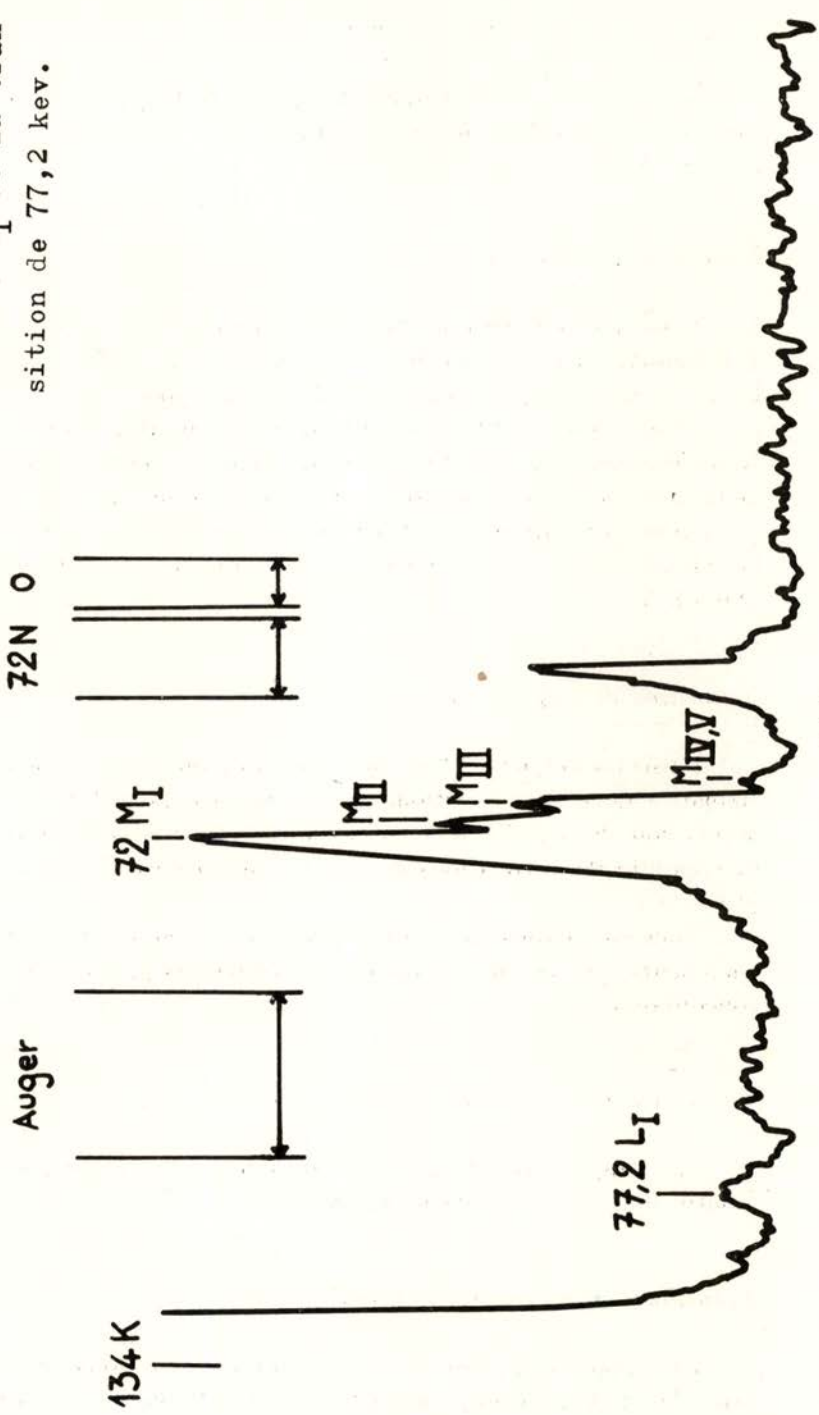
Transition de 72,0 keV

Rapport mesuré	Présent travail (49)	GALLAGHER (23)	BISGÅRD (27)	E_1	M_2	Multipolarité déduite de chaque rapport	Conclusion
L_I/L_{II}	$2{,}1 \pm 0{,}2$	3,0	2,7	2,43	9,8	100 % $E1$	$E1$ pur
L_I/L_{III}	$1{,}9 \pm 0{,}2$	—	2,0	2,00	3,2	$E1$ ($M2 < 4$ %)	
L_I+L_{II} / L_{III}	$2{,}9 \pm 0{,}3$	—	2,7	2,87	3,6	$E1$ ($M2 < 2$ %)	

TABLEAU 7

Transitions de 106,5 keV et 113,7 keV

$E\gamma$	Rapport mesuré	Valeur expérimentale	E_1	E_2	M_1	M_2	Multipolarité déduite de chaque rapport	Conclusion
106,5	L_I/L_{II}	≥ 5	2,9	0,10	13,2	6,5	$M1$ ($E2 \leq 9$ %)	$M1$ ($E2 \leq 9$ %)
	L_I/L_{III}	≥ 5	3	0,10	92,6	4,6	$M1$ ($2 \leq 10$ %)	
113,7	L_I/L_{II}	≥ 5	3,2	0,12	13,5	6,3	$M2$, $M1$ ($E2 \leq 8$ %)	$M1$ ($E2 \leq 5$ %)
	L_I/L_{III}	≥ 10	3,1	0,13	93,2	4,8	$M1$ ($E2 \leq 5$ %)	



Microdensitogramme (avec grain intégré) mettant en évidence la raie L_I de la transition de 77,2 kev.

Fig. 11

Transitions de 106,5 et 113,7 keV

BISGÅRD (47) avait déduit du rapport K/L que ces deux transitions étaient des M_1 contenant, l'une, 12 ± 2 % et, l'autre, moins de 2 % de E_2.

Transition de 128 keV

Nous avons remarqué dans le paragraphe précédent que, pour des considérations d'intensité, une raie nucléaire était superposée à la raie Auger $KL_{III}N$ situé à 60,57 keV. Ce pourrait être la raie K d'une transition de 132,2 keV ou la raie L d'une transition de 73 keV. Nous préférons la première interprétation car nous avons observé deux raies pouvant correspondre à la conversion dans une couche L et M d'une transition de 132 keV (la précision est très mauvaise pour la raie M et nous ne pouvons exclure l'hypothèse d'une raie K de 200,5 keV).

Transition de 134,24 keV

Plusieurs auteurs ont mesuré par différentes méthodes la multipolarité de cette transition qui est un M_1 possédant une légère adjonction de E_2. KLIMENTOVSKAIA et SHAVRIN (15) trouvent, par une mesure de corrélations angulaires sur la cascade 72 — 134 keV $(2,1 \pm 0,5)$ % E_2.

Nous comparons dans le tableau 8 nos valeurs à celles des autres chercheurs qui se sont servis de spectromètres β; les résultats sont concordants.

Transition de 206,2 keV

La comparaison de nos résultats avec les valeurs théoriques montre que cette transition est un M_2.

Transitions de 238,9 et 246,1 keV

Le rapport K/L, qui est la seule donnée que nous possédions au sujet de ces transitions, est trop peu sensible dans cette région pour

TABLEAU 8

Transition de 134,24 keV

Rapport mesuré	CALLAGHER et coll. (18)	STEPIĆ et MLADJENOVIĆ (24)	BISGÅRD et coll. (22)	Présent travail (45)	Valeurs théoriques		Taux de $E2$ déduit de chaque rapport
					$M1$	$E2$	
L_I/L_{II}	7,33	—	—	$7,4 \pm 0,7$	10,86	0,16	$(3,7 \pm 1,5)$ %
L_I/L_{III}	30	—	—	21 ± 2	94,0	0,2	$(3,7 \pm 0,5)$ %
$(L_I+L_{II})/L_{III}$	34	39 ± 4	22	24 ± 3	104	1,4	$(3,6 \pm 0,6)$ %
Taux de $E2$	$(2,6 \pm 1,4)$ %	$(1,8 \pm 0,5)$ %	(4 ± 2) %	$(3,7 \pm 0,5)$ %			

TABLEAU 9

Transition de 206,2 keV

Rapport mesuré	Valeur expérimentale	E_1	E_2	M_1	M_2	Multipolarité déduite de chaque rapport	Conclusion
L_I/L_{II}	$\geqslant 7$	5,01	0,36	10,08	7,5	M_1 ou M_2	M_2
L_I/L_{III}	$\geqslant 6$	5,04	0,06	0,06	9,2	E_1 ou M_2	
K/L_I	$4,0 \pm 1,2$	8,40	8,27	8,27	4,85	M_2	

permettre une détermination précise de leur multipolarité. D'après les coefficients absolus de GALLAGHER et coll. (18) et BISGÅRD et coll. (22, 47), ce sont des mélanges $M_1 + E_2$; d'après ces derniers, le taux de E_2 serait de (25 ± 5) % pour 238,9 keV et (20 ± 10) % pour 246,1 keV.

Transition de 479,6 keV

Comme nous le verrons dans l'étude du schéma de niveaux du Re^{187}, il est très important de déterminer le spin du niveau de 685,5 keV; il faudrait en particulier savoir s'il existe un taux, même très léger, de M_1 dans la transition E_2 de 479,6 keV.

Nous avons effectué de nombreux microdensitogrammes afin de décomposer les raies L (fig. 6); la comparaison avec la théorie (tableau 10) montre que cette transition est un E_2 pur.

Connaissant la multipolarité exacte de cette transition, nous avons calculé les valeurs absolues des coefficients de conversion K pour les transitions supérieures, pour lesquelles le rapport K/L est très peu significatif. Nous avons pour cela comparé les résultats obtenus en spectrométrie β et γ en posant $\alpha_K(479{,}6) = 1{,}82.10^2$ (valeur de Sliv pour un rayonnement E_2).

Transition de 511 keV

Pour cette transition, la valeur de l'intensité mesurée au cristal courbe par GALLAGHER et coll. (18) leur fournit un résultat plus précis que le nôtre, leur permettant de donner pour le taux de mélange M_1 une limite supérieure de 1 %. Soit E_2 $(M_1 \leqslant 1\ \%)$.

Transitions de 685,5 keV

D'après GALLAGHER et coll. (18) et BISGÅRD et coll. (22, 47), cette transition serait un E_1 alors que CORK et coll. (13) l'avaient interprétée comme un E_2 parce qu'ils disaient observer L_{II} et non L_I; or une telle détermination sur une transition de cette énergie demande une précision de plus de 1 % sur les mesures d'énergie, qui est à la limite de ce qu'ils pouvaient obtenir. D'autre part, HAN et coll. (23) lui atribuent la multipolarité M_2 d'après la mesure du

TABLEAU 10

Transitions d'énergie supérieure à 400 keV

E (keV)	Quantité mesurée	Valeurs expérimentales	Valeurs théoriques (SLIV)				Multipolorité déduite de chaque mesure	Conclusion
			$E1$	$E2$	$M1$	$M2$		
479,6	L_I/L_{II}	$1{,}9 \pm 0{,}4$	9,2	1,52	11,1	6,9	$E2 > 91$ %	
	L_I/L_{III}	$3{,}0 \pm 0{,}5$	10,9	3,50	116	26,6	$E2$	
	L_{II}/L_{III}	$1{,}6 \pm 0{,}5$	1,18	2,27	10,24	3,4	$E2$	$E2$ pur
	K/L_{III}	22 ± 4	202	25,5	778	160	$E2 > 99$ %	
	α_K	$1{,}8210^{-2}$ (déf)		$1{,}82\ 10^{-2}$				
511,9	α_K	$(1{,}8 \pm 0{,}6)\ 10^{-2}$	$5{,}73\ 10^{-3}$	$1{,}54\ 10^{-2}$	$4{,}7\ 10^{-2}$	$1{,}04\ 10^{-1}$	$E2$ ($M1 < 30$ %)	$E2$
551,4	α_K	$(4{,}6 \pm 1)\ 10^{-3}$	$4{,}97\ 10^{-3}$	$1{,}03\ 10^{-2}$	$4{,}01\ 10^{-2}$	$1{,}02\ 10^{-1}$	$E1$ ($M2 < 2$ %)	$E1$
	K/L_I+L_{II}	$\geqslant 6{,}5$	6,55	4,17	6,14	5,28	$E1$	
618,4	α_K	$(3{,}3 \pm 0{,}6)\ 10^{-2}$	$3{,}95\ 10^{-3}$	$1{,}05\ 10^{-2}$	$3{,}08\ 10^{-2}$	$8{,}39\ 10^{-2}$	$M1$	$M1$
	K/L	$6{,}5 \pm 0{,}6$	6,58	4,45	6,14	4,38	$E1$ ou $M1$	
685,5	α_K	$(3{,}8 \pm 0{,}8)\ 10^{-3}$	$3{,}25\ 10^{-3}$	$8{,}60\ 10^{-2}$	$2{,}38\ 10^{-2}$	$6{,}25\ 10^{-2}$	$E1$ ($M2 < 2$ %)	$E1$
	$K/L+746K$	$5{,}0 \pm 0{,}7$	6,60	4,70	6,14	5,43	voir texte	
772,7	α_K	$(1{,}9 \pm 0{,}4)\ 10^{-2}$	$2{,}55\ 10^{-3}$	$5{,}5\ 10^{-3}$	$1{,}7\ 10^{-2}$	$4{,}3\ 10^{-2}$	$M1$	$M1$
	K/L	$6{,}0 \pm 1$	6,1	5,02	6,14	5,51	$E1$ $E2$, $M1$, $M2$	
864	α_K	$(1{,}6 \pm 0{,}4)\ 10^{-2}$	$2{,}05\ 10^{-3}$	$5{,}2\ 10^{-3}$	$1{,}2\ 10^{-2}$	$3{,}2\ 10^{-2}$	$M1$	$M1$
880	α_K	$(7 \pm 2)\ 10^{-3}$	$2\ 10^{-3}$	$5{,}1\ 10^{-3}$	$1{,}2\ 10^{-2}$	$3{,}1\ 10^{-2}$	$E2$ ($M1 < 57$ %)	

rapport K/L, qui est, ainsi que nous l'avons remarqué, très peu sensible dans cette zone d'énergie.

D'après notre mesure du coefficient α_K, cette transition est bien un E_1 pur.

Transition de 746 keV

ARNS et WIEDENBECK (20) et MICHAELIS (26) ont observé par coïncidences $\gamma - \gamma$ une transition de 732 keV représentant 2,8 % et 1,4 % respectivement de l'intensité non convertie de la transition de 479,6 keV.

Nous n'avons vu cette transition ni en γ (46) ni en conversion interne et nous pouvons donner pour son intensité γ une limite de 0,1 % de la transition γ de 479 keV.

Or, il a été trouvé en spectrométrie γ une transition de 746 ± 1 keV. D'autre part, nous avons remarqué que le rapport K/L de la transition de 686 keV était un peu trop faible pour correspondre à la multipolarité E_1 déterminée par le coefficient α_K; ceci pourrait être expliquée par la superposition à la raie L de 686 keV de la raie K de 746 keV. On peut en déduire (avec de larges limites d'erreur) le coefficient α_K de la transition de 746 keV.

Nous avons trouvé

$$\frac{K\ (686)}{L\ (686) + K(746)} = 5 \pm 0{,}7$$

Or,

$$\frac{K\ (686)}{L\ (686)} = 6{,}6 \text{ pour un } E_1$$

d'où l'on déduit

$$K\ (746) = K\ (686) \left(\frac{1}{5 \pm 0{,}7} - \frac{1}{6{,}6} \right)$$

Soit $0{,}036 < K\,(746) < 0{,}12$ (dans l'échelle d'intensités adoptée pour le tableau 3).

Le coefficient absolu de conversion dans la couche K de la transition de 746 keV est donc compris entre les limites suivantes: $1{,}2.10^{-2} < \alpha_K\,(746) < 4.10^{-2}$, ce qui correspond à une transition M_1

avec un mélange possible de E_2, le taux de mélange étant en tout cas inférieur à 57 %.

Transition de 880 keV

Il a été mis en évidence (46) (fig. 1) en spectrométrie γ une transition de 880 ± 1 keV, qui n'avait jamais été distinguée de celle de 864 keV. Quelques auteurs avaient cependant suggéré son existence. DJELEPOV, ROUMIANTZEV, KHOLNOV et SCHUKIN (19), observant le spectre de conversion externe émis par un radiateur d'or, ont remarqué que le pic de 864 keV était complexe, et donnent, pour la seconde transition, une énergie de 891 ± 9 keV (fig. 3); NATHAN et POPOV (35) ont excité à l'aide de particules α de 17 MeV un niveau de 880 ± 20 keV qu'il semble difficile d'identifier à celui de 864 keV se désexcitant vers le niveau fondamental par une transition M_1 pure.

Nous avons, d'autre part, observé dans le spectre de conversion interne une raie très faible de 807 ± 1 keV qui correspond à la conversion dans la couche K de la transition de 880 keV. En comparant nos résultats d'intensité γ et β, nous trouvons que, d'après le coefficient absolu dans la couche K de cette transition $\alpha_K(880) = (7 \pm 2)10^{-3}$, ce serait un E_2 avec un mélange possible de M_1 ($M_1 \leqslant 57$ %).

Remarques sur des transitions déterminées par une seule raie K très faible.

Nous pouvons rapprocher les transitions de 180,2, 293 et 763 keV de transitions vues par ARNS et WIEDENBECK (20) et MICHAELIS (26) en coïncidences $\gamma - \gamma$.

Nous avons observé, de plus, des raies très faibles pouvant correspondre à des raies K de transitions de 145, 188, 197, 210, 217, 223, 241, 247, 260, 281, 286, 620, 622, 623 et 641 keV.

Coefficients de conversion dans la couche M

Nous avons rassemblé (tableau 11) les données expérimentales que nous avons pu obtenir concernant les raies M; nous les avons comparées aux valeurs théoriques calculées avec (54) et sans (53) correction d'écran. Ces résultats manquant souvent de précision à

TABLEAU 11

Rapports de conversion M avec et sans correction d'écran

Comparaison avec l'expérience

$E\gamma$	Rapports mesurés	Valeurs expérimentales	Valeurs théoriques	
			Sans correction d'écran	Avec correction d'écran
36,23			$M1$	$M1$
	M_I/M_{II}	$3,3 \pm 2$	8,13	4,29
	L_I/M_I	$4,3 \pm 1,5$	2,52	6,24
72,00			$E1$	$E1$
	M_I/M_{II}	$2,1 \pm 0,4$	2,02	2,90
	M_I/M_{III}	$1,8 \pm 0,4$	1,56	2,18
	M_{II}/M_{III}	$0,85 \pm 0,15$	0,77	0,75
	L/M	$3,3 \pm 0,3$	2,48	3,30
113,7			$M1$	$M1$
	L_I/M_I	5 ± 1	2,4	5,4
134,24			96,3% $M1 \pm 3,7\%$ $E2$	96,3% $M1 + 3,7\%$ $E2$
	L_I/M_I	$3,7 \pm 0,4$	2,4	54,
206,2			$M2$	$M2$
	L_I/M	$1,7 \pm 0,8$	0,24	0,74
479,6			$E2$	$E2$
	L_I/M	$2,4 \pm 0,4$	1,25	2,16
772,7			$M1$	$M1$
	L/M	$3,4 \pm 1$	2,39	4,73

cause de l'intensité faible des raies M; il semble pourtant que la correction de Perlman soit, ainsi que l'a remarqué récemment BARNEOUD (69), le plus souvent vérifiée. Pourtant, pour la transition de 206 keV, la valeur expérimentale dépasse même la valeur corrigée.

6. *SCHEMA DE NIVEAU*

1°) ETATS DE NILSSON ET BANDES DE ROTATION

Nos résultats concernant cette partie du schéma de niveaux sont en bon accord avec les conclusions de GALLAGHER et coll. (18) et BISGÅRD et coll. (47).

2°) NIVEAUX VIBRATIONNELS

GALLAGHER et coll. (18) avaient les premiers émis l'hypothèse de la nature γ-vibrationnelle des niveaux de 511 et 686 keV. Cependant, pour celui de 511 keV, la possibilité $I = \frac{3}{2} +$ n'était pas exclue par ces auteurs. Nous allons voir que dans cette dernière hypothèse il serait difficile d'expliquer pourquoi, étant donnée la transition E_2 relativement intense vers le niveau fondamental, on n'observe pas d'embranchement vers le niveau $7/2 +$ de 134 keV.

Le rapport des probabilités de désexcitation E_2 vers ces deux niveaux devrait être théoriquement:

$$\frac{B_{E_2}(3/2 + \leftarrow 7/2 + 5/2)}{B_{E_2}(3/2 + \rightarrow 5/2 + 5/2)} \qquad \text{th.} = 1{,}32$$

Le rapport des intensités des raies de conversion K correspondantes serait (en ne prenant que les composantes E_2):

$$\frac{I_{ek}(377)}{I_{ek}(511)} = \frac{B_{E_2}(3/2 + \rightarrow 7/2 + 5/2)}{B_{E_2}(3/2 + \rightarrow 5/2 + 5/2)} \left(\frac{377}{511}\right)^5 \frac{\alpha_K(E_2)(377)}{\alpha_K(E_2)(511)} = 0{,}6$$

Or, on n'aperçoit aucune raie vers 300 keV. L'hypothèse d'un niveau $1/2 +$ semble donc beaucoup plus probable. Le seul état de Nilsson possible serait l'état de particule $\frac{1}{2} +$ [400]; mais, ainsi que l'a remarqué Gallagher, il devrait apparaître à une énergie supérieure à celle de l'état de particule $\frac{3}{2} +$ [402] attribué au niveau de 772,7 keV.

C'est grâce à cet argument que GALLAGHER et coll. (18) éliminent l'hypothèse d'un niveau intrinsèque et suggèrent que le niveau de 511 keV soit le niveau vibrationnel K_1 associé à l'état fondamental

$$\left((K_1 = \Omega - 2 = \frac{5}{2} - 2 = \frac{1}{2}\right).$$

Dernièrement, BISGÅRD et coll. (47) ont trouvé par coïncidences $e - \gamma$ un niveau de 589 keV alimenté à partir du niveau de 625 keV par la transition de 36 keV. Selon eux, il s'agirait du premier niveau de la bande de rotation basée sur le niveau de 511 keV (1).

L'un de nous a discuté la nature du niveau de 686 keV par ailleurs (42) (43). On peut remarquer (73) que la probabilité de désexcitation du phonon seul (transition de 480 keV) est égale (si l'on admet la mesure de vie moyenne de Langhoff) à

$$\frac{B_{E2}\ (480)}{B_{E2}\ s.p.} = 0{,}7$$

valeur compatible avec la nature vibrationnelle du niveau, selon la systématique.

Remarques sur les transitions E_1 de 551 et 686 keV

Les fortes transitions E_1 de 551 et 686 keV provenant de la désexcitation du niveau de 686 keV vers les premiers niveaux de la bande de rotation du niveau fondamental seraient interdites d'après les règles de sélection d'ALAGA (74) dans le cadre du modèle de NILSSON (3). Or, ces règles s'appliquent à deux transitions entre niveaux intrinsèques ($\nu = 0$, $K = \Omega$) et les transitions E_1 que nous considérons correspondent à la transition d'un nucléon avec annihilation simultanée d'un phonon. (Ici, $\Delta K = O$, $\Delta \Omega = 2$, $\Delta \nu = -2$, $\Delta N = 1$, $\Delta n_z = 1$, $\Delta \Lambda = 2$). Le calcul théorique des probabilités de telles transitions n'a jamais encore été fait, à notre connaissance.

On peut cependant remarquer que, comme il était prévu dans le modèle unifié (2), les rapports d'embranchement ne dépendent pas de la nature (vibrationnelle ou non) du niveau de départ.

---

(1) Récemment BISGÅRD et coll. (49) ont excité par diffusion inélastique plusieurs niveaux rotationnels de la bande 1/2, ce qui confirme ce résultat.

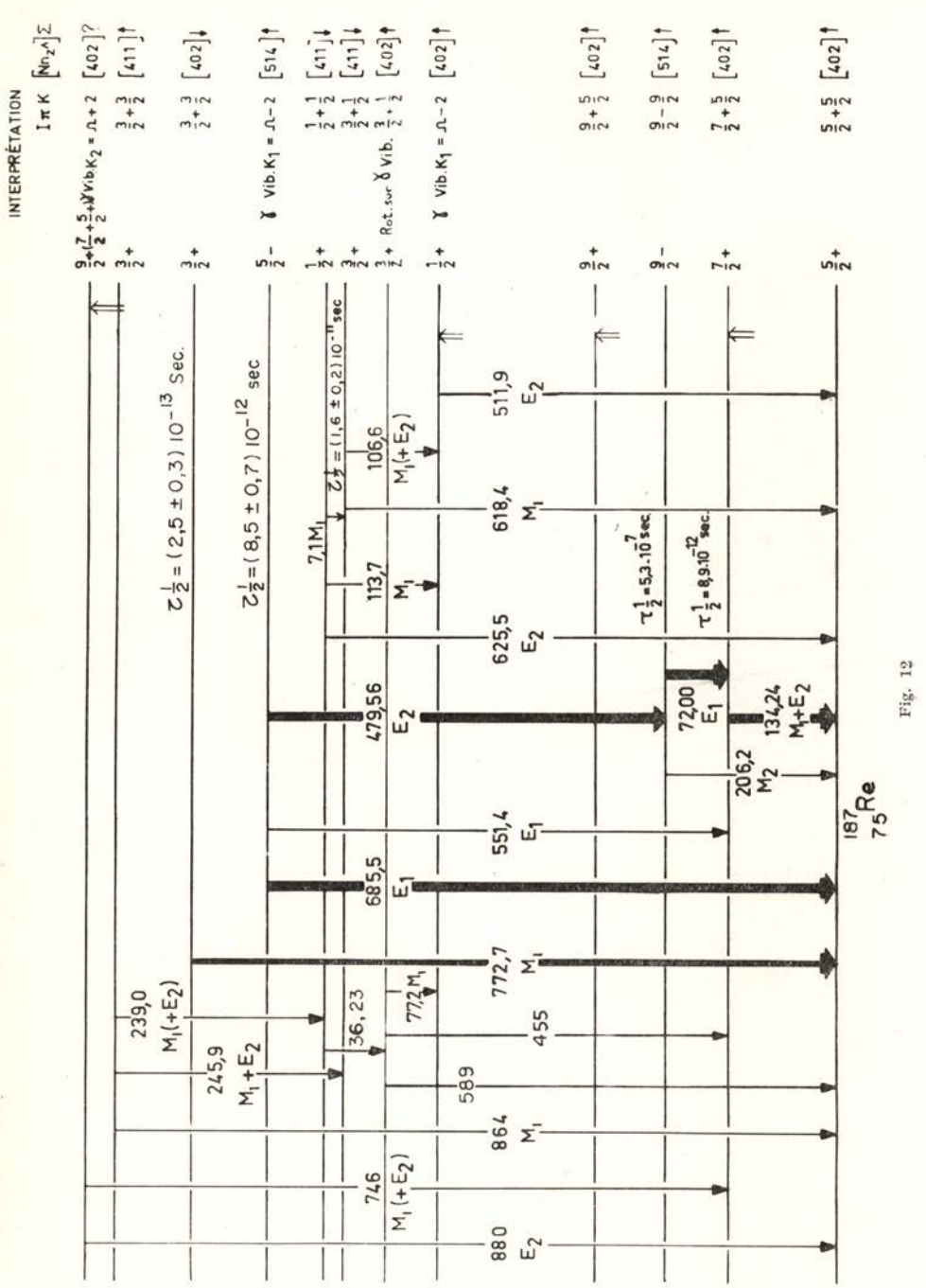

INTERPRÉTATION
I π K [Nn_Λ]Σ
E Kev
880
854
772,7
685,5
525,5
618,4
589
511,9
300
206,2
134,24
0
τ = (2,5 ± 0,3) 10⁻¹³ Sec.
τ = (8,5 ± 0,7) 10⁻¹² sec
τ = (1,6 ± 0,2) 10⁻¹¹ sec
τ½ = 5,3.10⁻⁷ sec
τ½ = 8,9.10⁻¹² sec.
239,0 M1(+E2)
245,9 M1+E2
36,23
77,2 M1
589
746 M1(+E2)
880 E2
864 M1
455
772,7 M1
685,5 E1
479,56 E2
7,1 M1
113,7 M1
106,6 M1(+E2)
551,4 E1
625,5 E2
618,4 M1
511,9 E2
72,00 E1
206,2 M2
134,24 M1+E2
187 75 Re

Fig. 12

Le rapport théorique des probabilités de transition E_1 est égal à:

$$\frac{B_{E1}\left(K=\frac{5}{2}\rightarrow\frac{7}{2}+\frac{5}{2}\right)_{th}}{B_{E1}\left(K=\frac{5}{2}\rightarrow\frac{5}{2}+\frac{5}{2}\right)}=0{,}40$$

Le rapport expérimental correspondant est:

$$\frac{B_{E1}\,(551)_{exp}}{B_{E1}\,(686)}=\frac{I_\gamma\,(551)}{I_\gamma\,(686)}\left(\frac{686}{551}\right)^3=\frac{23}{123}\left(\frac{686}{551}\right)^3=0{,}45$$

Le niveau de 880 keV, qu'il a été précédemment proposé (46) d'interpréter comme excitation γ-vibrationnelle du niveau fondamental $K=\Omega+2=\frac{9}{2}$, est très controversé. Nous allons discuter plus en détail ce problème.

Comme nous l'avons indiqué précédemment, nous avons observé une transition E_2 ($M_1<57\ \%$) de 880 keV et une transition M_1 ($E_2<57\ \%$) de 746 keV qui semblent provenir du niveau de 880 ± 20 keV vu par Nathan et Popov en excitation coulombienne (1).

Les spins possibles pour ce niveau sont 5/2 +, 7/2 + et 9/2 +.

Les rapports théoriques des probabilités de désexcitation M_1, vers les niveaux de 134 keV et 0, seraient, dans le cas d'un niveau 5/2 +,

$$\frac{B_{M1}\ (5/2+\rightarrow 7/2+5/2)}{B_{M1}\ (5/2+\rightarrow 5/2+5\ 2)}\,th.=0{,}4$$

On trouve également 0,4 dans l'hypothèse d'un niveau 7/2 +. Soient a_{M_1} (746) et a_{M_1} (880) les pourcentages de M_1 contenus dans les transitions de 746 et 880 keV, la valeur expérimentale du rapport est:

$$\frac{B_{M_1}\ (746)}{B_{M_1}\ (880)}\,(exp)=\frac{L_\gamma\,(746)}{L_\gamma\,(880)}\left(\frac{(880)}{(746)}\right)^3\frac{a_{M_1}(746)}{a_{M_1}(880)}=1{,}88\,\frac{a_{M_1}(746)}{a_{M_1}(880)}$$

(1) Récemment REIDY et WIEDENBECK (83) ont confirmé, par des mesures d'énergies très précises au cristal courbe, la place précédemment proposée (46) pour ces deux transitions sur le schéma de niveaux.

Sa limite inférieure est obtenue pour

$$a_{M_1}\ (746) = 43\ \%$$
$$a_{M_1}\ (880) = 57\ \%$$

Expérimentalement on obtient donc:

$$\frac{B_{M_1}\ (746)}{B_{M_1}\ (880)} \geqslant 1{,}42$$

Cette valeur semble exclure les spins 5/2 et 7/2 (*). Le spin 9/2 semble donc plus probable. La valeur $B(E_2) = 1{,}7\ B(E_2)$ s.p. donnée par NATHAN et POPOV (35) nous mène à identifier ce niveau au second niveau γ-vibrationnel bâti sur le niveau fondamental. L'excitation du niveau de 511 keV se fait avec une probabilité $B\ (E_2)$ du même ordre de grandeur que l'excitation du niveau de 880 keV.

Il y a cependant des difficultés à admettre cette interprétation:

— La transition de 746 keV ne doit pas avoir de composante M_1, or elle en a une, ce qui impliquerait une impureté dans le niveau. Or SOLOVIEV et VOGEL (79) prévoient un niveau vibrationnel très pur dans ce cas. On connaît cependant (Tb^{159}, Tm^{169}) de tels exemples d'impureté.

D. BES et CHO YI-CHUNG (80) introduisent dans leur hamiltonien un terme de Coriolis qui, pris au deuxième ordre, peut coupler des niveaux avec $|\Delta K| = 2$. Ce terme permet également une transition M_1.

— On n'observe pas de transition vers le niveau $\frac{9}{2}$ de 206 keV, transition qui serait l'analogue de la transition E_1 de 686 keV. Or, l'intensité de cette transition de 674 keV serait de l'ordre de 1/100 de celle de 686 keV, donc difficile à observer.

— Une autre difficulté réside dans la comparaison des valeurs de log *ft* obtenues par bilan γ sur les niveaux 511 et 880, dans l'hypothèse ou le niveau de 880 keV serait *le plus élevé en énergie* des niveaux du Re^{187} alimentés par β^-. En effet, ces deux niveaux supposés collectifs, seraient bâtis sur le même état intrinsèque. Les règles de sélection sur les nombres quantiques asymptotiques n'interviennent donc pas dans la comparaison. Or, on trouve pour le niveau de 511 keV,

(*) BISGÅRD et coll. (49) ont proposé récemment d'interpréter le niveau de 880 keV comme $\frac{5}{2}$ + [413]. Le $\frac{9}{2}$ vibrationnel se trouvant excité à 840 keV par diffusion inélastique. Cela contredirait le résultat de Nathan et Popov.

$\log ft = 8{,}9$, valeur plutôt forte pour $\Delta I = 1$, oui (une fois interdite) alors que pour le niveau de 880 keV, $\log ft = 8$. Or il est impossible que pour une transition $\Delta I = 3$, oui (3 fois interdite) on trouve une valeur si peu différente de la précédente. Une alimentation β directe serait donc exclue.

Mais un autre fait expérimental apporterait peut-être une solution. Cinq [1] groupes différents, LÉVY (10), SUNYAR (12), DUBEY et coll. (14), BASKOVA et coll. (21) et BISGÅRD et coll. (22), ont observé dans le spectre β continu une transition de 325 keV, avec une intensité de 10 % environ. On est donc fondé à avancer l'hypothèse d'un niveau vers 1 MeV de spin intermédiaire 5/2 ou 7/2 qui alimenterait le niveau de 880 keV.

Ceci pourrait éventuellement expliquer la présence de transitions de faible énergie que nous avons mentionnées dans notre étude du spectre de conversion interne, sans pouvoir les situer dans le schéma de niveau actuel.

Nous avons rassemblé (fig. 13) les données expérimentales actuelles sur les niveaux γ-vibrationnels des noyaux impairs déformés de la région des terres rares, en regard du niveau 2 + correspondant du coeur pair-pair. On constate que les niveaux de 511 et 880 keV se placent correctement dans la systématique.

Le récent calcul de SOLOVIEV et VOGEL (79) donne des énergies sous-évaluées pour le $\frac{1}{2}+$, 400 keV. Ces auteurs attribuent cette sous-estimation à des défauts dans le champ moyen utilisé. La probabilité $B\,(E2)$ est également trop faible et cela serait dû à une contribution importante de l'état de Nilsson $\frac{1}{2}+\,[400]$. Pour le niveau $\frac{9}{2}+$, ils prévoient une énergie de 1080 keV, nettement trop forte, selon notre résultat.

D. BES et CHO YI-CHUNG (80) ont donné récemment un calcul basé sur le modèle de Nilsson pour le mouvement des particules individuelles, la force d'appariement et la force quadrupolaire. Les énergies calculées pour les niveaux $\frac{1}{2}+$ et $\frac{9}{2}+$ sont respectivement 683 et 938 keV, assez éloignées de nos valeurs expérimentales.

---

[1] Récemment BEGJANOV et coll. (82) ont confirmé la présence de cette transition β —.

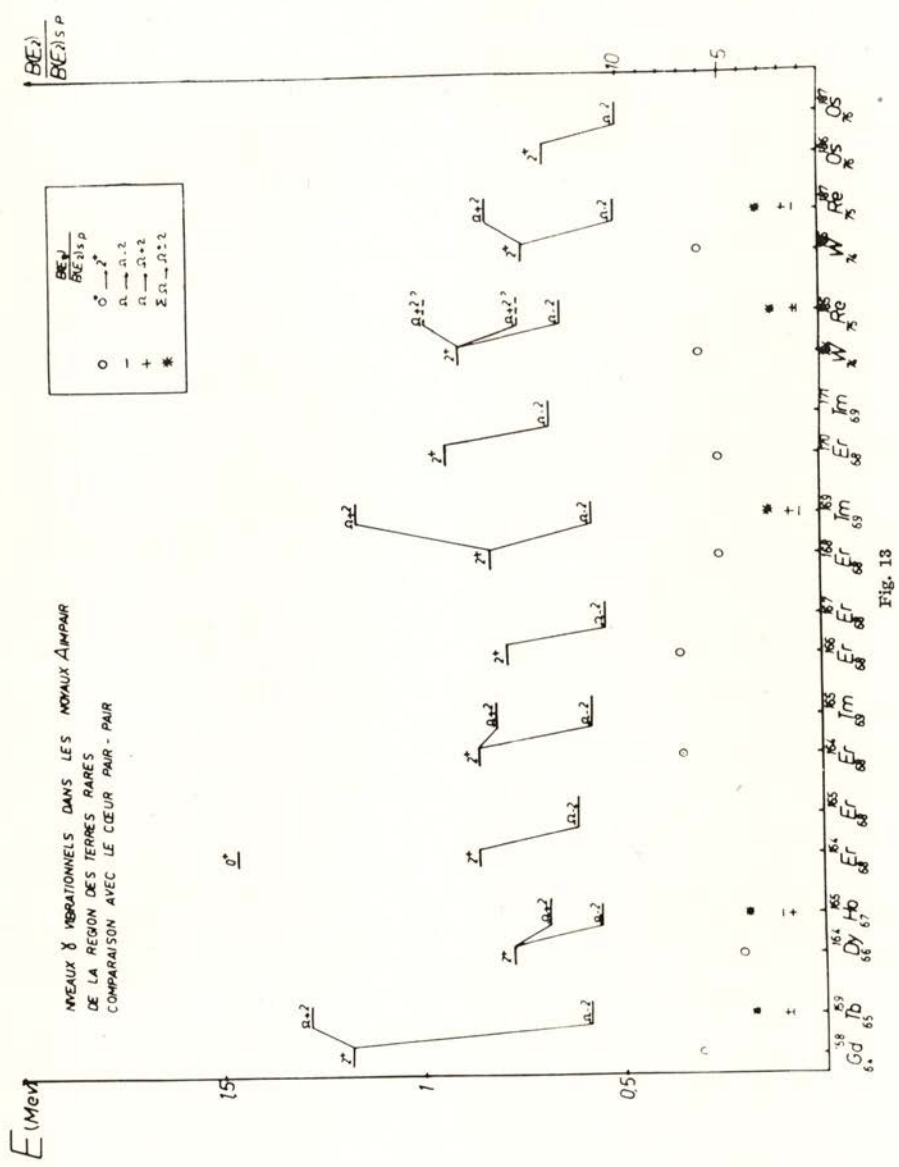

NIVEAUX γ VIBRATIONNELS DANS LES NOYAUX A IMPAIR
DE LA REGION DES TERRES RARES
COMPARAISON AVEC LE CŒUR PAIR - PAIR
E (MeV)
B(E2)/B(E2)sp
Gd Tb Dy Ho Er Tm Yb Lu W Re Os

Fig. 13

Il n'est pas possible actuellement de prévoir avec précision les énergies des niveaux vibrationnels des noyaux impairs alors que, sauf pour une petite région autour des Dysprosium où le schéma de pairing n'est pas très réaliste, ces énergies sont assez précisément calculables pour les noyaux pairs-pairs. En effet, les relations de dispersion qui donnent les énergies $W+$ et $W-$ des niveaux $K = \Omega + 2$ et $K = \Omega - 2$, respectivement, s'écrivent dans l'approximation des quasi-bosons.

$$1/\chi = \sum_{\nu} |q_{\nu}|^2 / (\varepsilon_{\nu} - W+) + \sum_{\omega} |q_{\omega}|^2 / (\varepsilon_{\omega} + W+)$$

$$1/\chi = \sum_{\omega} |q_{\omega}|^2 / (\varepsilon_{\omega} - W-) + \sum_{\nu} |q_{\nu}|^2 / (\varepsilon_{\nu} + W-)$$

où χ est l'intensité de la force quadrupole,

$$q_{\nu} = <\nu | q_2 | K> ; \quad q_{\omega} = <\omega | q_2 | K>$$

où $|K>$ est l'état intrinsèque de départ, les indices ν et ω représentant les paires de quasi-particules avec $\Delta\Omega = 2$ couplées pour former un phonon. Les énergies de particule indépendante ε_{ν} et ε_{ω} sont prises, par exemple, d'après Nilsson et sont connues à 200 ou 300 keV près. Pour pouvoir préciser les énergies des niveaux γ-vibrationnels, il est donc essentiel que l'on fasse des progrès dans la définition des énergies de particule dans les noyaux déformés.

Deux approches récentes vont dans cette direction. Une étude systématique des niveaux intrinsèques et vibrationnels dans la région des terres rares par REICH et BUNKER (84), de récentes tentatives par NILSSON (85) pour améliorer son modèle en introduisant dans son hamiltonien un terme $<l^2>$ moyenné sur une couche, une déformation en P_3, et en tenant compte de l'interaction coulombienne. On voit apparaître ainsi de nouveaux minima d'énergie potentielle en fonction de la déformation quadrupolaire, et la position des niveaux est modifiée.

CONCLUSION

Notre étude a permis de mettre en évidence plusieurs transitions nouvelles dont quatre (7,1, 77,2, 746, 880 keV) ont pu être placées sur le schéma de niveaux. Les multipolarités de certaines transitions déjà connues ont été précisées. Des calculs de rapports d'embranchement ont permis de lever les indéterminations sur les spins laissées

par GALLAGHER et coll. (18) dans le schéma qu'ils proposaient. La vie moyenne du niveau de 686 keV, très controversée, a été mesurée à nouveau (42) et le résultat recoupe notre mesure de multipolarité par rapports de conversion $L_I/L_{II}/L_{III}$ de la transition de 480 keV.

Nos résultats sont généralement en bon accord avec ceux de VERGNES (16) (17), de GALLAGHER et coll. (18), de BISGÅRD et coll. (22), (47), (49) et avec la récente étude de REIDY et WIEDENBECK (83).

Cependant des questions restent posées. La place des transitions de 7,1 et 77,2 keV est très probable à cause de la connaissance précise des énergies et des spins des niveaux qu'elles relient. Mais des études supplémentaires seraient nécessaires pour placer les autres transitions que nous avons trouvées en conversion interne. Certaines d'entre elles ont été également vues par BASHANDY et coll. (81) dans une étude récente en conversion externe. Mais le schéma de niveaux proposé par ces auteurs nous semble contestable.

D'autres auteurs (10) (14) (21) (22) (82) ont observé une transition β de 325 keV environ qui doit donc alimenter un niveau de 1 MeV. Or, on n'a pas encore identifié de transition γ correspondant à la désexcitation d'un tel niveau. L'interprétation du niveau de 880 keV, qui se heurte à des contradictions entre résultats expérimentaux, est, en particulier, liée à la solution de cette question.

Dans le domaine théorique, des problèmes restent également à résoudre. Par exemple, l'absence du niveau de Nilsson $7/2 + [404]$. Les calculs d'énergie des niveaux vibrationnels ne donnent encore qu'un ordre de grandeur, à cause de leur forte dépendance des énergies des états à une quasi-particule encore mal déterminées, et aussi à cause de «structures fines» dont la théorie actuelle des vibrations ne rend pas encore bien compte.

BIBLIOGRAPHIE

(1) MARSHALEK, PERSON, L. W., & SHELINE, R. — *Rev. Mod. Phys.*, **35**, 105, 1963.

(2) BOHR, A., & MOTTELSON, B. — *Mat. Fys. Dan. Vid. Selsk*, **27**, 16, 1953.

(3) NILSSON, S. G. — *Mat. Fys. Dan. Vid. Selsk*, **29**, 16, 1955.

(4) MOTTELSON, B. R., NILSSON, S. G. — *Mat. Fys. Skr. Dan. Vid. Selsk*, **1**, 8, 1959.

(5) ROSENBLUM, S., & GUILLOT, M. — *C. R. Acad. Sc. Paris*, **204**, 1727, 1937.

(6) ROSENBLUM, S., DIONÍSIO, J. Sant'Ana, & VALADARES, M. — *J. Phys. Rad.*, **17**, 112, 1956.

(7) MOREIRA, A. J. — Thèse, Porto, 1963.

(8) MILLER, L., & CURTISS, C. — *Phys. Rev.*, **70**, 983, 1935.

(9) HOLE, N., BENES, I., & HEDGRAN, A. — *Arkiv. Nat. Astronom. Fysik.*, A 35, n.º 35, 1948.

(10) LEVY, P. — Oak Ridge Nat. Lab. Rapport 312, 1949 (non publié).

(11) BEACH, PEACOCK & WILKINSON — *Phys. Rev.*, **75**, 211, 1949.

(12) SUNYAR, A. W. — *Phys. Rev.*, **90**, 387-A, 1953.

(13) CORK, J. M., BRICE, M. K., NESTER, W. H., LEBLANC, J. M., & MARTIN, D. W. — *Phys. Rev.*, **89**, 1291, 1953.

(14) DUBEY, V. S., MANDEVILLE, C. E., AMBUJ MUKERJI, & POTNIS, V. P. — *Phys. Rev.*, **106**, 785, 1957.

(15) KLIMENTOVSKAYA, M. K., & SHAVRIN, P. I. — *J. E. T. P.*, **36**, 967, 1959.

(16) VERGNES, M. — *J. Phys. Rad.*, **19**, 947, 1958.

(17) VERGNES, M. — Thèse. Masson, 1959.

(18) GALLAGHER, Jr., C. J., EDWARDS, W. F., & MANNING, G. — *Nucl. Phys.*, **19**, 18, 1960.

(19) DJELEPOV, B. S., RUMYANTSEV, V. L., KHOLNOV, Yu. V., & SHCHUKIN, G. E. — *Bull. Acad. Sc. URSS*, **24**, n.º 3, 299, 1960.

(20) ARNS, R. G., & WIEDENBECK, M. L. — *Nucl. Phys.*, **19**, 634, 1960.

(21) BASKOVA, K. A., VASSILIEV, S. S., KHAMO LEILA, M. A., & CHAVTALO, L. A. — *Izv. Akad. Nauk. SSSR* (Ser. fiz. **27**), 1258, 1963.

(22) BISGÅRD, K. MAACK, OLESEN, K., & OSTERGÅRD, P. — *Nucl. Phys.*, **33**, 126, 1961.

(23) HAN, K. S., PANCHOLI, S. C., & GRUNDITZ, Y. — *Arkiv. Fysik* **23**, n.º 23, 505, 1963.

(24) STEPIC, R., & MLADJENOVIĆ, M. — *Bul. Inst. Boris Kidrich*, vol. **13**, n.º 3, 281, 1962.

(25) KOIČKI, S., KOIČKI, A., & WOOD, C. T., — *Nucl. Phys.*, **49**, 161, 1963.

(26) MICHAELIS, W. — *Nucl. Phys.*, **48**, 422, 1963.

(27) GERMAGNOLI, E., MALVICINI, A., & ZAPPA, L. — *Nuovo Cimento*, **10**, 1388, 1953.

(28) BERNSTEIN, E. M., & LEWIS, H. W. — *Phys. Rev.*, **105**, 1 524, 1957.

(29) GOLDRING, G., & PAULISSEN, G. — *Phys. Rev.*, **103**, 1314, 1955.

(30) DAVIS, DIVATIA, LIND & MOFFEAT — *Phys. Rev.*, **103**, 1801, 1956.

(31) WOLICKI, E. A., FAGG, L. W., & GEER, E. H. — *Phys. Rev.*, **105**, 238, 1957.

(32) CHAPP, E. L., DUMOND, J. W. M., CORDON, F. J., JOPSON & MARK, H. — *Bul. Am. Soc. II*, **3**, n.º 1, 55, 1958.
(33) MC GOWAN, F. K., & STELSON, P. H. — *Phys. Rev.*, **109**, 911, 1958.
(34) De BOER, MARTIN & MARMIER — *Helv. Phys. Acta*, **32**, 377, 1959.
(35) NATHAN, O., & POPOV, V. I. — *Nucl. Phys.*, **21**, 631, 1960.
(36) MÖSSBAUER, R. L., & WIEDEMANN, N. H. — *Zeit. f. Phys.*, **159**, 33, 1960.
(37) MC GOWAN, F. K., De BENEDETTI, S., & FRANCIS, J. E. — *Phys. Rev.*, **75**, 1761, 1949.
(38) VARTAPETIAN, H. A., — *Nucl. Phys.*, **32**, 98, 1962.
(39) LANGHOFF, H. — *Phys. Rev.*, **135**, B_1, 1964.
(40) SHUBNY, YU K., KAIPOV, D. K., & BEGJANOV, R. B. — *J. E. T. P.* (S.S.S.R.), **47**, 16, 1964.
(41) HAUSER, U., KNISSEL, G., & MORITZ, J. — *Congrès Intern. de Physique Nucléaire Paris*, vol. **2**, p. 569, 1964.
(42) ABOU-LEILA, H., PERRIN, N., & WIDEMANN, F. — *Journ. Phys.*, **27**, 2, 1966.
(43) WIDEMANN, F. — *C. R. Acad. Sc. Paris*, **262**, 447, 1966.
(44) SEBILLE, C., & WIDEMANN, F. — *C. R. Acad. Sc. Paris*, **258**, 5636, 1964.
(45) SEBILLE, C., & WIDEMANN, F. — *C. R. Acad. Sc. Paris*, **259**, 2207, 1964.
(46) SEBILLE, C., WIDEMANN, F., HENCK, R., STAB, L., & SIFFERT, P. — *C. R. Acad. Sc.* Paris, **260**, 3926, 1965.
(47) MAACK BISGÅRD, K., NIELSEN, L. J., STABELL, E., & OSTERGÅRD, P. — *Nucl. Phys.*, **71**, 192, 1965.
(48) FUNKE, L., GRABER, H., KAUN; H., & WERNER, L. — *Nucl. Phys.*, **74**, 154, 1965.
(49) BISGÅRD, K. M., NIELSEN, L. J., STABELL, E., VEJE, E. — *Iz. Akad. Nauk.* SSSR (à paraître).
(50) MULLER, HOYT, KLEIN, & Du MOND — *Phys. Rev.*, **88**, 775, 1952.
(51) MARKLUND, I., LINDSTRÖM, B. — *Nucl. Phys.*, **40**, 329, 1963.
(52) SLIV, L. A., BAND, I. M. —*Tables des Coefficients de Conversion Interne*. Iz. Akad. Nauk. SSSR. Moscou, — Leningrad (1958).
(53) ROSE, M. E. — *Internal Conversion Coefficients*. North Holland publishing Co. — Amsterdam (1958).
(54) CHU, Y. Y., & PERLMAN, M. — *Phys. Rev.*, **135**, B 319, 1964.
(55) BERGSTRÖM, I., & HILL, R. D. — *Ark. Fys.*, **8**, 21, 1954.
(56) MLADJENOVIĆ, M., & SLÄTIS, H. — *Ark. Fys.*, **9**, 45, 1954.
(57) DIAMOND, R. M., ELBEK, B., & STEPHENS, F. S. — *Nucl. Phys.*, **43**, 560, 1963.
(58) NATHAN, O., & NILSSON, S. G. — *Alpha, Beta and Gamma Ray Spectroscopy* — SIEGBAHN, K. — *North-Holland* — Amsterdam (1965).
(59) DIONÍSIO, J. Sant'Ana — Thèse. Paris, 1963.
(60) SUJKOWSKI, I., & SLÄTIS, H. — *Ark. Phys.*, **8**, 101, 1958.
(61) NEWTON, J. O. — *Phys. Rev.*, **117**, 1529, 1960.
(62) JOHNSON, F. A., & FOSTER, J. S. — *Can. J. Phys.*, **31**, 469, 1953.
(63) O'CONNEL, R. F., & CARROL, C. O. — *Department of Phys. et Astr. Louisiana State Univ.* (Rapport interne).
(64) ASARO, F., STEPHENS, F. S., HOLLANDER, J. M., & PERLMAN, I. — *Phys. Rev.*, **117**, 492, 1960.

(65) HERRLANDER, C. J., & EWAN, G. T. — Conference on the role of atomic electrons in nuclear transformations. Varsovie, 1963.
(66) PERRIN, N. N., & VALENTIN, J. — *Phys. Letters*, **8**, 5, 338, 1964.
(67) CHURCH, E. L., & WENESER, J. — *Nucl. Phys.*, **28**, 602, 1961.
(68) NILSSON, S. G., & RASMUSSEN, J. O. — *Nucl. Phys.*, **5**, 617, 1958.
(69) BARNEOUD, D. — Thèse de 3ème cycle. Grenoble, 1965.
(70) WAPSTRA, A. H., NIJGH, G. J., & VAN LIESHOUT, R. — *Nuclear Spectroscopy Tables*. North-Holland Publ. Amsterdam, 1959.
(71) STROMINGER, D., HOLLANDER, J. M., & SEABORG, G. T. — *Rev. Mod. Phys.*, **30**, 585, 1958.
(72) STAB, L., HENCK, R., SIFFERT, P., & COCHE, A. — *Nucl. Instr. and Methods*, **35**, 113, 1965.
(73) SEBILLE, C. — Thèse de 3ème cycle, Orsay, 1966.
(74) ALAGA, G. — *Nucl. Phys.*, **4**, 625, 1957.
(75) BES, D. R., FEDERMAN, P., MAQUEDA, E., & ZUKER, A. — *Nucl. Phys.*, **65**, 1, 1965.
(76) SALLING, P. — Communication privée.
(77) GAUTIER, F. — À paraître.
(78) PERDRISAT, C. F. — Communication privée.
(79) SOLOVIEV, V., & VOGEL, P. — Rapport Doubna, E, 2561, 1966.
(80) BES, D., & CHO YI-CHUNG — Pré-tirage.
(81) BASHANDY, E., MIGAHED, M., EL SAYAD, G. M., & EL AASSAR, M. — *Nuovo Cimento*, **39**, 7681, 1965.
(82) BEGJANOV, R. B., & coll. — Programme du Congrès de Moscou (Janvier, 1966).
(83) REIDY & WIEDENBECK — *Nucl. Phys.*, **79**, 193, 1966.
(84) REICH, C. W., BUNKER, M. E. — Communication à la XVIème Conférence Nationale Annuelle sur la Spectroscopie Nucléaire et la Structure des Noyaux Atomiques, Moscou (U.R.S.S.), 1966.
(85) NILSSON, S. G. — Séminaire à l'école d'été d'Herceg-Novi. Yougoslavie, 1966.

Toute la correspondance concernant la rédaction de PORTUGALIAE PHYSICA doit être adressée à

PORTUGALIAE PHYSICA
Laboratório de Física da Faculdade de Ciências
LISBOA - 2 (Portugal)

Prix de l'abonnement:	250 escudos (US $8.50) par volume
Prix des volumes déjà parus:	300 escudos (US $10)
Prix du fascicule:	75 escudos (US $2.50)

Les membres de la "Sociedade Portuguesa de Química e Física" ont une réduction de 50 % sur les prix indiqués.

Les Universités, les Laboratoires de Physique, les Académies, les Sociétés Scientifiques et les Revues de Physique sont invités à recevoir cette revue en échange de leurs publications.

PORTUGALIAE PHYSICA donnera un compte-rendu detaillé de tous les ouvrages soumis à la rédaction en deux exemplaires.

All mail concerning PORTUGALIAE PHYSICA to be addressed to:

PORTUGALIAE PHYSICA
Laboratório de Física da Faculdade de Ciências
LISBOA - 2 (Portugal)

Subscription rates:	250 escudos (US $8.50) per volume
Price of past volumes:	300 escudos (US $10)
Price of copy:	75 escudos (US $2.50)

Members of the "Sociedade Portuguesa de Química e Física" may obtain *Portugaliae Physica* at a reduced price (50 %).

Universities, Physics Laboratories, Academies, Scientifica Societies and Physics Publications are invited to receive this review in exchange for their publications.

PORTUGALIAE PHYSICA will give a detailed report of any book if two copies have been submitted.

Bertrand (Irmãos), Lda. — Lisboa

PORTUGALIAE PHYSICA

VOLUME 4
FASCÍCULO 4
1 9 6 6

INSTITUTO DE ALTA CULTURA

CENTROS DE ESTUDOS DE FÍSICA DAS UNIVERSIDADES PORTUGUESAS

PORTUGALIAE PHYSICA

Fundadores: A. Cyrillo Soares, M. Telles Antunes, A. Marques da Silva, M. Valadares.

VOLUME 4 1965-66 FASCÍCULO 4

VOLUMES PUBLICADOS:

Vol. 1 — 1943-45 — 326 pp.
Vol. 2 — 1946-47 — 256 pp.
Vol. 3 — 1949-54 — 173 pp.

Redacção: Laboratório de Física da Faculdade de Ciências — Lisboa-2 (PORTUGAL)

Comissão de redacção:

J. Moreira de Araújo — Carlos Braga — Carlos Cacho — A. Pires de Carvalho — M. Abreu Faro — J. Gomes Ferreira — António Gião — F. Bragança Gil — Manuel Laranjeira. Amaro Monteiro — J. Pinto Peixoto — J. da Providência — Lídia Salgueiro — J. de Almeida Santos — José Sarmento — António da Silveira — J. Veiga Simão.

ÍNDICE

(Table des matières)

Peut-on connaître simultanément et avec précision la position et la quantité de mouvement d'une particule ?, par J. ANDRADE E SILVA 257

Spectre d'électrons de conversion interne associés à la transmutation du thorium-228 en radium-224, par MARIA OTILDE COSTA & MARIA REGINA SALES GRADE 267

Isotopic thermal diffusion in neon, by M. F. LARANJEIRA & M. ÁUREA CUNHA 281

Étude de la désintégration du ^{187}W (Errata), par F. WIDEMANN & C. SÉBILLE 301

Liste des publications reçues actuellement en échange avec PORTUGALIAE PHYSICA 303

CDU 53 (469) (05)

PORTUGALIAE PHYSICA

VOLUME 4
FASCÍCULO 4
1 9 6 6

PEUT-ON CONNAÎTRE SIMULTANÉMENT ET AVEC PRÉCISION LA POSITION ET LA QUANTITÉ DE MOUVEMENT D'UNE PARTICULE ? (*)

J. ANDRADE E SILVA

(Laboratoire de Théories Physiques. Institut Henri Poincaré — 11, rue Pierre Curie, Paris 5e)

RÉSUMÉ — On examine dans un cas simple sous quelles hypothèses sont énoncées les relations d'Heisenberg. On vérifie qu'à moins d'introduire le postulat du caractère instantané des transitions quantiques, on peut connaître à la fois et avec précision la position et la quantité de mouvement d'un corpuscule. Il s'ensuit notamment que la formulation causale de la Mécanique ondulatoire n'est pas nécessairement une théorie à paramètres cachés.

1. *INTRODUCTION*

Il est bien connu que les relations d'Heisenberg s'introduisent en Physique quantique au moins de deux façons différentes [1].

D'abord, on les déduit de l'analyse d'un certain nombre d'expériences idéales de mesure, dont la plus connue est probablement le «microscope d'Heisenberg»: compte tenu du double aspect corpusculaire et ondulatoire de la lumière et de la matière, et grâce aux relations d'Einstein-de Broglie

$$E = h\nu \qquad \lambda = h/p, \tag{1}$$

on vérifie que le produit des incertitudes sur la position et la quantité de mouvement d'une particule satisfait à tout instant aux relations

$$\Delta p_i \, \Delta q_i \geqslant h \tag{2}$$

(*) Reçu le 11 mai 1967.

Cette conclusion étant présentée comme la conséquence inéluctable du dualisme onde-corpuscule et des équations (1) qui en rendent compte, les inégalités (2) acquièrent une importance conceptuelle considérable et sont censées définir une sorte de limite à nos connaissances possibles en Microphysique.

Mais, d'autre part, la description du comportement de toute particule par un certain paquet d'ondes Ψ et les postulats statistiques qui s'y rattachent permettent de retrouver un résultat semblable en Mécanique ondulatoire, en conséquence des relations classiques de Fourier

$$\Delta\nu \, \Delta t \geqslant 1 \ . \tag{3}$$

Il est évident que cette seconde demonstration est bien plus éloignée des faits d'expérience que la première. À vrai dire, et malgré la fameuse tentative de VON NEUMANN [2], rien ne prouve que la description de la particule contenue dans la théorie de l'onde Ψ soit «complète»: si l'École de Copenhague a pu le soutenir, c'est finalement en s'appuyant sur le premier type de raisonnement. En effet, en supposant que le dualisme onde-corpuscule suffit à démontrer la validité de (2) à tout instant et en toutes circonstances, l'interprétation purement probabiliste va aussi loin que l'autorisent nos possibilités d'observation et peut donc, *en un certain sens*, être considérée comme complète [3]. De ce point de vue, il est certain qu'on doit extrapoler le contenu des relations d'Heisenberg, en les considérant non comme des simples relations d'*incertitude* mais, plus radicalement, comme des relations d'*indétermination*.

Or, depuis quelques années, M. L. DE BROGLIE et un certain nombre d'autres physiciens développent une formulation différente de la Mécanique ondulatoire, dont l'hypothèse physique essentielle est le rétablissement d'une localisation permanente des corpuscules [4]. Basée sur l'utilisation de solutions des équations d'évolution qui sont des «ondes à bosse», cette nouvelle conception du dualisme onde-corpuscule permet notamment de retrouver les prévisions habituelles des résultats des mesures quantiques [5]. Jusqu'à maintenant, cette Mécanique a été regardée comme une théorie à «paramètres cachés», parce qu'on a admis implicitement que la position et la quantité de mouvement attribuées constamment à tout corpuscule ne pourraient jamais être connues simultanément avec précision. Cela revenait à admettre que l'énoncé habituel des relations d'incertitude était effectivement la conséquence du dualisme onde-corpuscule et devait donc rester valable dans n'importe quelle formulation de la

Mécanique quantique. Il semblerait d'ailleurs qu'il doive en être ainsi pour que l'interprétation de l'École de Copenhague ne soit pas d'évidence incomplète.

Ce travail vise à démontrer que la situation est en fait plus complexe. L'analyse de la plus simple des expériences de mesure montre qu'à moins d'introduire une hypothèse *ad hoc* et sans la moindre base expérimentale possible, on peut déterminer à la fois et avec une précision incompatible avec (2) la position et la quantité de mouvement d'un corpuscule. Il s'ensuit que, dans son propre système, la formulation causale de la Mécanique ondulatoire n'est nullement une théorie à paramètres cachés. Cependant, cela ne prouve pas le caractère incomplet de l'interprétation de l'École de Copenhague, ni ne remet en cause une certaine façon d'énoncer les relations d'Heisenberg.

2. *UNE EXPÉRIENCE DE MESURE DE LA QUANTITÉ DE MOUVEMENT*

Soit un train d'ondes Ψ que, pour simplifier, nous supposons correspondre à une seule particule dont on se propose de mesurer la quantité de mouvement. La façon la plus simple de le faire est de placer sur le parcours de ce train d'ondes un dispositif analyseur (prisme, réseau, etc.) capable de le décomposer physiquement en ondes presque planes et monochromatiques. Ensuite, une fois que ces ondes sont disjointes dans l'espace, on détermine par des appareils adéquats sur laquelle de ses ondes se trouve la particule.

Si le détecteur correspondant à la composante presque monochromatique de longueur d'onde λ_i (à $\Delta\lambda_i$ près) est déclenché, on aura alors le droit d'attribuer à la particule une quantité de mouvement

$$p_i = \frac{\lambda_i}{h} \tag{4}$$

avec une incertitude de l'ordre de

$$\Delta p_i \simeq \frac{\Delta\lambda_i}{h\lambda_i^2} \tag{5}$$

On voit que ce procédé de mesure a une valeur pratique réelle et illustre la remarque de M. L. DE BROGLIE [6] que la détermination de n'importe quelle grandeur en Microphysique a *toujours* lieu par

l'intermédiaire de l'observation d'un phénomène macroscopique provoqué par une *localisation*.

Cette mesure de la quantité de mouvement par l'entremise de la localisation présente une propriété remarquable: ce n'est pas de la finesse de l'observation elle-même que dépend l'exactitude de la mesure de p. En effet, c'est l'identification de la composante de l'onde sur laquelle se trouve le corpuscule et non la localisation exacte de celui-ci qui permet de lui attribuer avec certitude une quantité de mouvement qui, le cas écheant, est très bien définie. D'après (5), c'est la puissance de résolution du dispositif analyseur qui détermine la précision de la mesure de p, et on peut même remarquer que la localisation pourra être d'autant plus grossière que l'analyseur est plus puissant et, donc, que la mesure de la quantité de mouvement sera plus exacte.

On nous dira que ce fait n'est pas fortuit, puisqu'il traduit justement la validité des relations d'Heisenberg. Nous y reviendrons bientôt, mais, pour l'instant, nous ne voulons retenir que la conclusion que l'exactitude de la mesure de p ne dépend pas de la précision de l'observation elle-même, mais d'un processus physique qui a lieu nécessairement *avant* la mesure.

Supposons alors qu'on utilise un analyseur très puissant, de façon que la décomposition qu'il provoque soit très fine; en principe, une telle «préparation» du train d'ondes n'introduit aucune limite à la précision de la détermination ultérieure de p. Supposons en outre qu'on procède par la suite à une localisation très exacte du corpuscule [7], ce qui ne peut porter aucun préjudice à la finesse de la décomposition. On obtiendra ainsi, directement, une connaissance très précise de la position du corpuscule et, indirectement, puisqu'il a été localisé sur une onde presque monochromatique, une connaissance très précise de sa quantité de mouvement. *Ne doit-on pas en conclure qu'on peut connaître à la fois et avec précision la position et la quantité de mouvement d'un corpuscule*?

3. *ANALYSE DE L'EXPÉRIENCE EN THÉORIE CAUSALE*

Il ne fait pas de doute que la réponse à cette question donnée par la formulation causale de la Mécanique ondulatoire est affirmative. Qui plus est, nous allons montrer que les mesures effectuées couramment au laboratoire selon ce procédé peuvent apporter, de ce point de vue, une connaissance des valeurs de p et de q au même instant qui viole les relations d'Heisenbreg.

L'hypothèse fondamentale de la théorie causale consiste dans la description de la particule par une solution u des équations d'évolution, qui comprend une étroite région singulière u_0 où l'amplitude prend des valeurs beaucoup plus grandes que partout ailleurs; la densité d'énergie étant proportionnelle au carré de l'amplitude, la presque totalité de cette énergie sera donc concentrée dans la région fortement localisée u_0, qu'on peut appeler le «corpuscule». Le corpuscule ainsi défini se déplace sur l'onde régulière v qui l'entoure et, sous des hypothèses précises (principe de l'accord des phases), on démontre que son mouvement y est rigoureusement déterminé [8]; par exemple, pour une particule sans spin, la vitesse $\vec{v}$ d'un corpuscule qui se trouverait au point $\vec{R}$ d'une onde dont la phase est $\varphi\,(\vec{r}, t)$ s'exprime sous la forme

$$\vec{v} = -c^2 \left[\frac{\nabla\varphi}{\frac{\partial\varphi}{\partial t}} \right]_{\vec{r} = \vec{R}} \tag{6}$$

Mais, comme on suppose par ailleurs que toute particule est constamment soumise à de très nombreuses et faibles fluctuations de nature aléatoire, on ne peut pas prévoir le point de l'onde où se trouve le corpuscule, et on se borne à lui attribuer une probabilité de présence qui a la valeur habituelle $\Psi\Psi^* d\tau$. Il en résulte, d'après (6) une méconnaissance correspondante de la vitesse, et il est aisé de voir que les incertitudes sur les valeurs de la position et de la quantité de mouvement satisfont en général aux inégalités d'Heisenberg.

Ces principes étant rappelés, examinons ce qui se passe dans le cas de l'expérience de mesure envisagée plus haut. Avant la traversée de l'analyseur, le produit des incertitudes Δp et Δq peut effectivement être de l'ordre de h, mais cette valeur ne fait qu'augmenter avec la décomposition, car celle-ci n'apporte aucun renseignement sur p pendant que l'incertitude sur q s'aggrave nécessairement. L'analyse spectrale ainsi réalisée place le corpuscule sur une onde presque monochromatique, mais, tant qu'on ne sait pas sur quelle onde il se trouve, l'incertitude Δp ne diminue pas pour autant, tandis que l'incertitude Δq devient de l'ordre de grandeur des dimensions de l'ensemble de toutes ces ondes presque planes Bref, en elle-même, l'action de l'analyseur ne fait que diminuer la néguentropie du système.

Par la suite, quand on localisera le corpuscule, la situation sera complètement renversée. Vu que la localisation ne doit avoir

lieu qu'une fois que les ondes presque monochromatiques ne se superposent plus, elle permettra d'identifier la composante sur laquelle se déplaçait le corpuscule et, dès lors, l'incertitude Δp sur ce qui était sa quantité de mouvement ne dépend plus que de la largeur spectrale $\Delta\lambda_i$ de cette onde. Mais, en même temps, la localisation détermine la position du corpuscule avec une incertitude Δq qui est, en général, bien inférieure à la dimension correspondante Δl_i de cette onde. Compte tenu des relations de Fourier et des équations d'Einstein-de Broglie, on a dans le cas le plus favorable

$$\Delta p \ \Delta l_i \sim h \tag{7}$$

mais, puisqu'il se peut que $\Delta q \ll \Delta l_i$, il vient

$$\Delta q \ \Delta p < h \tag{8}$$

en contradiction avec les relations d'Heisenberg.

On voit que ce résultat n'exige même pas un analyseur très puissant ni une détermination particulièrement précise de la position. Ainsi, si l'état initial de la particule a été soigneusement défini (ce que veut dire qu'on a $\Delta p.\Delta q \sim h$), toute localisation du corpuscule sur l'une des ondes produites par n'importe quel analyseur définira des incertitudes satisfaisant à la relation (8), pourvu que la localisation soit simplement plus précise que l'extension de cette onde.

Enfin, remarquons qu'un tel résultat ne signifie nullement que la formulation causale de la Mécanique ondulatoire sache *prévoir* les valeurs ultérieures de p et de q avec une précision incompatible avec les relations d'Heisenberg. L'hypothèse des fluctuations aléatoires conduit à dire, au contraire, que l'incertitude sur la position du corpuscule redeviendra très rapidement de l'ordre de grandeur des dimensions de l'onde v correspondante, ce qui suffit pour que les relations d'Heisenberg redeviennent valables.

4. *ANALYSE DE L'EXPÉRIENCE EN THÉORIE PUREMENT PROBABILISTE*

L'interprétation purement probabiliste de Bohr, Heisenberg et Von Neumann se doit naturellement de refuser ces conclusions, opposées à ses propres conceptions de base. Nous allons donc rappeler brièvement la description qu'elle propose pour ce processus de mesure,

afin de montrer sous quelles hypothèses elle peut enlever toute signification à l'inégalité (8).

D'après l'École de Copenhague, l'état initial de la particule qui correspond à la fonction Ψ est censé exprimer des indéterminations sur l'état de la particule, celle-ci ne possédant donc ni position, ni quantité de mouvement bien déterminées, mais tout un ensemble de valeurs de p et de q «potentiellement présentes». L'action de l'analyseur transforme ce «cas pur» initial en un «mélange»: la particule sera alors décrite par une onde presque monochromatique, mais, puisqu'on ne sait pas l'identifier, une incertitude plus large se superpose à la nouvelle indétermination fondamentale. Plus précisément, l'indétermination Δp est définie par l'intervalle spectral $\Delta\lambda_i$ de l'une de ces ondes et l'indétermination $\Delta q'$ par la dimension Δl_i de la même onde, mais les incertitudes de notre connaissance s'expriment respectivement en fonction de l'ensemble de toutes les largeurs spectrales $\Delta\lambda_i$ et par la somme de tous les intervalles Δl_i. La localisation ultérieure faisant disparaître cette incertitude, la description de ce qu'*était* la particule redevient un cas pur; on peut alors lui attribuer *a posteriori* une indétermination Δp maintenant connue avec certitude (c'est pourquoi l'expérience constitue un procédé de mesure de p) et l'indétermination $\Delta q' \sim \Delta l_i$ correspondante, avec $\Delta p . \Delta q' \sim h$.

On sait néanmoins que la position peut toujours être mesurée avec une précision Δq bien supérieure à Δl_i, ce qui nous conduisait plus haut à la relation (8). Pourquoi n'en serait-il de même ici? La réponse est qu'on *postule* maintenant que ces valeurs ne correspondent pas à un même état dynamique de la particule, parce qu'à l'instant même où l'indétermination sur la position cesse d'être $\Delta q'$ pour devenir Δq, l'indétermination sur la quantité de mouvement cesse d'être Δp pour prendre la nouvelle valeur $\Delta p'$ (avec $\Delta q . \Delta p' \geqslant h$). Nous avons ici un exemple typique de la célèbre «réduction du paquet de probabilités par la mesure» et on voit bien que c'est ce changement de forme de la fonction d'onde en un temps rigoureusement nul, cette coupure radicale dans l'évolution du Ψ, qui permet à la théorie purement probabiliste d'écarter la relation (8).

Pour regarder la question de plus près, supposons que le dispositif de mesure de la position soit une simple émulsion photographique. L'observation d'une petite tache noire sur cette émulsion signifie alors qu'une réaction chimique y a été déclenchée par l'ionisation d'une molécule, attestant ainsi l'arrivée à cet endroit (déterminé avec une précision Δq de l'ordre des dimensions de la tache) d'un quantum d'énergie.

La théorie causale interprète aisément le phénomène en admettant que la trajectoire du corpuscule (supposé constamment localisé) s'est trouvée passer par ce point; puisqu'elle n'a pu y parvenir que sur une onde presque monochromatique bien déterminée, on en déduit que le corpuscule est arrivé en se point (défini avec l'incertitude Δq) avec une quantité de mouvement p, définie à Δp près. Une fois la molécule ionisée, on connaît donc la position et la quantité de mouvement qu'avait le corpuscule à l'instant où le processus d'ionisation se déclenche, et cette connaissance peut être trop précise pour satisfaire aux relations d'Heisenberg.

En théorie purement probabiliste, la particule n'a pas de localisation permanente, et Δp et Δq ne sont que des indéterminations. Mais il est certain que Δp est l'indétermination de la quantité de mouvement juste avant l'ionisation, comme Δq est l'indétermination de la position à l'instant où cette ionisation a eu lieu. La réduction du paquet de probabilités qui est censée accompagner le passage d'un état à l'autre correspond alors au processus physique de l'ionisation et, puisque ce passage doit s'effectuer en un temps nul, l'ionisation elle-même doit être supposée avoir lieu en un temps nul. Plus généralement, le changement instantané et discontinu de la fonction d'état qui permet à l'École de Copenhague de rejeter la relation (8) suppose nécessairement le caractère instantané des transitions quantiques.

Il ne fait pas de doute que cette propriété soit parfaitement cohérente avec l'ensemble des résultats de la théorie purement probabiliste, mais il n'en reste pas moins qu'il s'agit d'une hypothèse n'ayant pas la moindre base expérimentale. Toute mesure réelle étant nécessairement affectée d'une erreur, on peut même dire que l'interprétation habituelle de la Mécanique ondulatoire se fonde sur une hypothèse qui se place d'elle-même en dehors de toute possibilité de vérification.

5. *CONCLUSIONS*

Les relations d'Heisenberg sont couramment énoncées comme exprimant soit l'impossibilité de *prévoir*, soit l'impossibilité de *connaître* l'état d'un système avec une précision telle que le produit $\Delta p . \Delta q$ soit inférieur à h. Il s'agit de deux formulations différentes, la première étant en fait plus exigeante que la seconde.

L'interprétation purement probabiliste développée par BOHR et HEISENBERG exige la validité du premier de ces énoncés comme celle

du second, car, pour que Δp et Δq puissent être regardés comme exprimant des indéterminations, il faut qu'on ne puisse jamais attribuer à la particule, de quelque façon que ce soit, à la fois une position et une quantité de mouvement bien définies. Nous avons vu que cette conclusion n'est pas la conséquence du dualisme onde-corpuscule, comme on le dit souvent, mais qu'elle suppose l'introduction d'une hypothèse *a priori*, le caractère instantané des transitions quantiques. Que cette hypothèse se retrouve par la suite dans le développement de cette théorie montre simplement que celle-ci n'est pas contradictoire, mais ne démontre nullement le caractère nécessaire d'une telle hypothèse.

Par contre, dans l'interprétation causale soutenue par DE BROGLIE, le corpuscule est un être constamment localisé et l'existence de processus physiques ayant lieu dans un temps rigoureusement nul est exclue. Il s'ensuit la possibilité de *connaître* dans certaines conditions les valeurs de p et de q avec une précision plus grande que celle que les relations d'Heisenberg autoriseraient, et il ne reste qu'un principe d'incertitude valable pour ce qui est des *prévisions* de l'état ultérieur du système.

Que l'interprétation causale de la Mécanique ondulatoire soit une théorie à paramètres cachés n'est donc pas la conséquence inéluctable du dualisme onde-corpuscule: elle ne l'est à vrai dire que si l'on admet préalablement une autre interprétation du formalisme quantique. De son propre point de vue, l'interprétation causale n'est pas une théorie à paramètres cachés et, d'une façon en quelque sorte symétrique, elle conduit à regarder l'interprétation de BOHR et HEISENBERG comme une théorie incomplète.

Remarquons, pour terminer, que l'analyse ici présentée à propos de la mesure de la quantité de mouvement pourrait être reprise dans un contexte bien plus large. Pour ne donner qu'un exemple, un dispositif du type de celui utilisé par STERN et GERLACH permettrait de retrouver des conclusions analogues pour la détermination précise et simultanée de la position et du moment cinétique.

Je voudrais remercier M. L. DE BROGLIE pour les conseils et les encouragements qu'il accorde à mes recherches sur la théorie de la mesure. Je remercie aussi MM. G. LOCHAK et M. THIOUNN pour nos fructueux échanges de vues.

BIBLIOGRAPHIE

[1] HEISENBERG, W., — *Les principes physiques de la théorie des quanta*, Paris, Gauthier-Villars, 1923.

[2] NEUMANN, J. VON — *Les fondements mathématiques de la Mécanique quantique*, Paris, P. U. F., 1947; BROGLIE, L. DE — *La théorie de la mesure en Mécanique ondulatoire*, Paris, Gauthier-Villars, 1957; MUGUR-SCHACHTER, M. — *Etude du caractère complet de la théorie quantique, ibid.*, 1964; JAUCH, J. M., et PIRON, C. — *Helv. Phys. Acta*, **36**: 827, 1963; BELL, J. S. — *Rev. Mod. Phys.*, **38**: 447, 1966; BOHM, D., et BUB, J. — *Rev. Mod. Phys.*, **38**: 470, 1966.

[3] Sur ce problème voir notamment, EINSTEIN, A., PODOLSKY, B., et ROSEN, N. — *Phys. Rev.*, **47**: 777, 1935; BOHR, N. — *Phys. Rev.*, **48**: 696, 1935; FURRY, W. H. — *Phys. Rev.*, **49**: 476, 1936, discussion reprise *in Albert Einstein philosopherrand scientist*, P. A. Schlip ed., Evanston, Ill., 1949.

[4] BROGLIE, L. DE — *Une tentative d'interprétation causale et non-linéaire de la Mécanique ondulatoire*, Paris, Gauthier-Villars, 1956.

[5] BROGLIE, L. DE, et ANDRADE E SILVA, J. — *C. R. Ac. Sc.*, **263**: 645, 1966; ANDRADE E SILVA, J. — *C. R. Ac. Sc.*, **264**: 909 et 1045, 1967.

[6] BROGLIE, L. DE — *La théorie de la mesure en Mécanique ondulatoire*, Paris, Gauthier-Villars, 1957, pp. 81-83.

[7] D'après LANDAU, L., et PEIERLS, P. — *Z. Physik*, **69**: 56, 1931, il y aurait une limitation intrinsèque à la précision de la mesure de q, s'exprimant sous la forme $\Delta q \geqslant h/\mathrm{mc}$. Quoi qu'il en soit, il deviendra évident par la suite que nous n'avons pas à en tenir compte ici.

[8] Voir la reférence [4] et FER, F. — *Les solutions singulières des équations d'onde et la théorie de la double solution* (thèse), Paris, 1956; THIOUNN, M. — *Cahier de Physique* n.º 174, 1965; *Portgal. Phys.*, **4**: 185, 1966.

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 $^{228}Th \xrightarrow{\alpha} {}^{224}Ra$ 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:

$$\alpha_L = 14 \pm 3\ ;\ \alpha_{L_{II}} = 7{,}6\ ;\ \alpha_{L_{III}} = 6{,}3\ ;\ \alpha_{M+N+\ldots} = 3{,}8 \pm 0{,}9\ ;\ \alpha_t = 18 \pm 4$$

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

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

$$\alpha_L = 14 \pm 3\ ;\ \alpha_{L_{II}} = 7{,}6\ ;\ \alpha_{L_{III}} = 6{,}3\ ;\ \alpha_{M+N+\ldots} = 3{,}8 \pm 0{,}9\ ;\ \alpha_t = 18 \pm 4$$

1. *INTRODUCTION*

La désintégration $^{228}_{90}Th \longrightarrow {}^{224}_{88}Ra$ 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 α_0 et α_1 sont respectivement 71 % et 28 %.

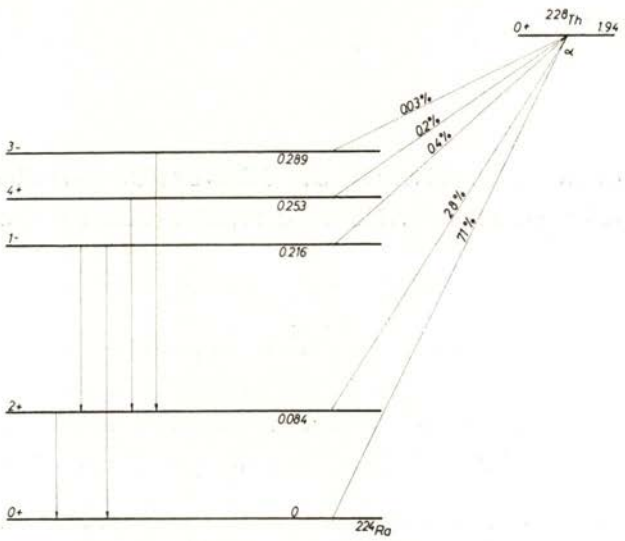


Fig. 1

Le rayonnement γ de 84,5 keV peut se convertir internement dans les couches L, M,... du ^{224}Ra.

C. VICTOR *et al.* (3), en utilisant la méthode des coincidences entre les particules α 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 γ 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 α_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 L. 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 $^{228}_{90}Th \longrightarrow ^{224}_{88}Ra$, 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}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}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, $\underline{SCH = CHCH = C}COCH_2COCF_3$, 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 chloryhdrique 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 déposite près de la surface et mantenir 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 μ 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.

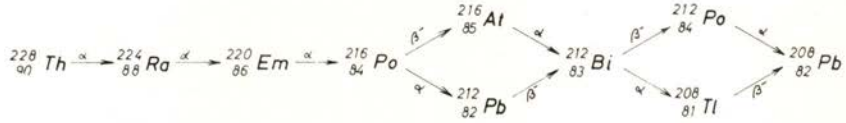
Ce temps d'exposition a été déterminé en applicant les lois de désintégration radioactive aux isotopes ^{228}Th et ^{224}Ra, de telle façon que le nombre d'étoiles existant dans la plaque ne rende pas difficile l'observation. Ensuite, les plaques ont été révélées d'après le procédé connu par «révélation 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 (~ 48 μ). Ceci nous a permis de confirmer le bon degré de purification de l'origine, et alors d'exclure la possibilité d'existence de particules α provenant du ^{224}Ra qui pourraient influencer la détermination des coefficients de conversion interne.

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



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

$$^{228}Th \longrightarrow {}^{224}Ra$$

$$^{224}Ra \longrightarrow {}^{220}Em$$

Comme les énergies des particules α du ^{228}Th et du ^{224}Ra sont très proches (parcours dans l'émulsion 24 μ et 26 μ 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 ~ 48 μ (qui correspondent à la désintégration $^{212}Po \longrightarrow {}^{208}Pb$).

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

3. *RÉSULTATS EXPÉRIMENTAUX*

Nous avons étudié le parcours de 5386 particules α, 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 α 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 α.

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.

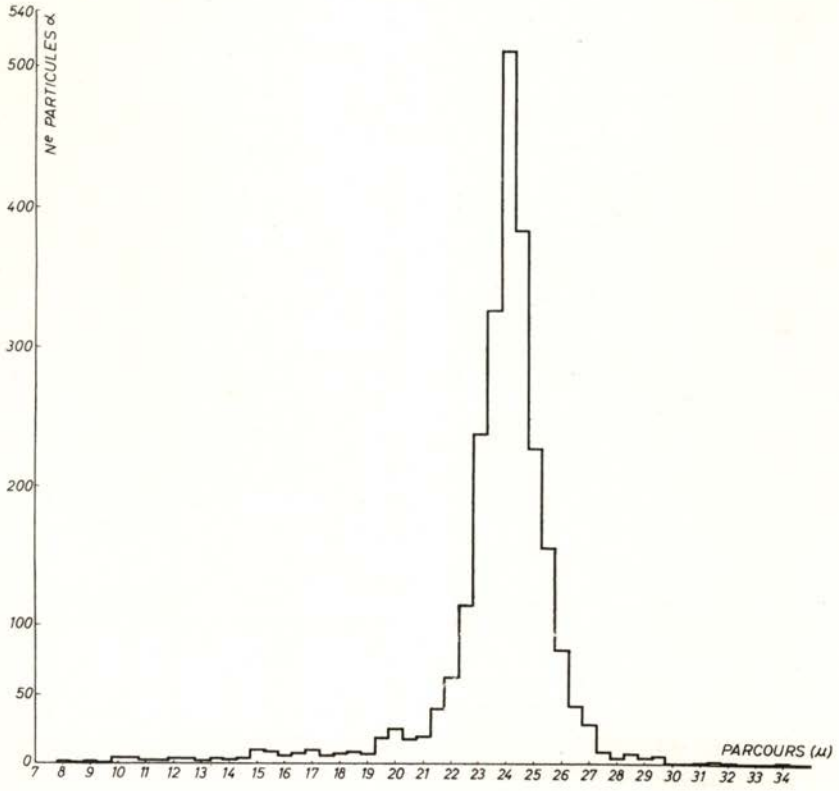


Fig. 2

Pour déterminer l'énergie des particules α, 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).

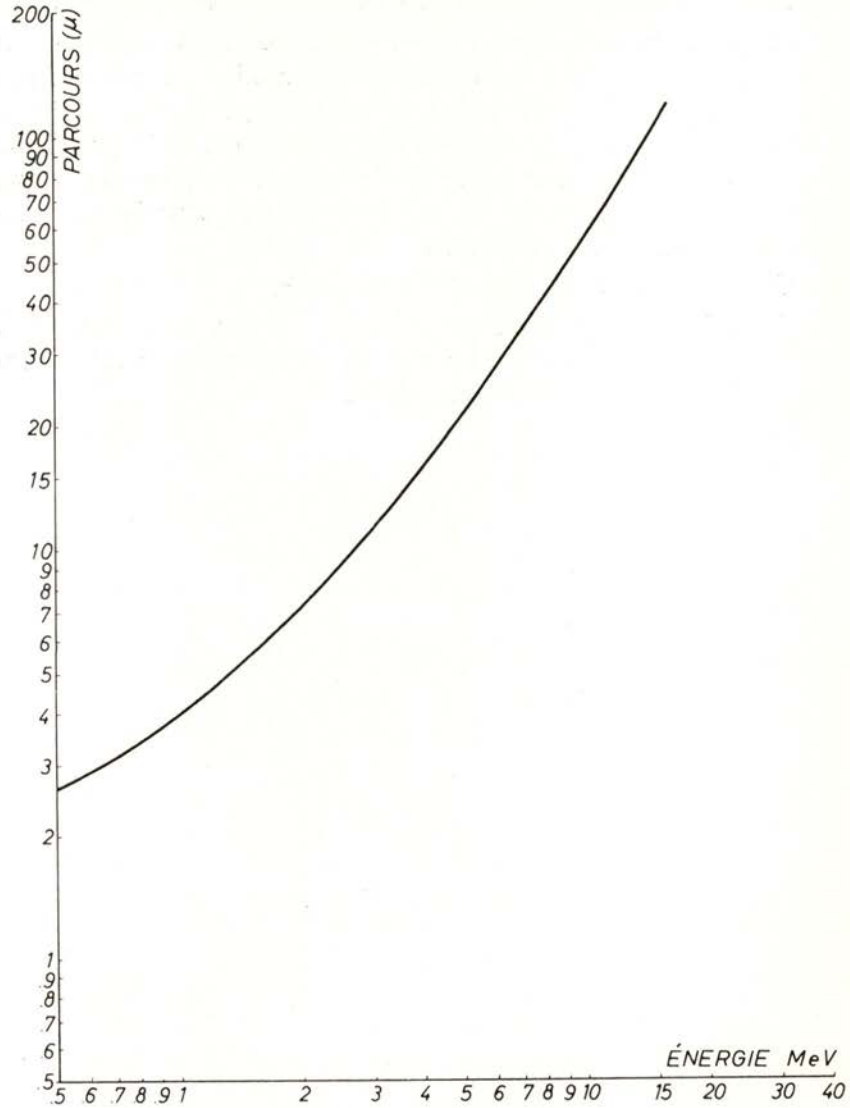


Fig. 3

Nous avons obtenu, comme valeur plus probable du parcours des particules α de ^{228}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 α 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.

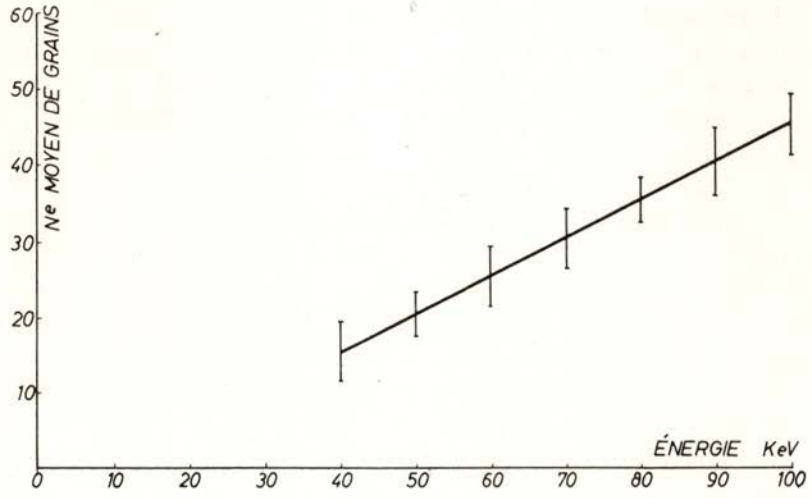


Fig. 4

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_5.

Comme il existe quelques particules α qui proviennent du ^{232}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}Th.

Afin d'obtenir le spectre d'électrons de conversion interne émis par le ^{232}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 α provenant du ^{232}Th, dont 43 sont associées à la trajectoire d'un électron.

Par conséquent, nous devons seulement considérer 5206 particules α du ^{228}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}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 γ 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 $M + N + \ldots$ par 100 particules α émis sont:

$$n_L = 20{,}8 \pm 0{,}4$$
$$n_{M+N+\ldots} = 5{,}7 \pm 0{,}3$$

et le nombre total d'électrons de conversion interne est

$$n_t = 26{,}5 \pm 0{,}4 \ .$$

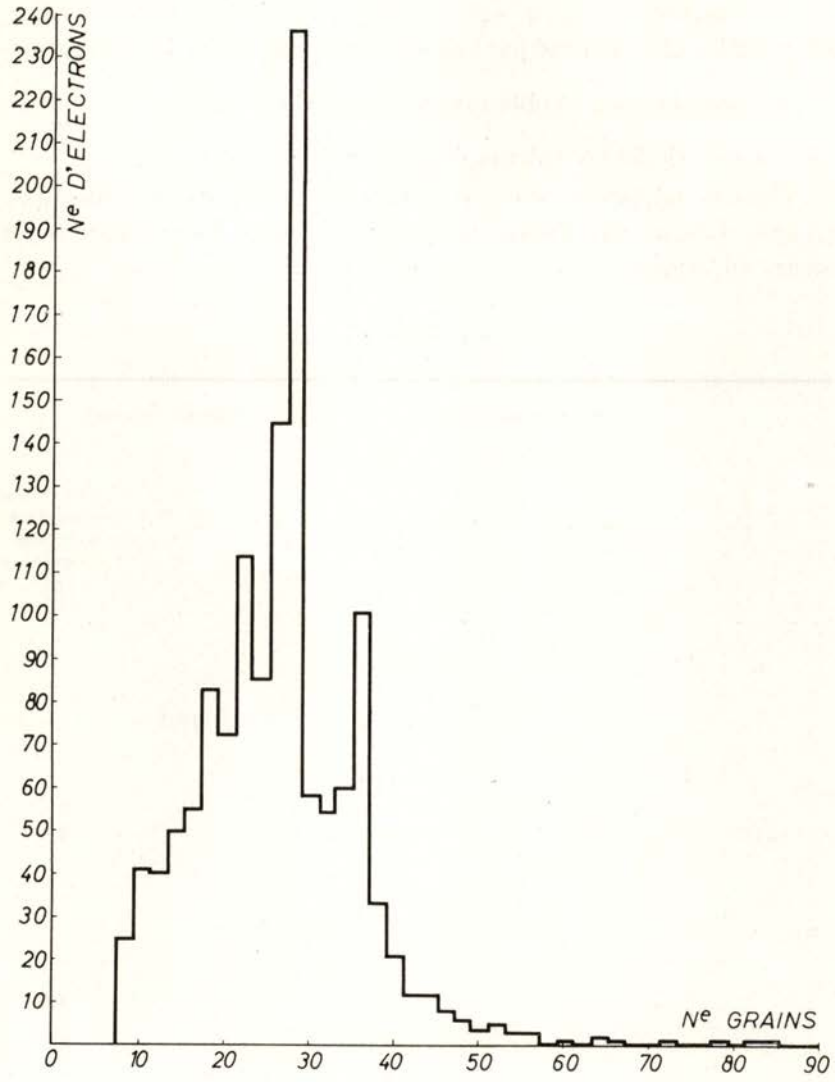


Fig. 5

Utilisant la valeur $28{,}0 \pm 0{,}4$ [1] comme intensité du groupe α_1, du ^{228}Th, nous avons déterminé les coefficients de conversion interne et, ensuite, les rapports $\frac{n_L}{n_M}$ et $\frac{n_L}{n_{M+N+\ldots}}$

[1] Erreur estimée par les auteurs.

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

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

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 *et al.* (3)	M. RIOU (7)	Présent travail	M. E. ROSE (8)	L. A. SLIV *et al.* (9)	Valeur de α_M corrigée d'après la méthode semi-empirique (20)
α_t	12	—	18 ± 4	—	—	—
α_L	—	10 ± 4	14 ± 3	15,8	16,1	—
$\alpha_{M+N+...}$	—	—	$3{,}8 \pm 0{,}9$	—	—	—
α_M	—	—	2,9	7,5	—	3,8
$\frac{\alpha_L}{\alpha_{M+N+...}}$	—	—	$3{,}7 \pm 1{,}1$	—	—	—
$\frac{\alpha_L}{\alpha_M}$	—	—	4,8	2,1	—	4,2
$\alpha_{L_{II}}$	—	—	7,6	8,4	—	—
$\alpha_{L_{III}}$	—	—	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 sugéré une méthode semi-empirique pour la correction des valeurs des coefficients de conversion interne dans la couche M; dans la dernière colonne du tableau I nous présentons la valeur de α_M corrigée selon cette méthode.

Nous avons déterminé l'énergie du rayonnement γ 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 α, 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}Ra (23).

En ce qui concerne les 4 restantes trajectoires de particules α 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 BOUISSIERES, G. — *J. Phys. Rad.*, **13:** 565, 1952.

(4) BATTEY, MADANSKY et RASETTI — *Phys. Rev.*, **89:** 182, 1953

(5) ROSENBLUM, S., VALADARES M., et GUILOT, 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 Gama 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.

ISOTOPIC THERMAL DIFFUSION IN NEON

M. F. LARANJEIRA and M. AUREA CUNHA

(Laboratório Calouste Gulbenkian de Espectrometria de Massa
e Física Molecular. Comissão de Estudos de Energia Nuclear (I. A. C.)
Instituto Superior Técnico – Lisboa)

SUMMARY — Isotopic thermal diffusion in neon was observed in the temperature range from 335.6 up to 507.4 °K, which provides a sensitive way to determine the parameter α for the exponential-six model.

According to the values obtained and the viscosity data available, a new set of parameters, $\varepsilon/k = 33.4$ °K, $r_m = 3.144$ Å and $\alpha = 15.5$, is proposed for neon.

1 — *INTRODUCTION*

Considerable efforts have been made in recent years to study intermolecular forces by means of transport phenomena, namely viscosity, thermal conductivity, diffusion and thermal diffusion.

From those properties, thermal diffusion has been considered as the most sensitive one to the nature of intermolecular potentials. However, some restrictions have to be pointed out to that common statement if one has to deal with a somewhat sophisticated potential model. Indeed, let us consider the case of the exponential-six potential which is now believed to fit reasonably well the experimental data of transport phenomena:

$$\phi(r) = \frac{\varepsilon}{1 - 6/\alpha} \left\{(6/\alpha) \exp\left[\alpha(1 - r/r_m)\right] - (r_m/r)^6\right\}$$

$$\text{for } r > r_{max}$$

$$\text{and } \phi(r) = \infty \text{ for } r \leqslant r_{max}$$

where

$\phi(r)$ — potential at a distance r from the center of the molecule;

r_{max} — value of r for which $\phi(r)$ has a «spurious» maximum;

ε — depth of the potential well;

r_m — value of r for which $\phi(r)$ is minimum;

α — additional parameter depending on the slope of the repulsive part of the potential.

The exp.-six potential has therefore three parameters, ε/k (k — Boltzmann's constant), r_m, and α, which have to be chosen according to experimental data. Isotopic thermal diffusion depends only on ε/k and α; viscosity, thermal conductivity and self-diffusion depend, furthermore, on parameter r_m.

Let us consider the kind of information which isotopic thermal diffusion may provide about ε/k and α. In fig. 1 we present the family of curves for the reduced isotopic thermal diffusion factor, according

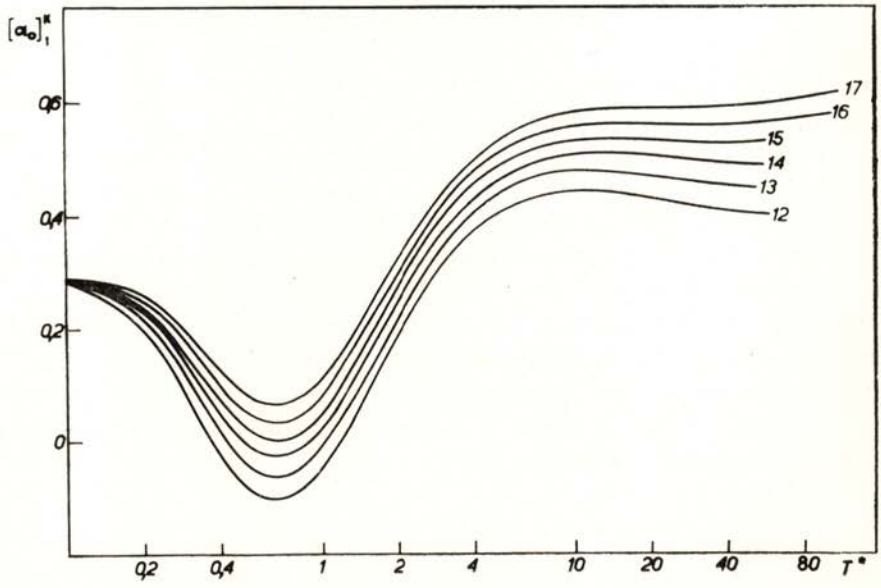


Fig. 1 — *Kihara's first approximation for the reduced isotopic thermal diffusion factor,* $[\alpha_0]_1^K$, *for the exp.-6 model with parameter* α *equals to 12, 13, 14, 15, 16 and 17.*

to the first Kihara's approximation, $[\alpha_0]_1^K$, against the reduced absolute temperature $T^* = T/(\varepsilon/k)$, for values of the potential parameter α equal to 12, 13, 14, 15, 16 and 17.

In those curves we may consider three temperature ranges:

1 — T^* below 1. This range is experimentally difficult since ε/k is of the order of the critical temperature for most gases and some spurious effects may interfere with thermal diffusion.

2 — T^* between 1 and 4. As fig. 1 shows, the different curves of $[\alpha_0]_1^K$ are practically parallel to each other. Since parameters ε/k and α are obtained by shifting experimental data of the reduced isotopic thermal diffusion factor over the theoretical family of curves, those parameters remain undetermined, bearing in mind the magnitude usually repported for experimental errors.

3 — T^* higher than 4. In this case, if experimental values are available over a sufficient temperature range, say in between 4 and 10, hence both ε/k and α may be determined. The information may be limited to α if only high temperatures have been observed.

From the above discussion it follows that the sensitivity of isotopic thermal diffusion to calculate potential parameters for the exp-six model depends markedly on the reduced temperature range covered and, as a consequence, of the gas considered.

In the case of the rare gases, if we assume that the apparatus may cover the mean absolute temperature range, $\overline{T}$, between 50 and 1200 °K, and, furthermore, the minimum reduced temperature which may be achieved is of the order of $T^* = 1$, hence the range experimentally accessible for each gas is given in table I.

TABLE I

Workable range of T^* for thermal diffusion in rare gases.

gas	ε/k (°K)	Reference	Reduced temp. range T^*
He	9.16	M 1	5.5 — 131
Ne	33.4	this work	1.4 — 10
Ar	123.2	M 2	1 — 10
Kr	158.3	M 2	1 — 8
Xe	231.2	M 2	1 — 5

Therefore, experimental values of the isotopic thermal diffusion factor may provide, at most, the following information about the parameters ε/k and α of the exp-six potential:

Helium: practically only α may be determined;

Neon : α and ε/k may be determined if a sufficiently temperature range is covered;

Argon : only rough values of α and ε/k;

Kripton and Xenon: determination of α and ε/k uncertain. At most, correlated intervals for those parameters may be chosen.

It follows, therefore, that in case of argon, kripton and xenon the experimental data of thermal diffusion may only be used to testify the agreement of the potential model, by using the values of α and ε/k determined by other transport phenomena.

Neon is obviously an interesting case, since it is the only rare gas which may determine both potential parameters by thermal diffusion with some confidence. Unfortunately, experimental values differ markedly from author to author, as fig. 2 shows.

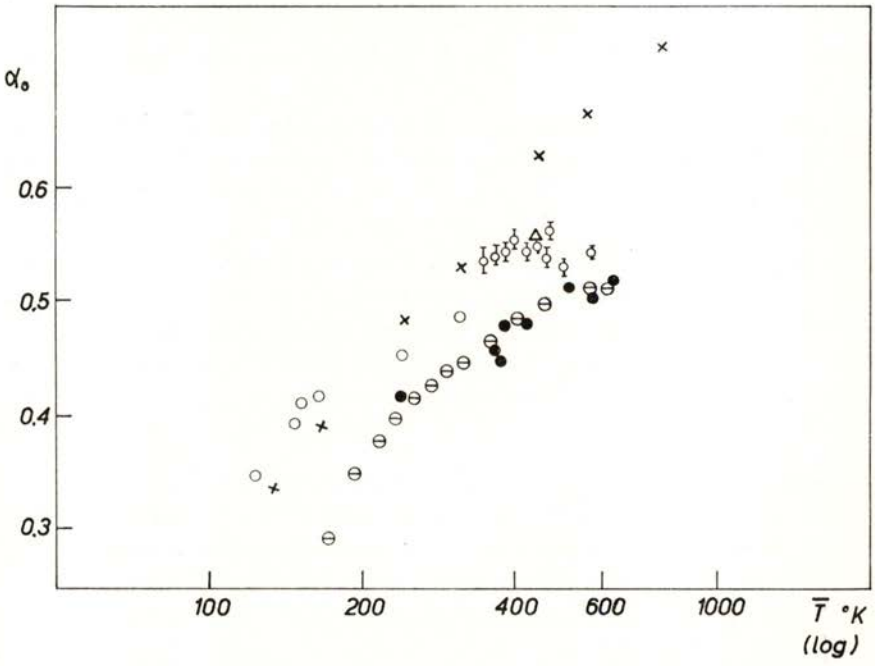


Fig. 2 — *Experimental reduced isotopic thermal diffusion factor, α_o, for ^{20}Ne — ^{22}Ne*

Φ *Present work*; △ LARANJEIRA & KISTEMAKER (L-1); × STIER (S-1;) ⊖ SAXENA *et all.* (S-2); ● MORAN & WATSON (H-3); ○ WATSON *et all.* (W-2);

From the above discussion it follows that further experiments of thermal diffusion with neon isotopes will be of importance.

We have in this Laboratory a running program working with three types of swing separators which cover the following temperature ranges in neon:

1 — Low temperature range, from $T^* \simeq 2$ up to 9.
2 — Intermediate range, from $T^* \simeq 9$ up to 18.
3 — High temperature range, for $T^* > 18$.

In this paper we present the values of the isotopic thermal diffusion factor corresponding to the intermediate range and a new set of potential parameters for the exp-six model is proposed, by using thermal diffusion and viscosity data.

Absolute temperature range observed extendes from 335.6 up to 507.4° K. This range has previously been observed by STIER (S-1) in 1942, MORAN & WATSON (M-3) in 1958 and SAXENA, KELLY & WATSON (S-2) in 1961 (see fig. 2).

STIER's results are believed to be extremely high and masked by eventual low pressure effects due to the technique envolved. On the other hand, WATSON (W-1) stated that the values of ref. M-3 were systematically low because «mass spectrometer analyses for neon were in error because of an appreciable superposition of a peak from double-ionized CO_2 with that of singly ionized ^{22}Ne.»

SAXENA and coworker's results follow the general trend of those of MORAN and WATSON, so that we may say that they are rather low as well.

2 — *THEORETICAL.*

According to CHAPMAN-ENSKOG's kinetic theory (C-1, H-1), the velocity of mutual diffusion in a binary mixture i,j at uniform pressure, is given by

$$\mathbf{C}_i - \mathbf{C}_j = - D_{ij} \left[\text{grad ln } (x_i/x_j) - (\alpha_T)_{ij} \text{ grad ln } T\right] \qquad (1)$$

where

$\mathbf{C}_i$ and $\mathbf{C}_j$ — mean values of the peculiar velocities of the molecules of kind i and j, respectively.

D_{ij} — concentration diffusion coefficient of the mixture.

x_i and x_j $(x_i + x_j = 1)$ — mole fractions.

$(\alpha_T)_{ij}$ — thermal diffusion factor of the mixture, with appropriate choice of signal.

When equilibrium has been reached, so that the velocity of mutual diffusion is zero, eq. 1 reduces to

$$\text{grad ln } (x_i/x_j) = (\alpha_T)_{ij} \text{ grad ln } T \tag{2}$$

If the elementary thermal diffusion effect is observed between temperatures T^I and T^{II} $(T^{II} > T^I)$, eq. 2 is usually integrated assuming that the thermal diffusion factor is independent of temperature and the mole fractions. The later simplification can be assumed since separation effect is generally very small indeed; the former is usually overcome by choosing a mean temperature, $\overline{T}$, which the experimental thermal diffusion factor is referred to.

Making the above assumptions, the integration of eq. 2 gives

$$\ln q = \alpha_T (T) \ln (T^{II}/T^I) \tag{3}$$

where subscripts i,j referring to gases has been omitted and q is the separation factor given by

$$q = (x_i/x_j)^{II} / (x_i/x_j)^I$$

Upperscripts II and I refer to the high and low temperatures, T^{II} and T^I, respectively.

Several formulas have been proposed for the mean temperature, $\overline{T}$. This problem has been considered by one of us (L-2). In the temperature range we have dealt in this paper, it is safe to use DAVENPORT's formula (D-1), namely

$$\overline{T} = (T^{II}\ T^I)^{1/2}$$

The theoretical expression of the thermal diffusion factor for isotopes of molecular masses M_1 and M_2 close enough, can be written as

$$\alpha_T = \alpha_0 \frac{M_2 - M_1}{M_2 + M_1} \qquad (M_2 > M_1) \tag{5}$$

where α_o is the so called reduced isotopic thermal diffusion factor. According to CHAPMAN-ENSKOG'S theory, α_o is given as a ratio of two infinite determinants, to which two schemes of serial solutions have been presented, namely, by KIHARA-MASON (K-1, M-4) and CHAPMAN -COWLING (C-1, M-5).

In this paper we will only use the first KIHARA'S approximation, $[\alpha_o]_1^K$, for the reduced isotopic thermal diffusion factor:

$$[\alpha_o]_1^K = \frac{15}{16} \cdot \frac{6\,C^* - 5}{A^*} \tag{6}$$

where

$$C^* = \Omega^{(1,2)^*} / \Omega^{(1,1)^*} \; ; \; A^* = \Omega^{(2,2)^*} / \Omega^{(1,1)^*}$$

and $\Omega^{(1,1)^*}$, $\Omega^{(1,2)^*}$ and $\Omega^{(2,2)^*}$ are reduced collision integrals.

The formulas for CHAPMAN-COWLING'S scheme and higher order of KIHARA-MASON'S approximations are very complex and theoretical data for α_o can only be obtained by means of computers.

Tabulated values of different approximations for the reduced isotopic thermal diffusion factor according to common potential models, are not yet complete. In our case we have to deal with exp-six model with the potential parameter α equals to 15 and 16.

KIHARA'S first approximation, $[\alpha_o]_1^K$, has been already tabulated for $\alpha = 16$, (M-2), but not for higher approximation. On the other hand, for $\alpha = 15$ a complete table has been given for the second approximation, $[\alpha_o]_2^K$, (S-3), but only partially for the first one (M-5, L-2, L-3).

Our discussion on the isotopic thermal diffusion factor for neon has, for that reason, been limited to $[\alpha_o]_1^K$, which is the only one readily workable and computed using tabulated values of C^* and A^*, eq. 6. This is not a serious drawback, since for practical proposes the improvement achieved by higher orders of approximation may be disregarded, bearing in mind the magnitude of experimental errors.

3 — *EXPERIMENTAL.*

Experiments of isotopic thermal diffusion factors for neon have been carried out with a swing separator of CLUSIUS' type (C-2) con-

sisting of 8 stainless steel tubes with an inner diameter of 15 mm and 9 cm long, connected in series by stainless steel capillary tubes with an inner diameter of 0,8 mm (see fig. 3).

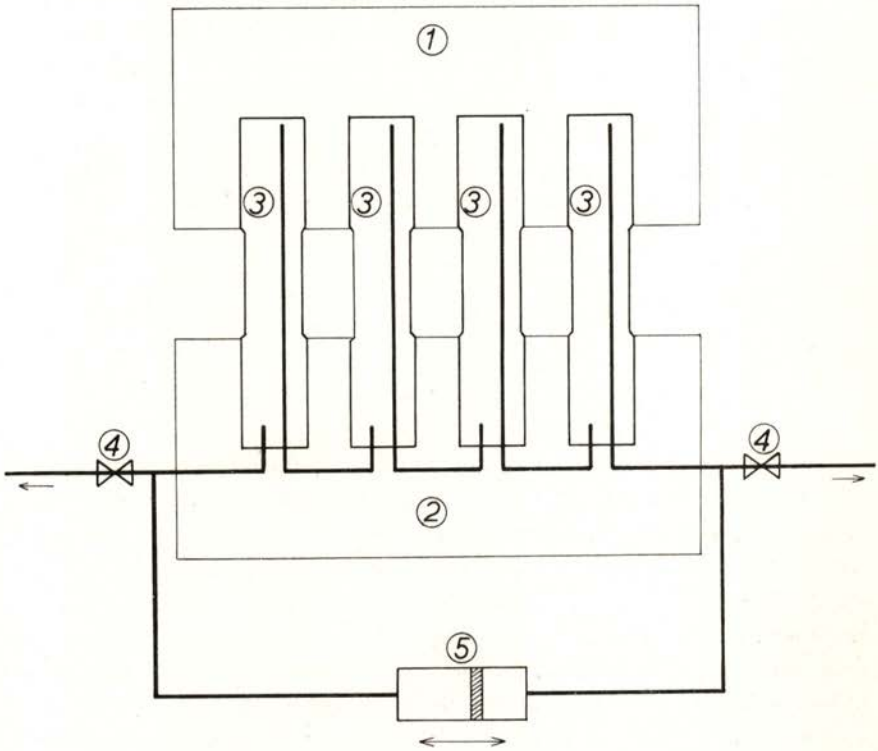


Fig. 3 — *Diagram of the swing separator.* 1 — *copper block;* 2 — *oil bath;* 3 — *separation stainless steel tubes;* 4 — *to inlet and sampling system;* 5 — *mercury U tube pump.*

The upper 3 cm of the tubes were forced in a copper block which was heated up thermostatically by a heating element; the lower 3 cm were cooled by a thermostatic oil bath fed by a cold oil tank by means of a small electrical pump.

The transition part of the tubes was isolated with asbestos.

In fig. 4 we present schematically the control system for the heating element and temperature measurements. A chromel-constantan thermocouple is used via a strip chart recorder which registers the temperature and commands by an on-off system a change-over relay. The power for the heating element is furnished through that relay by the variac which has two output voltages, V_1 and V_2, being

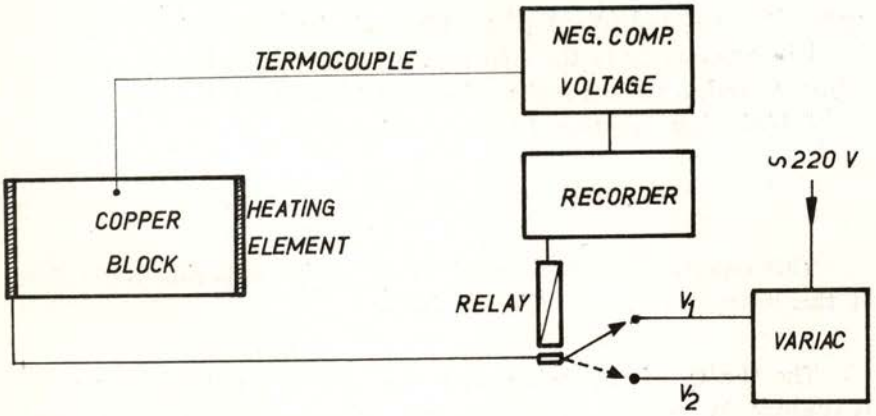


Fig. 4 — *Control system for the heating element and for temperature measirements.*

one slightly lower and the other slightly higher than the mean voltage necessary to mantain the desired temperature.

In order to increase the sensibility of the system, we have chosen a full scale of 0 — 5 mV in the recorder. When the e.m.f. of the thermocouple was higher we introduced a negative compensation voltage, as shown on fig. 4.

By this way the temperature stability in the copper block was of about 0.2 °K over the entire range of the experiments.

The temperature of the oil bath was stabilized in a similar way. A variable flow of oil from a cold tank was mantained by a small electrical pump.

The temperature stabilisation was of about 0.3 °K.

About 1 cm^3 of the gas was pumped to and fro periodically by means of a U tube, partially filled with mercury, which was swang by an electromotor and an eccentric wheel. The pumping period can change within large limits (10 - 120 s) without appreciable difference in the isotopic separation achieved. We have chosen $t_P = 19$ s.

The swing separator is a convection-free apparatus and an elementary thermal diffusion process should be achieved in each tube. If q represents the elementary separation factor in each tube in the temperature range T^I - T^{II}, hence the total separation factor, Q, obtained with a swing separator of n tubes should be

$$Q = (X_i / X_j)^{II} / (X_i / X_j)^I = q^n \qquad (7)$$

where $(X_i/X_j)^I$ and $(X_i/X_j)^{II}$ are the mole fraction ratio of the gases i and j, respectively in the cold region of the first tube at the temperature T^I and in the hot region of the nth tube at the temperature T^{II}.

Introducing equation 7 into equation 3, we have

$$ln\ Q = n\ \alpha_T(\overline{T})\ ln\ (T^{II}/T^I) \tag{8}$$

This equation has been used to determine experimental values of the isotopic thermal diffusion factor.

The theory of the swing separator has been given by VAN DER WAERDEN (W - 3). The relaxation time of separation, t_R, is approximately

$$t_R = \left(\frac{n+1}{\pi}\right)^2 (t_D + t_P\ V/\Delta\ V) \tag{9}$$

where

n — number of the tubes of the swing separator.
t_D — L^2/D where L is the length of each tube and D is the diffusion coefficient of the gas mixture.
t_P — pumping period of the U tube.
V — volume of each tube of the swing separator.
$\Delta\ V$ — pumping volume of the U tube.

In our case, the relaxation time for neon isotopes is of the order of 38 minutes, in the temperature range observed.

In practice every experiment has been runned for at least 24 hours. Runs of 48 hours have been performed from time to time. Therefore, stationary conditions have been secured.

Analyses of neon isotopes were made in our laboratory with a mass spectrometer type MS 2 - SG, from AEI, Manchester, England.

Normal neon was used in experiments and was delievered by L'Air Liquide, Lisbon. Purity was 99,8 % having helium as the main impurity. No traces of argon and CO_2, which might interfer with mass spectrometric analyses of neon, have been found.

For the experiments the swing separator was filled to about 76 cm Hg.

To control eventual inleakage the peak at mass 28 corresponding to N_2^+, was always measured before and after each experiment. For

all the observations repported in this paper, the peak height of N_2^+ in the samples could not be distinguished from/or was very slightly above the normal background of the mass spectrometer.

4 — *RESULTS.*

Common neon consists of isotopes ^{20}Ne, ^{21}Ne and ^{22}Ne. Isotopic composition of the neon used was determined by our mass spectrometer giving the following percentages with an error of the order of 0.2 %:

$$^{20}Ne — 90.9 \quad ; \quad ^{21}Ne — 0{,}251 \quad ; \quad ^{22}Ne — 8.90$$

This results agree satisfactorily with tabulated abundances.

Since ^{21}Ne was present in small amount, the neon used was regarded as a binary mixture of ^{20}Ne - ^{22}Ne. Furthermore, the theory of thermal diffusion for complex isotopic mixtures supports this kind of approximation.

In table III, column 5, we present the experimental values of the isotopic thermal diffusion factor, α_T (exp), and in column 6 and figs. 2 and 5, the reduced isotopic thermal diffusion factor, α_o (exp), by using eq. 5.

Each presented value of α_T (exp) corresponds to a mean of at least 4 observations. The errors repported in the table take into consideration only the deviations to the mean value of α_T (exp). The magnitude of those errors are of the order of 1 - 2 %.

The mean temperature to which the experimental thermal diffusion factor has been referred is given by DAVENPORT'S formula, eq. 4.

5 — *DISCUSSION.*

In the following discussion we will only consider the exp.-six potential for theoretical comparisons. This potential model is believed to fit reasonably well experimental data of transport phenomena, very probably not only due to theoretical reasons but also because it has three adjustable parameters, ε/k, α and r_m.

If one intends to determine those potential parameters by means of experimental data of transport phemena, one has obviously to realize what kind of information may be obtained by each of the phenomena considered.

As we have pointed out in § 1, though thermal diffusion is very sensitive to the nature of molecular potential, the possibility of determining directly the potential parameters ε/k and α, has to be examined considering each specific case. For the temperature range we have covered the thermal diffusion factor of neon isotopes is able to provide a good value for the parameter α, but ε/k is completely uncertain.

On the other hand, if α is already known, viscosity provides the best way to determine ε/k as well as r_m, since accurate experimental data is available for the case of neon covering a large temperature range.

The coefficient of viscosity, η, can be written as

$$10^7 \eta = 266.93 \ (M \ T)^{1/2} \ \eta_o \tag{10}$$

where M is the molecular weight and η_o, which we call the reduced coefficient of viscosity, is given by

$$\eta_o = f_\eta^{(m)} (\alpha, \ T^*) / r_m^2 \ \Omega^{(2,2)^*} (\alpha, \ T^*) \tag{11}$$

In the above formulas, η is expressed in poise and r_m in Angstrom.

Tables for the reduced collision integral $\Omega^{(22)^*}$ and the dimensionless function $f_\eta^{(m)}$ can be obtained in ref. M-5, M-2 anda H-1 for the second and third order of approximation, (m).

By means of equation 10 experimental values of η_o can be obtained. Determinations of ε/k and r_m, once α fixed, have been made by the usual superposition technique (W-4). By superposition of the log-log plot of η_o versus T, over the theoretical log-log curve of $f_\eta^{(m)} / \Omega^{(2,2)^*}$ versus T^*, the potential parameters ε/k and r_m are graphically calculated. Further improvement to those values are obtained by the least square method.

For experimental and theoreticall comparisons, we have taken as well the self-diffusion coefficientt, which is the only transport coefficient directly correlated with the collision integral $\Omega^{(1,1)^*}(\alpha, \ T^*)$ being therefore of particular interest:

$$10^4 \ D = 26.280 \ M^{-1/2} \ T^{3/2} \ D_o \tag{12}$$

with

$$D_o = f_D^{(m)} \ (\alpha, \ T^*) / r_m^2 \ \Omega^{(1,1)^*} \ (\alpha, \ T^*) \tag{13}$$

We call D_o as the reduced self-diffusion coefficient. In principle experimental values of D_o provides another way to determine ε/k

and r_m once fixed the parameter α. However, since observations with neon isotopes are rather scarce and covering an insufficient temperature range, the self-diffusion coefficient has only been used as a kind of control.

In short, the method we propose to determine the potential parameters of neon is the following:

1 — Bearing in mind the temperature range covered by our experiments, the parameter α is determined by thermal diffusion.
2 — Values of ε/k ande r_m are then calculated from viscosity data.
3 — Self-diffusion is only used as a kind of control.

TABLE II

Exponential-six parameters for neon.

Parameters	Present work			Ref. M-2
	Values of parameters	Experimental data used	T^* range observed	Values of parameters
α	15.5	thermal diff.	10 — 15	14.5
ε/k (°K)	33.4	viscosity	0.6 — 23	38.0
r_m (Å)	3.144	viscosity	0.6 — 23	3.147

In table II we give the values of the potential parameters determined by this method. Previous results proposed by MASON & RICE (M-2) using viscosity data and the second virial coefficient are also presented.

In table III, columns 6 and 7, and in the upper pert of fig. 5 we compare the experimental reduced thermal diffusion factor with KIHARA'S first approximation given by eq. 6, for our proposed parameters. Values of $[\alpha_o]_1^K$ for the chosen parameter $\alpha = 15{,}5$ have been interpolated by means of the existing tables for $\alpha = 16$, ref. M-2, and our computed values for $\alpha = 15$, given in table IV, which complete previous tabulations of ref. M-2, I,-2 and I,-3 in the temperature range of interest.

TABLE III

Experimental and theoretical values of thermal diffusion for $^{20}Ne-^{22}Ne$.

T^{II} (°K)	T^{I} (°K)	$\overline{T}$ (°K)	$\overline{T}^*$	α_T (exp) x 10^2	α_o (exp)	$[\alpha_o]_1^K$ (theor.)	Dev.
373.0	302.0	335.6	10.05	2.56 ± 0.06	0.538 ± 0.013	0.547	— 0.009
413.0	314.0	354.3	10.61	2.59 ± 0.03	0.544 ± 0.007	0.548	— 0.004
442.0	303.0	366.0	10.96	2.61 ± 0.05	0.548 ± 0.011	0.549	— 0.001
475.0	308.0	382.1	11.44	2.66 ± 0.03	0.559 ± 0.006	0.550	+ 0.009
536.0	307.6	407.4	12.20	2.61 ± 0.04	0.548 ± 0.008	0.551	— 0.003
563.0	318.0	423.1	12.67	2.64 ± 0.01	0.554 ± 0.002	0.551	+ 0.003
616.0	316.0	441.2	13.21	2.58 ± 0.04	0.542 ± 0.008	0.551	— 0.009
646.0	315.6	451.5	13.52	2.70 ± 0.02	0.566 ± 0.004	0.551	+ 0.015
732.0	313.0	478.7	14.33	2.64 ± 0.03	0.554 ± 0.007	0.551	+ 0.003
773.0	333.0	507.4	15.19	2.60 ± 0.02	0.547 ± 0.005	0.551	— 0.004

TABLE IV

Values of $[\alpha_o]_1^K$ *for exponential-six and* $\alpha = 15$.

T^*	$[\alpha_o]_1^K$	Ref.	T^*	$[\alpha_o]_1^K$	Ref.
8	0.528	*a*)	18	0.536	*a*)
9	0.533	*a*)	20	0.536	M-5, L-2, L-3
10	0.535	M-5, L-2, L-3	25	0.533	*a*)
12	0.538	*a*)	30	0.531	*a*)
14	0.538	L-3	35	0.531	*a*)
16	0.538	*a*)	40	0.531	L-2, L-3

a) Present work.

In table V we compare experimental and theoretical coefficients of viscosity, η, and in fig. 5 the reduced coefficient of viscosity, η_o, eqs. 10 and 11. The agreement between experimental and theoretical data is satisfactory and seems to be better than that reppoited by MASON & RICE (M-2) using their set of parameters indicated in table II.

As we have pointed out, experimental values of self-diffusion are very scarce and, therefore, insufficient for determinations of potential parameters of the exp.-six model. Comparison between experi-

TABLE V

Experimental and theoretical values of viscosity for neon.

T (^oK)	T^*	η (exp) (μ poise)	Ref.	η (theor.) (μ poise)	Dev. (μ poise)
20.43	0.6117	33.6	K1	34.47	— 0.9
30.55	0.9147	51.1	M6	51.27	— 0.2
39.52	1.183	64.9	M6	65.86	— 1.0
49.97	1.496	80.4	J1	81.97	— 1.6
59.59	1.784	96.0	M6	95.89	+ 0.1
69.38	2.077	109.4	M6	109.07	+ 0.3
80.00	2.395	119.8	J1	122.61	— 2.8
90.3	2.704	135.2	R1	134.96	+ 0.2
100.0	2.994	143.5	J1	146.03	— 2.5
140.0	4.192	184.1	J1	186.78	— 2.7
160.0	4.79	202.6	J1	205.16	— 2.6
180.0	5.39	220.4	J1	222.5	— 2.1
200.0	5.99	237.6	J1	239.0	— 1.4
229.0	6.86	267.0	R1	261.8	+ 5.2
240.0	7.19	270.8	J1	270.1	+ 0.7
260.0	7.78	286.7	J1	285.0	+ 1.8
273.0	8.17	297.3	R2	294.3	+ 3.0
293.16	8.777	309.2	T1	308.4	+ 0.8
298.0	8.92	313.0	R2	311.7	+ 1.3
323.0	9.67	329.4	R2	328.7	+ 0.7
373.0	11.17	364.6	T1	361.5	+ 3.1
473.0	14.16	424.8	T1	422.2	+ 2.7
523.0	15.66	453.2	T1	450.9	+ 2.3
558.0	16.71	470.8	T2	470.4	+ 0.4
702.0	21.02	545.4	T2	546.8	— 1.4
775.0	23.20	580.2	T2	583.5	— 3.3

mental and theoretical values of D and D_o, eqs. 12 and 13, using our set of parameters, is given in table VI and in fig. 5, respectively. The agreement may be considered rather good but, as a general trend, experimental data is about 2 % higher than theoretical values. That difference is, however, of the order of magnitude of experimental errors. If we choose the parameters $\varepsilon/k = 33.4$ °K and $\alpha = 15{,}5$ of our set, experimental data of self-diffusion in neon is more consistent with a value of $r_m = 3.108$ Å whereas from viscosity we have obtained $r_m = 3.144$ Å.

TABLE VI

Experimental and theoretical values of sel-diffusion for neon.

T (^oK)	T^*	D (exp) x 10^2 (cm^2 s^{-1})	Ref.	D (theor.) x 10^2 (cm^2 s^{-1})	Dev. x 10^2 (cm^2 s^{-1})
77.7	2.326	4.92	W 6	4.962	— 0.04
194.7	5.83	25.5	W 6	24.67	+ 0.83
273.2	8.18	45.2	W 6	43.69	+ 1.51
293.0	8.77	48.4	G 1	49.14	— 0.74
298.2	8.93	51.6	W 6	50.61	+ 0.99
353.2	10.57	70.3	W 6	67.22	+ 3.08

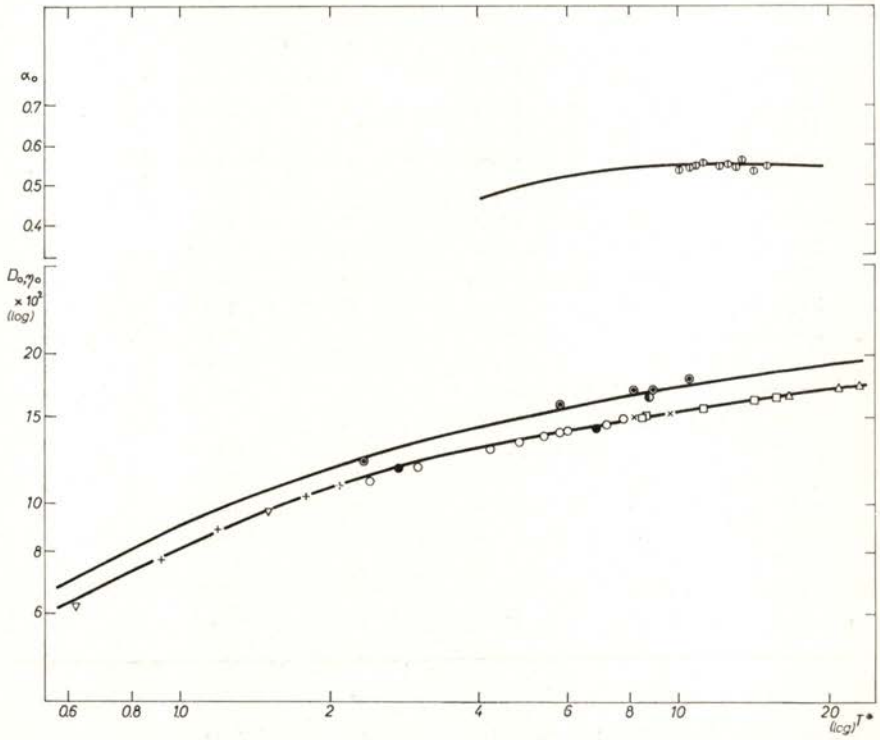


Fig. 5 — *Reduced isotopic thermal diffusion factor,* α_o, *for* ^{20}Ne — ^{22}Ne:
——— *Kihara's first approximation.* ◐ *our experimental data.*
Reduced self-diffusion coefficient, D_o:
——— *theoretical curve. Experimental:* ⊙ WINN (W 6); ◐ GROTH & SUSSUER (G-1).
Reduced viscosity coeficient, η_o:
——— *theoretical curve. Experimental:* ○ JOHNSTON & GRILLY (J-1): ● RIETVELD & VAN ITTERBEEK (R-1); × RANKINE (R-2); □ TRAUTZ & BINKELE (T-1); △ TRAUTZ & ZINK (T-2); ▽ KESTIN & WANG (K-2); + MARIENS & PAEMEL (M-6).

It should be pointed out that our set of parameters (as well as those of MASON & RICE) cannot explain experimental thermal diffusion of neon isotopes recently reported by WATSON *et all.* (W-5) and by SAXENA *et all.* (S-2) in the low temperature range from $\overline{T} \simeq 170$ up to 300°K (see fig. 2).

For WATSON's results the exp.-six parameter ε/k would be of the order of 50 °K and for SAXENA's data of the order of 67 °K (with $\alpha = 14$). Such high values of ε/k are quite inadequate for experimental viscosity data which is known to be accurately measured.

In principle, we may think that WATSON and SAXENA's data are affected by unknown systematic errors and, therefore, it would be very convenient that further experiments of isotopic thermal diffusion of neon should be realized in that low temperature range.

We thank the technical staff of our Laboratory for the help given to this work and Mr. João Martins Casaca for making the spectrometric analyses.

BIBLIOGRAPHY

(C - 1) CHAPMAN, S., & COWLING, T. G. — *The Mathematical Theory of Non Uniform Gases*. Cambridge University Press, 1953.

(C - 2) CLUSIUS, K., & HUBER, M. — *Z. Naturforsch.*, **10 a**, 230, 1955.

(D - 1) DAVENPORT, A. N., & WINTER, E. R. S. — *Trans. Faraday Soc.*, **47**, 1160, 1951.

(G - 1) GROTH, W., & SUSSUER, E. — *Z. Physik Chem.*, **193**, 296, 1944.

(H - 1) HIRSCHFELDER, J. O., CURTISS, C. F., & BIRD, R. B. — *Molecular Theory of Gases and Liquids*. John Wiley & Sons, New York, 1954.

(J - 1) JOHNSTON, A. L., & GRILLY, E. R. — *J. Phys. Chem.*, **46**, 938, 1942.

(K - 1) KIHARA, T. — *Rev. Mod. Phys.*, **25**, 831, 1953.

(K - 2) KESTIN, J., & WANG, H. — *Physica*, **24**, 557, 1958.

(L - 1) LARANJEIRA, M. F., & KISTEMAKER, J. — *Physica*, **26**, 431, 1960.

(L - 2) LARANJEIRA, M. F., MOUTINHO, A., & VASCONCELOS, M. H. — *Portgal. Phys.*, **4**, 115, 1965.

(L - 3) LARANJEIRA, M. F. — *Termodifusão em Misturas Gasosas*. Prof. Dissertation, Lisbon, 1965.

(M - 1) MASON, E. A., & RICE. W. E. — *J. Chem. Phys.*, **22**, 522, 1954.

(M - 2) MASON, E. A., & RICE, W. E. — *J. Chem. Phys.*, **22**, 843, 1954.

(M - 3) MORAN, T. I., & WATSON, W. W. — *Phys. Rev.*, **109**, 1184, 1958.

(M - 4) MASON, E. A. — *J. Chem. Phys.*, **27**, 75, 1957.

(M - 5) MASON, E. A. — *J. Chem. Phys.*, **22**, 169, 1954.

(M - 6) MARIENS, P., & VAN PAEMEL, — *Physica*, **24**, 557, 1958.

(R - 1) RIETVELD, & VAN ITTERBEEK — *Physica*, **22**, 787, 1956.

(R - 2) RANKINE — *Physica*, **30**, 990, 1954.

(S - 1) STIER, L. G. — *Phys. Rev.*, **62**, 548, 1942.

(S - 2) SAXENA, S. C., KELLY, J. G., & WATSON, W. W. — *Phys. Fluids*, **4**, 1216, 1961.

(S - 3) SAXENA, S. C., & MASON, E. A. — *J. Chem. Phys.*, **28**, 623, 1958.

(T - 1) TRAUTZ & BINKELE — *Handbook of Chemistry and Physics*, 32nd ed. Chemical Publishing Co., Ohio, 1950-51.

(T - 2) TRAUTZ & ZINK — *Idem*.

(W - 1) WATSON, W. W. — *Proceedings of the International Simposium on Isotope Separation*, 459. Amsterdam, North Holland Publishing Comp., 1958.

(W - 2) WATSON, W. W., HOWARD, A. J., MILLER, M. E., & SHIFFRIN, R. M. — *Z. Naturforsch.*, **18 a**, 242, 1963.

(W-3) VAN DER WAERDEN, B. L. — *Z. Naturforsch.*, **12 a**, 583, 1957.
(W-4) WEISSMAN, S., SAXENA, S. C., & MASON, E. A. — *Phys. Fluids*, **3**, 510, 1960.
(W-5) WATSON, W. W., PAUL, R., & HOWARD, A. J. — *J. Chem. Phys.*, **39**, 3053, 1963.
(W-6) WINN, E. B. — *Phys. Rev.*, **80**, 1024, 1950.

ERRATA

F. WIDEMANN et C. SÉBILLE — *Etude de la désintégration du* ^{187}W

Portgal. Phys. — Vol. 4, fasc. 3, pp. 215-256, 1966 — Lisboa

Page	Ligne	Au lieu de	Lire
220	27	$X\ L\ X$	$K\ L\ X$
223	3	Seätis	Slätis
225	11 et 12	$K\ L_{I}\ M_{I}$ $K\ L_{I}\ M_{II}$	$\left\{\begin{array}{l} K\ L_{I}\ M_{I} \\ K\ L_{I}\ M_{II} \end{array}\right.$
226	14	34,25	37,25
	15	$0{,}73 \pm 0{,}8$	$0{,}73 \pm 0{,}08$
	23	206,20	206,20 K
233	6	$\frac{1}{s\,2} \longrightarrow P\ 1/p\ 2$	$s\ 1/2 \longrightarrow p\ 1/2$
236	5	Transition de 128 keV	Transition de 132 keV
241	7	Schukin	Shchukin
250	25	P_3	P_4

LISTE DES PUBLICATIONS REÇUES ACTUELLEMENT EN ENCHANGE AVEC *PORTUGALIAE PHYSICA*

ALEMANHA	— *Sitzungsberichte der Sächsischen Akademie der Wissenschaften zu Leipzig*
	— *Verhandlungen der Deutschen Physikalischen Gesellschaft*
ARGENTINA	— *Mathematicae Notae (Boletin del Instituto de Matematica)*
	— *Revista de la Unión Matemática Argentina y de la Asociación Física Argentina*
AUSTRÁLIA	— *Journal and Proceedings of the Royal Society of New South Wales*
BÉLGICA	— *Annuaire de l'Académie Royale de Belgique*
	— *Bulletin de la Classe des Sciences de l'Académie Royal de Belgique*
	— *Mededelingen uit het Natuurkundig Laboratorium der Universiteit te Gent*
	— *Publications du Centre d'Etude de l'Energie Nucleaire*
	— *Recueil de Travaux de Laboratoire de Physique de l'Université de Louvain*
BULGÁRIA	— *Annuaire de l'Université de Sofia*
CANADÁ	— *Canadian Journal of Physics*
EQUADOR	— *Anales de la Universidad Central del Ecuador*
ESPANHA	— *Revista de Geofísica del Instituto Nacional de Geofísica*
E. U. A.	— *Bulletin of the Seismographic Stations — University of California*
	— *Isotopes and Radiation Technology*
	— *Journal of the Franklin Institute*
	— *Nuclear Safety*
	— *Power Reactor Technology*
	— *Reactor Materials*
	— *The General Radio Experimenter*
FINLÂNDIA	— *Annales Academiae Scientiarum Fennicae*
	— *Commentationes Physico-Mathematicae*
FRANÇA	— *Annales de Physique*
	— *Cours de l'École Polytechnique*
HOLANDA	— *Communications from the Kamerlingh Onnes Laboratory of the University of Leiden*
HUNGRIA	— *Atomki Közlemények (Institute of Nuclear Research)*
ÍNDIA	— *Proceedings of the Indian Academy of Sciences*

INGLATERRA	— *Contributions from the Cambridge Observatories*
	— *Electrical Review*
	— *Electrical Times*
	— *National Physical Laboratory (Report)*
	— *Proceedings of the Royal Society of Edinburgh*
	— *Revue de la Société English Electric*
	— *The School Science Review*
IRLANDA	— *Proceedings of the Royal Irish Academy*
	— *The Scientific Proceedings of the Royal Dublin Society*
ITÁLIA	— *La Ricerca Scientifica*
	— *Rapporti dei Laboratori di Fisica dell'Istituto Superiore di Sanità*
	— *Rendiconti del Seminario della Facoltà di Scienze dell'Università di Cagliari*
JUGOSLÁVIA	— *Glasnik Matematicki*
	— *Nuklearni Institut Jozef Stenfan (Reports)*
	— *Publikacije Elektrotehnickog Fakulteta Univerziteta u Beogradu*
	— *Radovi Zavoda za Fiziku*
NORUEGA	— *Arkiv for det Fysiske Seminar i Trondheim*
POLÓNIA	— *Acta Physica Polonica*
PORTUGAL	— *Arquivo do Instituto Gulbenkian de Ciência*
	— *Cursos e Seminários do Instituto Gulbenkian de Ciência*
	— *Bibliografia Médica Portuguesa*
	— *Estudos de Programação e Análise Numérica do Instituto Gulbenkian de Ciência*
	— *Gazeta de Física*
	— *Gazeta de Matemática*
	— *Revista Portuguesa de Química*
ROMÉNIA	— *Buletinul Institutului Politehnic Din Iasi*
RÚSSIA	— *Referativnyi Zhurnal Fizika (Institut de l'Information Scientifique de l'Academie des Sciences de l'URSS)*
SUÉCIA	— *Arkiv för Fysik*
SUÍÇA	— *Information Bulletin (International Union of Pure and Applied Chemistry)*
TURQUIA	— *Communications de la Faculté des Sciences de l'Université d'Ankara*
	— *Fen Fakültesi Mecmuasi Istanbul Üniversitesi*
	— *Türk Fizik Dernegi Bülteni*

Bertrand (Irmãos), Lda.

CDU 53 (469) (05)

PORTUGALIAE PHYSICA

ÍNDICES

VOLUME 4

1965-1966

INSTITUTO DE ALTA CULTURA

CENTROS DE ESTUDOS DE FÍSICA DAS UNIVERSIDADES PORTUGUESAS

PORTUGALIAE PHYSICA

Fundadores: A. Cyrillo Soares, M. Telles Antunes, A. Marques da Silva, M. Valadares.

VOLUME 4 1965-66

VOLUMES PUBLICADOS:

Vol. 1 — 1943-45 — 326 pp.
Vol. 2 — 1946-47 — 256 pp.
Vol. 3 — 1949-54 — 173 pp.
Vol. 4 — 1965-66 — 304 pp.

Redacção: Laboratório de Física da Faculdade de Ciências — Lisboa-2 (PORTUGAL)

Comissão de redacção:

J. Moreira de Araújo — Carlos Braga — Carlos Cacho — A. Pires de Carvalho — M. Abreu Faro — J. Gomes Ferreira — António Gião — F. Bragança Gil — Manuel Laranjeira. Amaro Monteiro — J. Pinto Peixoto — J. da Providência — Lídia Salgueiro — J. de Almeida Santos — José Sarmento — António da Silveira — J. Veiga Simão.

ÍNDICES

MATÉRIAS

MATIÈRES - MATTERS

VOLUME 4

Fasc. 1 (1965)

Editorial 3-6

Sur l'évolution d'un nuage de particules en cours d'accélération vers une distribution statistique limite, par J. ANDRADE E SILVA et G. LOCHAK 7-16

Le rendement de fluorescence du niveau L du Ra, par F. BRAGANÇA GIL, C. F. MIRANDA, J. SOUSA LOBO et J. GOMES FERREIRA..... 17-32

Réactions (p. xn) et évaporation nucléaire, par RUI DA SILVEIRA.... 33-110

Liste des publications reçues actuellement en échange avec *Portugaliae Physica* 111-112

Instructions pour les auteurs 113

Instructions to the authors 114

Fasc. 2 (1965)

Temperature assignment to thermal diffusion factor, by M. F. LARANJEIRA, A. MOUTINHO and M. H. VASCONCELOS 115

Le rendement de la transition de Coster-Kronig $L_I \rightarrow L_{III}$ *du rhenium*, par L. SALGUEIRO, M. A. CAMPOS et J. G. FERREIRA..... 131

On the role of water vapor in the energetics of the general circulation of the atmosphere, by JOSÉ P. PEIXOTO 135

Variational approach to the nuclear collective motion, by J. DA PROVIDÊNCIA 171

Fasc. 3 (1966)

Solutions singulières et guidage du photon d'après la théorie de la fusion, par THIOUNN MUMM 185

The ordering of the σ-phase Cr_2Ru, by L. M. ALTE DA VEIGA 205

Étude de la désintégration du noyau de tungstène 187, par F. WIDEMANN et C. SÉBILLE 215

Fasc. 4 (1966)

Peut-on connaître simultanément et avec précision la position et la quantité de mouvement d'une particule ?, par J. ANDRADE E SILVA 257

Spectre d'électrons de conversion interne associés à la transmutation du thorium - 228 en radium - 224, par MARIA OTILDE COSTA et MARIA REGINA SALES GRADE 267

Isotopic thermal diffusion in neon, by M. F. LARANJEIRA and M. ÁUREA CUNHA 281

Étude de la désintégration du ^{187}W (Errata), par F. WIDEMANN et C. SÉBILLE 301

Liste des publications reçues actuellement en échange avec Portugaliae Physica 303

AUTORES

AUTEURS - AUTHORS

CAMPOS, M. A. — vd. L. SALGUEIRO

COSTA, M. O., et GRADE, M. R. S. — *Spectre d'électrons de conversion interne associés à la transmutation du thorium - 228 en radium - 224* 267

CUNHA, M. A. — vd. M. F. LARANJEIRA

FERREIRA, J. Gomes — vd. F. Bragança GIL

FERREIRA, J. Gomes — v. L. SALGUEIRO

GIL, F. Bragança, MIRANDA, C. F., LOBO, J. Sousa, et FERREIRA, J. G. — *Le rendement de fluorescence du niveau L du Ra* 17

GRADE, M. R. S. — vd. M. O. COSTA

LARANJEIRA, M. F., MOUTINHO, A., and VASCONCELOS, M. H. — *Temperature assignment to thermal diffusion factor* 115

LARANJEIRA, M. F., and CUNHA, M. A. — *Isotopic thermal diffusion in neon* 281

LOBO, J. Sousa — vd. F. Bragança GIL

LOCHAC, C. — vd. J. Andrade e SILVA

MIRANDA, C. F. — vd. F. Bragança GIL

MOUTINHO, A. — vd. M. F. LARANJEIRA

PEIXOTO, José P. — *On the role of water vapor in the energetics of the general circulation of the atmosphere* 135

PROVIDÊNCIA, J. da — *Variational approach to the nuclear collective motion* 171

SALGUEIRO, L. CAMPOS, M. A., et FERREIRA, J. G. — *Le rendement de la transition de Coster-Kronig* $L_I \rightarrow L_{III}$ *du rhenium* 131

SÉBILLE, C. — vd. F. WIDEMANN

SILVA, J. Andrade, et LOCHAK, G. — *Sur l'évolution d'un nuage de particules on cours d'accélération vers une distribution statistique limite* 7

SILVA, J. Andrade e — *Peut-on connaître simultanément et avec précision la position et la quantité de mouvement d'une particule ?* 257

SILVEIRA, Rui da — *Réactions (p. xn) et évaporation nucléaire*.... 33

THIOUNN, Munn — *Solutions singulières et guidage du photon d'après la théorie de la fusion* 185

VASCONCELOS, M. H. — vd. M. F. LARANJEIRA

VEIGA, L. M. Alte da — *The ordering of the σ-phase* $Cr_2 Ru$ 205

WIDEMANN, F., et SÉBILLE, C. — *Étude de la désintégration du noyau de tungstène 187* 215

Toute la correspondance concernant la rédaction de PORTUGALIAE PHYSICA doit être adressée à

PORTUGALIAE PHYSICA
Laboratório de Física da Faculdade de Ciências
LISBOA - 2 (Portugal)

Prix de l'abonnement:	250 escudos (US $8.50) par volume
Prix des volumes déjà parus:	300 escudos (US $10)
Prix du fascicule:	75 escudos (US $2.50)

Les membres de la "Sociedade Portuguesa de Química e Física" ont une réduction de 50 % sur les prix indiqués.

Les Universités, les Laboratoires de Physique, les Académies, les Sociétés Scientifiques et les Revues de Physique sont invités à recevoir cette revue en échange de leurs publications.

PORTUGALIAE PHYSICA donnera un compte-rendu detaillé de tous les ouvrages soumis à la rédaction en deux exemplaires.

All mail concerning PORTUGALIAE PHYSICA to be addressed to:

PORTUGALIAE PHYSICA
Laboratório de Física da Faculdade de Ciências
LISBOA - 2 (Portugal)

Subscription rates:	250 escudos (US $8.50) per volume
Price of past volumes:	300 escudos (US $10)
Price of copy:	75 escudos (US $2.50)

Members of the "Sociedade Portuguesa de Química e Física" may obtain *Portugaliae Physica* at a reduced price (50 %).

Universities, Physics Laboratories, Academies, Scientifica Societies and Physics Publications are invited to receive this review in exchange for their publications.

PORTUGALIAE PHYSICA will give a detailed report of any book if two copies have been submitted.

Toute la correspondance concernant la rédaction de PORTUGALIAE PHYSICA doit être adressée à

PORTUGALIAE PHYSICA
Laboratório de Física da Faculdade de Ciências
LISBOA - 2 (Portugal)

Prix de l'abonnement:	250 escudos (US $8.50) par volume
Prix des volumes déjà parus:	300 escudos (US $10)
Prix du fascicule:	75 escudos (US $2.50)

Les membres de la "Sociedade Portuguesa de Química e Física" ont une réduction de 50 % sur les prix indiqués.

Les Universités, les Laboratoires de Physique, les Académies, les Sociétés Scientifiques et les Revues de Physique sont invités à recevoir cette revue en échange de leurs publications.

PORTUGALIAE PHYSICA donnera un compte-rendu detaillé de tous les ouvrages soumis à la rédaction en deux exemplaires.

All mail concerning PORTUGALIAE PHYSICA to be addressed to:

PORTUGALIAE PHYSICA
Laboratório de Física da Faculdade de Ciências
LISBOA - 2 (Portugal)

Subscription rates:	250 escudos (US $8.50) per volume
Price of past volumes:	300 escudos (US $10)
Price of copy:	75 escudos (US $2.50)

Members of the "Sociedade Portuguesa de Química e Física" may obtain *Portugaliae Physica* at a reduced price (50 %).

Universities, Physics Laboratories, Academies, Scientifica Societies and Physics Publications are invited to receive this review in exchange for their publications.

PORTUGALIAE PHYSICA will give a detailed report of any book if two copies have been submitted.