



**HAL**  
open science

# Cinétique de fixation des gaz sur les métaux. Action de l'hydrogène sur les métaux alcalins

Michel Soustelle

► **To cite this version:**

Michel Soustelle. Cinétique de fixation des gaz sur les métaux. Action de l'hydrogène sur les métaux alcalins. Génie des procédés. Université de Grenoble, 1967. Français. NNT : . tel-00905031v1

**HAL Id: tel-00905031**

**<https://theses.hal.science/tel-00905031v1>**

Submitted on 15 Nov 2013 (v1), last revised 14 Apr 2015 (v2)

**HAL** is a multi-disciplinary open access archive for the deposit and dissemination of scientific research documents, whether they are published or not. The documents may come from teaching and research institutions in France or abroad, or from public or private research centers.

L'archive ouverte pluridisciplinaire **HAL**, est destinée au dépôt et à la diffusion de documents scientifiques de niveau recherche, publiés ou non, émanant des établissements d'enseignement et de recherche français ou étrangers, des laboratoires publics ou privés.

# LES ELEMENTS TRANSURANIENS

DEUXIEME THESE

présentée à la Faculté des Sciences  
de l'Université de Grenoble

par

Michel SOUSTELLE

Agrégé de l'Université

---

Juin 1967



# LES ELEMENTS TRANSURANIENS

DEUXIEME THESE

présentée à la Faculté des Sciences  
de l'Université de Grenoble

par

Michel SOUSTELLE

Agrégé de l'Université

---

Juin 1967

- SOMMAIRE -

INTRODUCTION

CHAPITRE I :

Propriétés nucléaires des transuraniens ..... 1

CHAPITRE II :

Préparation des éléments transuraniens ..... 37

I - Obtention des noyaux transuraniens ..... 37

II - Séparation des éléments transuraniens ..... 47

CHAPITRE III :

Structure électronique et propriétés chimiques ..... 50

CONCLUSION

---

## INTRODUCTION

Le premier élément transuraniens ( $Z > 92$ ) a été découvert en 1940 par Mac Millan et Abelson <sup>(1)</sup> à l'Université de Californie. Par irradiation de l'uranium par des neutrons accélérés au cyclotron, ces auteurs ont pu mettre en évidence l'existence d'un radiateur  $\beta$  de période 2,3 jours. Il s'agissait de l'élément  $^{239}_{93}$ . Le nouvel élément a été baptisé Neptunium parce que la planète Neptune suit immédiatement Uranus dans le système solaire.

L'élément suivant ( $Z = 94$ ) fut découvert à la fin de 1940 par Seaborg, Mac Millan, Kennedy et Wehl <sup>(2)</sup>, mais son existence ne fut révélée qu'en 1946.

A ce jour, on a signalé la découverte de 12 éléments transuraniens. Le tableau I en donne la liste avec le numéro atomique et l'année de sa découverte :

ELEMENT	SYMBOLE	Z	ANNEE DE DECOUVERTE
Neptunium	Np	93	1940
Plutonium	Pu	94	1940
Americium	Am	95	1944
Curium	Cm	96	1944
Berkelium	Bk	97	1950
Californium	Cf	98	1950
Einsteinium	Es	99	1952
Fermium	Fm	100	1952
Mendelevium	Md	101	1955
Nobélium	No	102	1957
Lawrencium	Lw	103	1961
?	?	104	1964

Tableau I

PROPRIETES NUCLEAIRES DES TRANSURANIENS

Les propriétés nucléaires des transuraniens peuvent se diviser en quatre catégories :

- La présence d'une barrière électrostatique importante,
- L'instabilité dynamique qui correspond à deux phénomènes voisins : l'émission  $\alpha$  et la fission spontanée,
- L'instabilité  $\beta$ ,
- Les différentes possibilités de réactions nucléaires.

Avant d'entreprendre l'étude de ces propriétés, il est nécessaire de présenter quelques notions sur la structure des noyaux.

I - NOTIONS SUR LA STRUCTURE DES NOYAUX

A - Le puits de potentiel du noyau

On admet actuellement que le noyau atomique est constitué de protons et de neutrons. Cette hypothèse implique l'existence de deux types de forces. D'une part les forces coulombiennes répulsives entre les protons, d'autre part des forces attractives entre nucléons qui peuvent seules expliquer l'existence de noyaux stables. Ces forces attractives seraient de faible portée et indépendantes de la charge des nucléons.

Si la présence d'un puits de potentiel pour le noyau est évidente, sa forme n'est pas connue de façon précise. Si  $a$  désigne le rayon du noyau et  $r$  la distance au centre, plusieurs hypothèses concernant la forme du puits de potentiel ont été avancées.

- Le puits rectangulaire :

$$V = -V_0 \text{ pour } r < a$$

$$V = 0 \text{ pour } r \geq a$$

$V_0$  serait de l'ordre de 30 Mev.

- Le puits en fond de bouteille : il dérive du précédent par un léger relèvement du fond dû aux forces coulombiennes. Ce relèvement augmenterait avec le numéro atomique Z.

- Le puits parabolique de l'oscillateur harmonique :

$$V = - \frac{V_0 r^2}{2}$$

- Le puits gaussien :

$$V = -V_0 \cdot e^{-\frac{r^2}{a^2}} - \frac{2r}{a}$$

- Le puits exponentiel :  $V = -V_0 \cdot e^{-\frac{r}{a}}$

- Le puits mésonique :

$$V = - \frac{k}{r} \cdot e^{-\frac{r}{a}} \quad (k \text{ est une constante})$$

On voit que toutes ces distributions de potentiel correspondent à des forces centrales. La découverte des moments électriques quadrupolaires a nécessité, en outre, l'introduction de forces non centrales entre les nucléons.

## B - Les modèles du noyau

Malgré notre ignorance sur la nature exacte des forces intranucléaires, des essais ont été faits pour construire un modèle de noyau qui permette de déduire les propriétés essentielles. Ces tentatives ont abouti à deux modèles apparemment contradictoires, mais des essais d'unification ont donné des résultats satisfaisants.

### 1 - Le modèle de la goutte de liquide

Ce modèle ne s'occupe pas de la structure fine du noyau. Il postule une forte interaction entre les nucléons qui efface leur individualité. Il est basé sur certaines analogies entre le comportement d'un noyau et celui d'une goutte de liquide :

- saturation des forces de cohésion,
- densité indépendante des dimensions (rayon proportionnel à la racine cubique du nombre de masse),
- existence d'une énergie de surface analogue à la tension superficielle des liquides.



Les nucléons se déplaceraient à l'intérieur du noyau avec une énergie cinétique de la même façon que les molécules des liquides sont soumises à l'agitation thermique.

Ce modèle a permis d'expliquer de façon remarquable la plupart des propriétés dynamiques des noyaux, c'est-à-dire leur comportement dans les réactions nucléaires et lors des phénomènes de fission. D'autre part, il permet de calculer au moyen d'un petit nombre de constantes ajustables la masse de n'importe quel noyau à partir du nombre de masse et du numéro atomique. La démonstration de cette relation nous permettra de bien mettre en évidence les hypothèses avancées dans la construction de ce modèle.

- Equation de masse

Les nucléons sont assimilés aux molécules d'une petite goutte de liquide dont la masse M est inférieure à la somme  $\sum m$  des masses des constituants. La différence

$$L = \sum m - M$$

représente le défaut de masse ou l'énergie de liaison totale du noyau.

On peut écrire :

$$L = E_n - (E_s + E_c + E_a + E_p)$$

- $E_n$  : énergie d'interaction des A nucléons entre eux,
- $E_s$  : action des forces qu'il a fallu vaincre pour constituer la goutte (tension superficielle),
- $E_c$  : répulsion coulombienne des protons,
- $E_a$  : tendance à l'égalité  $N = Z$  (asymétrie),
- $E_p$  : association de chaque espèce en paires de spins antiparallèles (parité).

Examinons successivement les termes de L.

- Energie d'interaction nucléaire

On suppose que cette énergie est saturée, c'est-à-dire qu'elle ne s'exerce qu'entre un nucléon et un nombre limité fixe de nucléons qui l'entourent.  $E_n$  sera donc proportionnel à leur nombre A. On écrit :

$$E_n = C_n A$$

- Energie de tension superficielle

D'autant plus importante que le rapport surface/volume est plus grand, c'est-à-dire que  $r$  est petit. Elle résulte du fait qu'un nucléon superficiel ne peut interagir avec autant de nucléons voisins qu'un nucléon intérieur.

Si on désigne par  $T$  le coefficient de tension superficielle, on a :

$$E_s = 4 \pi r^2 T$$

Or le rayon du noyau est donné par :

$$r = r_0 A^{1/3} \quad (\text{densité des noyaux constante})$$

$$\text{D'où : } E_s = 4 \pi r_0^2 \cdot T \cdot A^{2/3} = C_s \cdot A^{2/3}$$

- Energie de répulsion coulombienne

On montre que cette énergie s'écrit :

$$E_c = \frac{Z(Z-1)}{2} \cdot \frac{6e^2}{5r} = \frac{3e^2 Z(Z-1)}{5r_0 A^{1/3}}$$

$$\text{Pour } Z \gg 1, \quad E_c = C_c \frac{Z^2}{A^{5/3}}$$

$Z$  varie avec  $A$ . Pour les noyaux stables,  $Z$  est sensiblement proportionnel à  $A$ , d'où :

$$E_c = C_c A^{5/3}$$

(il est possible de faire une meilleure approximation en adoptant pour la variation de  $Z$  avec  $A$  la loi de Métropolis :

$$Z = \frac{200 A}{3(132 + A^{2/3})}$$

- Energie d'asymétrie

Une étude quantique de ce phénomène montre que cette énergie est de la forme :

$$E_a = C_a \frac{(A - 2Z)^2}{A}$$

- Energie de parité

Les effets précédents donnent des contributions à L qui varient de façon continue avec N et Z. Pour expliquer la plus grande stabilité des noyaux à nombre pair de neutrons ou de protons, on introduit un terme correctif  $E_p$  tel que :

- $E_p = 0$  pour les noyaux impairs (A impair)
- $E_p = -C_p/A$  pour les noyaux pairs-pairs (A pair, Z pair)
- $E_p = C_p/A$  pour les noyaux pairs-impairs (A pair, Z impair).

- Formule de masse de Weizacker

On obtient immédiatement pour masse d'un noyau (A, Z) :

$$M(A, Z) = ZM_p + (A - Z)M_n - E_n + E_s + E_c + E_a + E_p$$

$$M(A, Z) = (M_n - C_n)A - (M_n - M_p)Z + C_c \frac{Z^2}{A^{1/3}} + C_s A^{2/3} + C_a \frac{(A - 2Z)^2}{A} \pm \frac{C_p}{A}$$

$C_c$  peut être calculé théoriquement, les autres constantes sont déterminées expérimentalement à partir des masses de quatre noyaux.

On obtient les valeurs suivantes :

- $C_n = 0,0150$  uma
- $C_s = 0,0142$  "
- $C_c = 0,00063$  "
- $C_a = 0,020$  "
- $C_p = 0,145$  "

avec

- $M_n = 1,00898$
- $M_p = 1,00759$

On remarquera que pour A = constante, la section plane M(Z) est une parabole d'équation :

$$M(Z) = \alpha + \beta Z + \gamma Z^2$$

de sommet :  $-\frac{\beta}{2\gamma}$

si  $A$  est impair ( $E_p = 0$ ), et un ensemble de deux paraboles dans le cas contraire. Le sommet de ces paraboles correspond au maximum de stabilité. C'est à partir de cette propriété que Métropolis a déduit une forme analytique simple pour la courbe  $Z(A)$ .

## 2 - Le modèle des couches

Le modèle précédent ne rend pas compte de certaines propriétés statiques du noyau. L'existence de certains nombre "magiques" a suggéré l'idée de quantification, d'où le modèle des couches.

Contrairement au modèle précédent, on admet ici que les nucléons se déplacent indépendamment les uns des autres sous l'influence d'un potentiel commun qui provient de l'action globale de toutes les particules.

Il existe en fait plusieurs variantes de ce modèle qui diffèrent entre elles par la forme du puits de potentiel choisi.

Il existe une grande analogie entre ce modèle et la structure périnucléaire de l'atome. Comme les électrons de l'atome, les nucléons qui se trouvent sur des niveaux d'énergies voisines forment une couche. Les états énergétiques des nucléons sont caractérisés par des nombres quantiques : le nombre quantique principal  $n$ , le moment angulaire orbital  $l$  (la désignation  $s, p, d, f, \dots$  est conservée) et le moment de spin  $s$ . Les nucléons obéissent au principe d'exclusion de Pauli (cependant, un proton et un neutron peuvent avoir les mêmes nombres quantiques car ils diffèrent par leur charge). On a été contraint d'envisager une forte interaction entre le moment orbital et le moment de spin, ce qui entraîne qu'un niveau  $l$  se subdivise en deux sous-niveaux dont les moments angulaires totaux sont  $j = l \pm 1/2$ . Le tableau I-1 donne le remplissage successif des couches avec, entre parenthèses, le nombre de nucléons pour la saturation.

On voit apparaître dans ce tableau les nombres "magiques" 2, 8, 20, 50, 82, 126,...

Le modèle des couches présente cependant quelques lacunes. Il convient pour expliquer les propriétés statiques du noyau mais conduit cependant à des moments quadrupolaires anormalement élevés.

COUCHE	NIVEAUX	NOMBRE DANS LA COUCHE	NOMBRE TOTAL
I	1 $s_{1/2}$ (2) .	2	2
II	1 $p_{3/2}$ (4) , 1 $p_{1/2}$ (2) .	6	8
III	1 $d_{5/2}$ (6) 1 $d_{3/2}$ (4) , 2 $s_{1/2}$ (2) .	12	20
IV	1 $f_{7/2}$ (8) , 1 $f_{5/2}$ (6) , 2 $p_{3/2}$ (4) 2 $p_{1/2}$ (2) , 1 $g_{9/2}$ (10) .	30	50
V	1 $g_{7/2}$ (8) , 2 $d_{5/2}$ (6) , 2 $d_{3/2}$ (4) 3 $s_{1/2}$ (2) , 1 $h_{11/2}$ (12) .	32	82
VI	1 $h_{9/2}$ (10) , 2 $f_{7/2}$ (8) , 2 $f_{5/2}$ (6) 3 $p_{3/2}$ (4) , 3 $p_{1/2}$ (2) , 1 $i_{13/2}$ (14)	44	126
VII	1 $i_{11/2}$ (12) 2 $g_{9/2}$ (10) , 2 $g_{7/2}$ (8) .	58 ?	184 ?

Tableau I-1

3 - Le modèle unifié

Les modèles précédents semblent complètement différents et permettent cependant d'expliquer chacun certains aspects des propriétés du noyau. On considère aujourd'hui qu'il s'agit de deux modèles limites de la structure du noyau.

Des tentatives ont été faites pour combiner ces deux modèles, elles ont conduit au modèle unifié. Bohr et Mottelson (1) admettent que le noyau contient deux types de nucléons. Les nucléons intérieurs qui forment une goutte à mouvements collectifs et les nucléons extérieurs qui conservent leur individualité. Ces derniers exercent sur la surface des forces de pression qui la déforment. Ces auteurs ont montré qu'un noyau ayant perdu la symétrie sphérique, par déformation, effectue des mouvements de rotation et de vibration. Ces mouvements se manifestent par des moments quadrupolaires et des spectres de niveaux qui correspondent aux transitions entre états quantiques de rotation.

L'énergie de rotation pour les noyaux de nombre de masse pair est donnée par la même relation que celle des molécules diatomiques, soit :

$$E_{\text{rot}} = \frac{h^2}{2I} J(J+1)$$

L'état fondamental correspond à  $J = 0$ , les états excités à  $J = 2, 4, 6, \dots$ . Pour des nombres de masse impairs, l'énergie de rotation serait donnée par :

$$E_{\text{rot}} = \frac{h^2}{2I} [J(J+1) - J_0(J_0+1)]$$

$J_0$  : spin fondamental

$J = J_0 + 1, J_0 + 2, \dots$

Nous verrons que ces propriétés sont vérifiées par les spectres  $\alpha$ .

La théorie permet de prévoir dans quelle région (définie par le numéro atomique et le nombre de neutrons) les noyaux sont fortement déformés et prennent une forme sphéroïde.

Le schéma I-1 montre ainsi que les éléments transuraniens ( $Z > 92$  et  $N > 125$ ) ont des noyaux déformés.

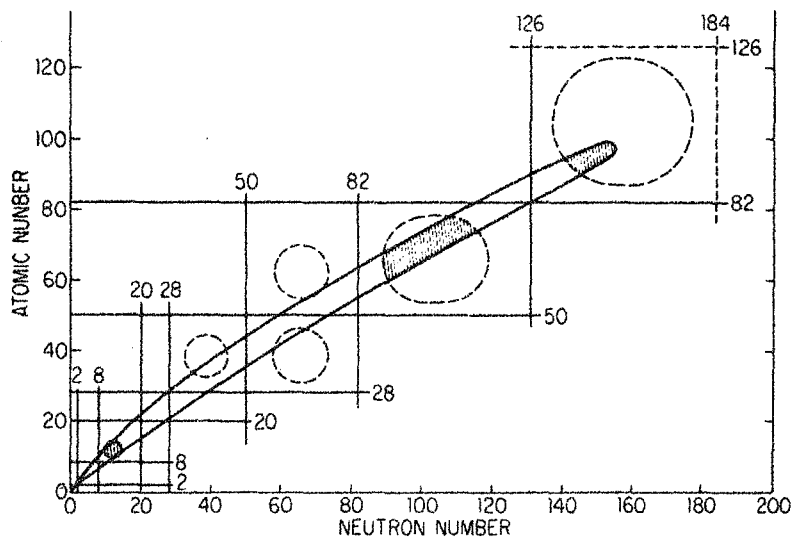


Fig. I-1

II - LA BARRIERE DE COULOMB POUR LES NOYAUX LOURDS

Pour arracher un proton ou un neutron et le transporter à l'infini, il est nécessaire de fournir une énergie de séparation  $S_p$  ou  $S_n$ . Le terme  $S_p$  contient une fraction due à l'interaction purement nucléaire  $S_n$  et une fraction  $S_c$  due à la répulsion coulombienne. On a ainsi :

$$S_p = S_n - S_c \approx S_n - \frac{Z-1}{r} e^2$$

Le tableau I-2 donne quelques valeurs pour  $S_n$  et  $S_p$ . On trouvera un tableau complet dans Hyde (3).

Isotope	$S_n$ (Mev)	$S_p$ (Mev)
$^{237}_{\text{Np}}$	6,70	5,01
$^{239}_{\text{Pu}}$	5,59	6,08
$^{242}_{\text{Am}}$	5,60	4,84
$^{242}_{\text{Cm}}$	6,99	5,41
$^{249}_{\text{Bk}}$	6,26	4,79
$^{250}_{\text{Cf}}$	6,60	5,93
$^{251}_{\text{Es}}$	6,68	3,95
$^{250}_{\text{Fm}}$	7,56	4,35

Tableau I-2

On voit d'après le tableau, que la différence  $S_n - S_p$  est de 2 à 3 Mev au maximum. Au contraire, le terme  $S_c$  est de l'ordre de 16 Mev. On pourra ainsi écrire :

$$S_n \neq S_p \quad \text{et} \quad S_v = S_n + S_c$$

Ainsi l'indépendance des charges n'est pas assurée, il faut plus d'énergie pour rompre les liens purement nucléaires d'un proton que pour vaincre ceux d'un neutron, l'excès étant compensé par la répulsion coulombienne.

Ainsi un proton intérieur au noyau devra posséder plus d'énergie qu'un neutron pour en sortir, de même en sens contraire pour y pénétrer. La barrière de potentiel ainsi mise en évidence existe pour tout fragment de noyau chargé électriquement (particules  $\alpha$  par exemple) et va jouer un rôle considérable dans de nombreuses réactions nucléaires. La hauteur de cette barrière sera de l'ordre de  $S_c$  et aussi proportionnelle au produit des charges. En fait nous verrons plus loin que cette barrière n'existe que pour les noyaux stables.

### III - INSTABILITE DYNAMIQUE

Ce phénomène correspond au partage d'un noyau en deux fragments B et C qui se séparent par répulsion électrostatique. Cette instabilité peut être mise en évidence par la courbe donnant l'énergie potentielle du système  $E_p$  en fonction de la distance  $r$  entre les fragments B et C. La courbe peut présenter quatre aspects (fig. I-2) suivant la nature du noyau initial et des fragments B et C.

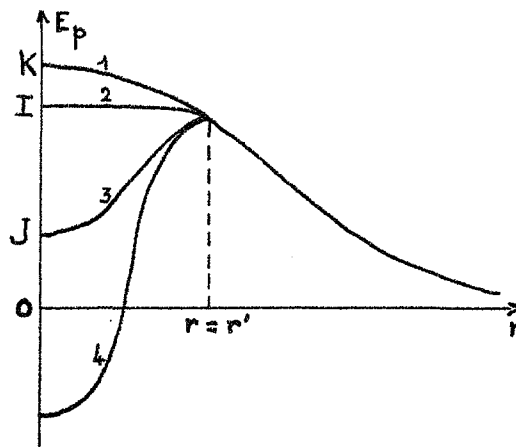


Fig. I-2



Si  $r$  diminue depuis l'infini,  $E_p$  augmente en  $1/r$  jusqu'au moment où les deux fragments sont en contact ( $r = r' = r_B + r_C$ ). Si  $r$  diminue encore pour conduire au noyau primitif A (caractérisé par  $r = 0$ ), quatre cas de figures se présentent :

- 1 - L'énergie potentielle continue de croître. Donc le noyau A ne peut pas exister et donnera spontanément B et C. L'ordonnée du point K indique l'énergie libérée par la scission.
- 2 - L'énergie potentielle reste sensiblement constante, le point I correspond ainsi au seuil de la scission spontanée.
- 3 - Le noyau est scissionnable avec une certaine énergie d'activation  $E_a = IJ$ . CJ représente l'énergie libérée par la scission  $E_d$ .
- 4 - Le noyau ne peut pas donner B et C, au contraire B et C donnent A car le noyau est plus stable que le système B + C.

En principe les fragments B et C peuvent être quelconques. En pratique on distinguera deux sortes de scission :

- la désintégration  $\alpha$  qui peut se comparer dans le modèle de la goutte liquide à l'évaporation de quelques molécules.
- la fission spontanée qui peut se comparer à la fragmentation de la goutte en deux gouttes de dimensions voisines.

#### A - Etude de la désintégration $\alpha$ des noyaux transuraniens

##### 1 - Energie de désintégration - Possibilité de désintégration pour les transuraniens

Pour qu'un élément soit le siège de la désintégration  $\alpha$ , il faut que l'énergie libérée par ce processus soit positive. Il convient donc de savoir évaluer cette énergie pour étudier son signe dans le cas des éléments transuraniens. Un calcul satisfaisant peut être effectué en utilisant la formule de la masse déduite de la théorie de la goutte liquide.

Désignons par  $L(\alpha)$ ,  $L(A, Z)$  et  $L(A-4, Z-2)$  les énergies de liaison des noyaux  $\alpha$ , de l'élément étudié  $(A, Z)$  et du noyau résiduel  $(A-4, Z-2)$ . L'énergie de désintégration sera donnée par :

$$E_d = L(\alpha) + L(A-4, Z-2) - L(A, Z) = L(\alpha) + \Delta L.$$

D'après la formule de Weizsäcker, l'énergie de liaison  $L(A, Z)$  est donnée par la relation :

$$L(A, Z) = C_n A - C_s A^{2/3} - C_c \frac{Z^2}{A^{1/3}} - C_a \frac{(A-2Z)^2}{A} \pm \frac{C_p}{A}$$

On peut remarquer tout de suite que le signe du dernier terme est le même pour  $L(A, Z)$  et  $L(A-4, Z-2)$ . La variation de  $A$  étant faible devant  $A$ , la différence de ce dernier terme avec celui correspondant au noyau résiduel pourra être négligée. On peut écrire :

$$dL = \frac{\partial L}{\partial Z} dZ + \frac{\partial L}{\partial A} dA.$$

En première approximation, si on confond les différentielles et les différences finies, on a :

$$\Delta L \approx \frac{\partial L}{\partial Z} \Delta Z + \frac{\partial L}{\partial A} \Delta A.$$

Dans la désintégration  $\alpha$  :  $\Delta Z = 2$  ,  $\Delta A = 4$ .

Soit :

$$\Delta L \approx 2 \frac{\partial L}{\partial Z} + 4 \frac{\partial L}{\partial A}.$$

L'énergie de liaison de la particule  $\alpha$  est de l'ordre de 28,3 Mev.

D'où :

$$E_d \approx 28,3 - 4 C_n + \frac{8}{3} C_s A^{-1/3} + 4 C_c \frac{Z}{A^{1/3}} \left(1 - \frac{Z}{3A}\right) - 4 C_a \left(1 - \frac{2Z}{A}\right)^2.$$

En remplaçant les coefficients  $C$  par leurs valeurs (voir plus haut), en se souvenant que  $1 \text{ uma} = 931,6 \text{ Mev}$ , on a établi le tableau I-3 (voir appendice) qui donne pour chaque valeur de  $A$  des éléments transuraniens les valeurs de  $E_d$  en fonction de la masse  $A$  de l'élément (la valeur expérimentale est donnée par la Fig. I-3).

La figure I-3 montre qu'effectivement  $\frac{\partial E_d}{\partial A}$  est négatif.

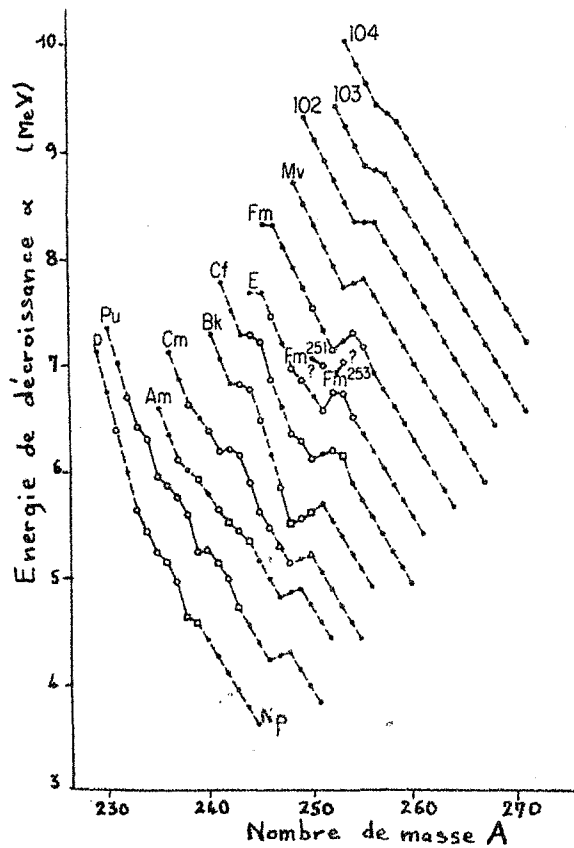


Fig. I-3

Toutes les valeurs de  $E_d$  étant positives, tous les transuraniens sont théoriquement susceptibles de donner la désintégration  $\alpha$ . Il se peut évidemment que cette émission soit masquée par une émission  $\beta$  plus rapide.

Le calcul précédent peut être appliqué à des particules autres que les hélions. Les résultats montrent que l'énergie  $E_d$  reste négative dans le cas d'émission des neutrons, des protons et des deutons, ce qui explique qu'on n'a pas de désintégration donnant ces particules à partir des noyaux à l'état énergétique fondamental.

Remarque : L'énergie emportée par les rayons  $\alpha$  ( $E_\alpha$ ) est différente de  $E_d$  par suite du recul du noyau. On montre facilement que :

$$E_d = E_\alpha \left(1 + \frac{m}{M}\right) \neq \frac{M}{M+m} E_\alpha$$

2 - La structure fine des spectres

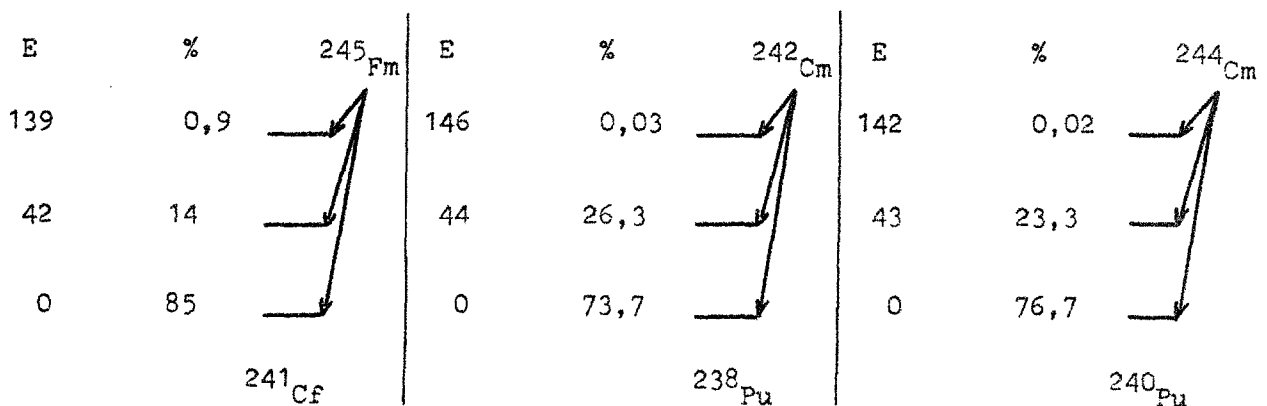
Nous avons admis, jusqu'à présent, que tous les rayons  $\alpha$  émis par des noyaux identiques possédaient la même énergie. Ceci n'est vrai que si les noyaux résiduels se retrouvent toujours dans le même état énergétique. Or ces noyaux possèdent plusieurs niveaux d'énergie possibles. Il se peut donc que l'émission  $\alpha$  conduise à un état excité par rapport à l'état fondamental. Les rayons  $\alpha$  émis par un élément présenteront donc un spectre énergétique (la détermination de ce spectre constitue d'ailleurs une méthode pour mesurer les niveaux d'énergie du noyau résiduel). Le retour du noyau résiduel à l'état fondamental se fait soit directement, soit indirectement par émission de rayons de fréquence  $\nu = \frac{\Delta E}{h}$ .

Nous verrons plus loin que la probabilité de désintégration croît rapidement avec  $E_\alpha$ , on doit en conclure que les émissions  $\alpha$  qui donnent un noyau à l'état fondamental devraient être les plus abondantes. En fait les résultats expérimentaux sont plus nuancés. On doit faire la distinction entre les noyaux émetteurs à nombre pair de nucléons et ceux à nombre impair.

a) Le noyau émetteur possède un nombre pair de nucléons

Dans ce cas, les résultats expérimentaux confirment la règle. On constate que le pourcentage des rayons  $\alpha$  émis est le plus important lorsque le noyau résiduel se trouve directement à l'état fondamental.

La figure I-4 groupe quelques spectres pour de tels noyaux. Les niveaux énergétiques sont des niveaux de rotation du noyau sphéroïde.



N. B. : On a fait figurer les transitions dont la proportion est supérieure à 0,01 %.

Fig. I-4

b) Le noyau émetteur possède un nombre impair de nucléons

On constate dans ce cas, contrairement à la règle théorique que les transitions entre états fondamentaux sont peu fréquentes par rapport à celles qui conduisent à un état excité. Le plus souvent la proportion est plus élevée pour le premier état excité mais ce n'est pas une règle absolue. La figure I-5 donne deux spectres pour de tels émetteurs.

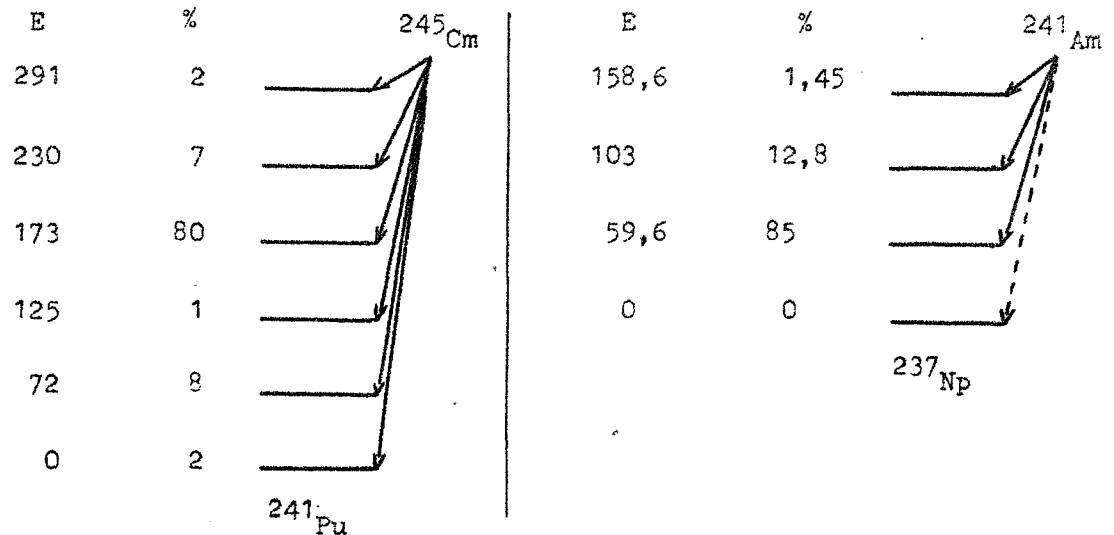


Fig. I-5

3 - La cinétique de désintégration  $\alpha$

Si on trace le logarithme de la période en fonction de l'inverse de la racine carrée de l'énergie de désintégration  $E_d$  pour chaque élément on obtient une série de droites presque parallèles (fig. I-6). On peut donc adopter la relation de Gallagher et Rasmussen (6)

$$\log T = \frac{A}{\sqrt{E_d}} + B.$$

La théorie de Gamow sur la désintégration  $\alpha$  permet de retrouver sensiblement ce résultat. Gamow (7, 9), sur la base de la mécanique ondulatoire, par introduction de l'effet tunnel, en supposant la particule  $\alpha$  préformée dans un noyau sphérique a établi une relation qui permet le calcul à priori de la constante de désintégration  $\lambda$ :

$$\ln \lambda = \ln \lambda_0 - \frac{8\pi Z' hc^2}{e^2 v_d} + \frac{8e}{h} \sqrt{\mu R' Z'}$$

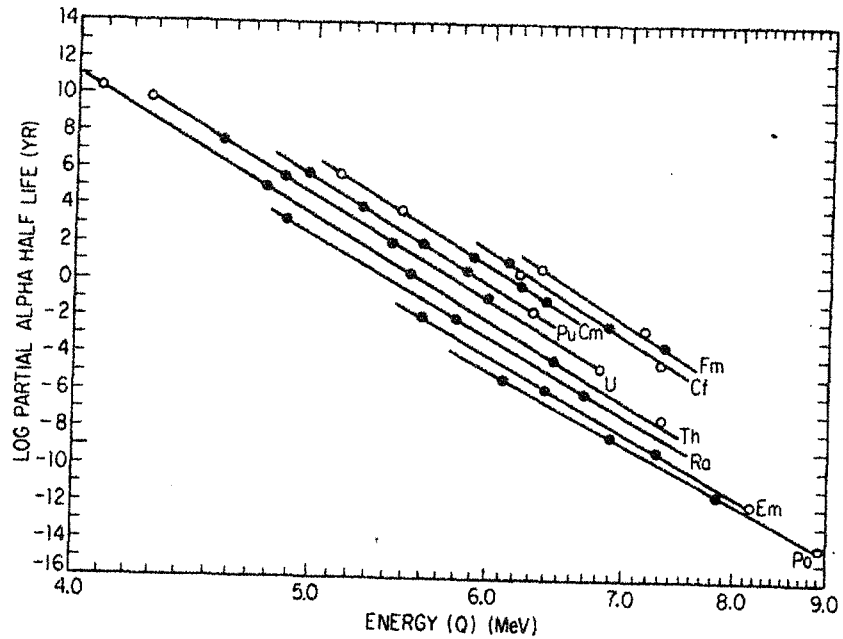


Fig. I-6

Dans cette relation,  $\lambda_0$  représente le nombre de tentatives faites par la particule pour sortir du noyau ; on admet une valeur sensiblement constante :

$$\lambda_0 \approx 10^{21}$$

- $Z'$  : charge du noyau résiduel
  - $v_d$  : vitesse d'une particule  $\alpha$  d'énergie  $E_d$
  - $R'$  : rayon du noyau résiduel
  - $\mu$  : masse du noyau  $\alpha$
- $e, c$  et  $h$  ont la signification habituelle.

L'application numérique conduit à la relation (en cgs).

$$\log \lambda \approx 21 - 1,2 \times 10^9 \frac{Z'}{v_d} + 4 \times 10^{16} \sqrt{R' Z'}$$

Or, on sait que :

$$v_d = \sqrt{\frac{2E_d}{\mu}}$$

et que la période est :  $T = \frac{\text{Ln}2}{\lambda} = \frac{0,69}{\lambda}$

d'où :

$$\log T = \frac{1,2 \times 10^9 Z' \sqrt{\frac{\mu}{2}}}{\sqrt{E_d}} + 4 \times 10^{16} \sqrt{R'Z'} + \log 0,69 - 21$$

en comparant avec la relation expérimentale on trouve :

$A = 1,2 \times 10^9 Z' \sqrt{\frac{\mu}{2}}$  : ne dépend que de  $Z'$  donc de la nature de l'élément émetteur.

$B = 4 \times 10^{16} \sqrt{R'Z'} + \log 0,69 - 21$  : ne dépend que de  $Z'$  et de  $R'$  qui est fonction du nombre de masse  $A'$  du noyau résiduel ( $R' = R_0 A'^{1/3}$ ).

Le tableau I-4 donne les valeurs de A et B expérimentales pour un certain nombre de noyaux transuraniens.

Elément	A exp.	B exp.
Fm	154,95	- 53,1337
Es	153,20	- 52,8607
Cf	151,45	- 52,587
Bk	151,22	- 52,9293
Cm	151,00	- 53,271
Am	147,89	- 52,4910
Pu	144,78	- 53,7110
Np	145,36	- 52,4124

Tableau I-4

Nous avons vu que la théorie de Gamow supposait le noyau sphérique, or les noyaux transuraniens sont déformés. L'introduction par Rasmussen <sup>(9)</sup> de la forme sphéroïde complique le problème car les barrières de potentiel sont alors anisotropes. Hyde <sup>(10)</sup> donne des résultats obtenus par la distribution de la probabilité de sortie d'une particule  $\alpha$  à travers une surface sphéroïde (fig. I-7).

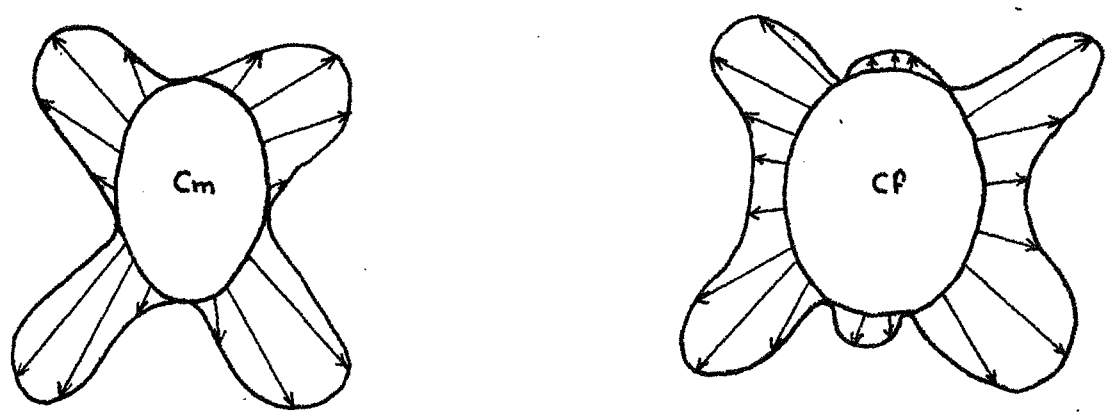


Fig. I-7

Les études entreprises dans ce sens ont permis de déduire les conclusions suivantes :

- le champ électrique quadripolaire joue un rôle important dans la détermination de l'abondance relative des différentes énergies .
- la surface de distribution des particules  $\alpha$  diffère profondément d'un noyau à l'autre ce qui semble indiquer que l'état énergétique des nucléons externes qui forment la particule  $\alpha$  jouent un rôle important.
- le modèle de la particule alpha préformée donne une distribution incorrecte des particules  $\alpha$  à la surface du noyau.

Hyde <sup>(10)</sup> donne la liste des études les plus importantes sur l'émission  $\alpha$  par les noyaux déformés.

B - Etude de la fission spontanée des transuraniens

Le phénomène de fission d'un noyau en deux noyaux de masses voisines est exoénergétique. L'ordre de grandeur de l'énergie disponible  $E_d$  peut être calculé par relation empirique :

$$E_d \approx \frac{A}{Z} M - 2 \frac{A/2}{Z/2} M$$

Comme dans toute instabilité dynamique, pour que la fission soit spontanée, il faut que l'énergie  $E_d$  soit supérieure à la hauteur de la barrière de potentiel  $E_p$ . On ne connaît que la limite supérieure de  $E_p$  (intersection de la



courbe en  $\frac{1}{r}$  et de la verticale d'abscisse  $r = 2 r'$  de la fig. I-2). Les valeurs de  $E_b$  et  $E_d$  ainsi déterminées varient avec le nombre de masse  $A$  comme le montre la figure I-8.

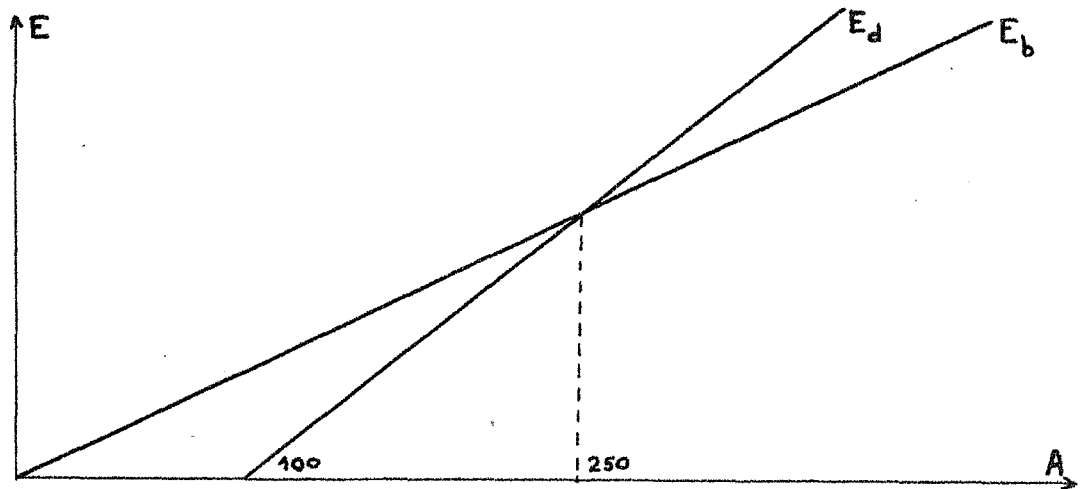


Fig. I-8

Pour que la fission soit spontanée, il est nécessaire que :

$$E_b < E_d$$

On constate que ceci se produit pour  $A > 250$  environ. Dans le cas contraire, la fission ne sera possible que si on fournit l'énergie d'activation :

$$E_a = E_b - E_d.$$

En fait, l'existence de l'effet tunnel permet de prévoir une probabilité de fission spontanée même si  $E_a$  est positif. Dans ce cas la fission sera caractérisée par une période analogue à celle de l'émission  $\alpha$ .

1 - Stabilité des noyaux lourds vis-à-vis de la fission spontanée

Bohr et Wheeler <sup>(11)</sup> ont étudié théoriquement à partir du modèle de la goutte liquide, le cas de la fission symétrique en supposant le noyau initial sphérique. Ce noyau est susceptible de se déformer progressivement par des

mouvements de vibration. La sphère initiale de rayon  $r_0$  se déformé pour donner un ellipsoïde de demi grand axe  $a$  et de demi petit axe  $b$ . Cet ellipsoïde peut être caractérisé par le paramètre  $\epsilon$  défini par :

$$a = r_0 (1 + \epsilon)$$

$$b = \frac{r_0}{(1 + \epsilon)^{1/2}}$$

Le volume de l'ellipsoïde ( $\frac{4}{3} \pi a b^2$ ) restant égal à celui de la sphère initiale ( $\frac{4}{3} \pi r_0^3$ ).

On montre que l'énergie superficielle d'un tel ellipsoïde est donné par :

$$E = 4 \pi r_0^2 T \left(1 + \frac{2\epsilon^2}{5} + \dots\right) = C_s A^{2/3} \left(1 + \frac{2\epsilon^2}{5} + \dots\right)$$

avec

$$C_s = 0,0142 \text{ u. m. a. } \approx 13,3 \text{ Mev}$$

Le terme correctif  $\epsilon^2$  étant positif, l'énergie superficielle augmente lors de la déformation.

L'énergie électrostatique d'un ellipsoïde présente une distribution de charge uniforme qui est :

$$E_c = \frac{3}{5} \frac{Z^2 e^2}{r_0} \left(1 - \frac{\epsilon^2}{5} \dots\right) = C_c \frac{Z^2}{A^{1/3}} \left(1 - \frac{\epsilon^2}{5} \dots\right)$$

Le terme correctif en  $\epsilon^2$  étant négatif, l'énergie électrostatique diminue quand la déformation augmente.

L'énergie de déformation s'écrira donc :

$$\Delta E = \frac{1}{5} \epsilon^2 \left(2 C_s A^{2/3} - C_c \frac{Z^2}{A^{1/3}}\right)$$

Pour de petites déformations on peut négliger les puissances supérieures de  $\epsilon$ . Le noyau ainsi déformé sera stable si  $\Delta E > 0$  et la condition sera donc :

$$2 C_s A^{2/3} - C_c \frac{Z^2}{A^{1/3}} > 0.$$

soit : 
$$\frac{2 C_s}{C_c} > \frac{Z^2}{A}$$

ou par application numérique :

$$\frac{Z^2}{A} < 45,1$$

(des valeurs un peu différentes de  $C_s$  et  $C_c$  conduisent à  $\frac{Z^2}{A} < 53$ )

Ainsi d'après ce modèle, tous les noyaux pour lesquels le rapport  $\frac{Z^2}{A}$  (appelé souvent paramètre de fission) est supérieur à 45 ne peuvent pas exister car ils subiraient instantanément la fission spontanée.

Si, pour les éléments connus, on trace  $\frac{Z^2}{A}$  en fonction de Z (fig. I-9) on constate que cette limite n'est pas atteinte. Par extrapolation, on voit que tous les noyaux pour lesquels Z est supérieur à environ 120 ne peuvent être fabriqués.

D'après Bohr et Wheeler, l'énergie d'activation de fission pour les noyaux lourds doit être de la forme :

$$E_a = C A^{2/3} f\left(\frac{Z^2}{A}\right)$$

avec  $f(1) = C$ . Le calcul de  $E_a$  se ramène à la détermination de la fonction  $f$  pour  $\frac{Z^2}{A} < 45$ .

Les résultats obtenus par Frankel et Metropolis <sup>(14)</sup> sur une machine électronique sont résumés sur la figure I-10.

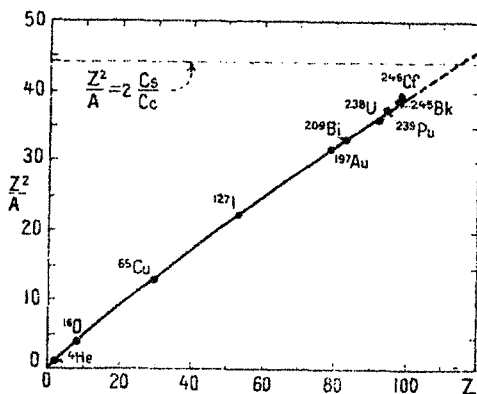


Fig. I-9

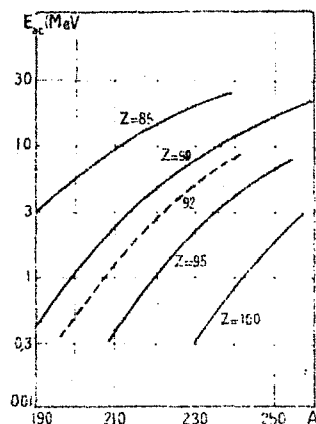


Fig. I-10

2 - Probabilité de fission spontanée

Les résultats obtenus dans la mesure des périodes de fission spontanée, des éléments transuraniens, montrent que cette période est extrêmement variable ( $10^{18}$  ans pour le Neptunium, environ 6 secondes pour le Nobelium). Seaborg <sup>(12)</sup> a montré que pour les noyaux pairs, pairs, la période de fission spontanée semble décroître quand  $\frac{Z^2}{A}$  augmente. Pour les noyaux à nombre impair de nucléons, la période serait plus importante. Huizenga <sup>(13)</sup> remarque que pour une valeur donnée de Z, la période passe par un maximum quand A varie. La figure I-11 donne le logarithme de la période en fonction de  $\frac{Z^2}{A}$ , on y trouve la loi de Huizenga et la droite de Seaborg. Il est intéressant de remarquer que par extrapolation de cette droite dans la région de fission spontanée (période  $\approx 10^{-20}$  sec) on obtient  $\frac{Z^2}{A} \approx 47$  en bon accord avec la valeur théorique de Bohr et Wheeler.

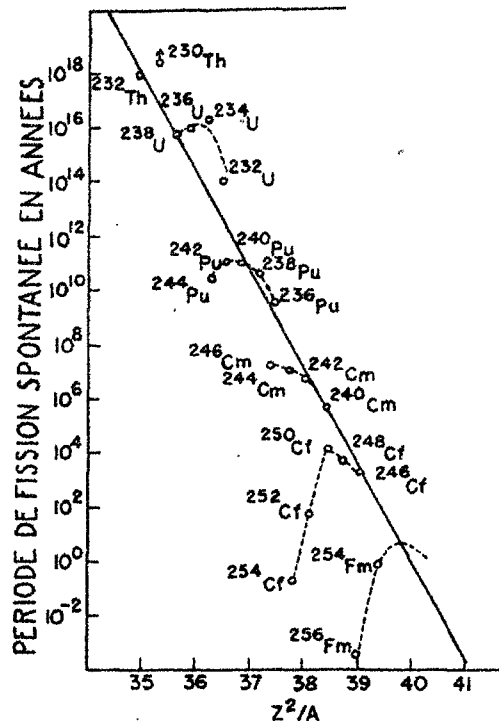


Fig. I-11

La droite a pour équation :

$$T = 10^{-21} \times 10^{178 - 3,75 \frac{Z^2}{A}}$$

Cette période est fonction de l'énergie d'activation nécessaire. Si on admet comme en cinétique chimique la relation :

$$T = k_1 e^{\frac{k_2 E_a}{2,3}}$$

il vient :

$$T = k_1 10^{\frac{k_2 E_a}{2,3}}$$

en parfait accord avec la relation expérimentale de Frankel et Metropolis (14) :

$$T = 10^{-21} \times 10^{7,85 E_a}$$

D'où on déduit la relation qui donne  $E_a$  :

$$E_a = 22,6 - 0,47 \frac{Z^2}{A} + \mathcal{E}$$

Le coefficient  $\mathcal{E}$  est introduit pour tenir compte des écarts dus à la parité :

$$\begin{aligned} \mathcal{E} &= 0 && \text{pour les noyaux pairs-pairs} \\ \mathcal{E} &= 0,4 && \text{" " " pairs-impairs} \\ \mathcal{E} &= 0,7 && \text{" " " impairs-impairs.} \end{aligned}$$

Si on néglige  $\mathcal{E}$ , on constate que  $E_a = 0$  si

$$\frac{Z^2}{A} = \frac{22,6}{0,47} = 48$$

A partir de la droite précédente il a été possible d'estimer la période des éléments très lourds. Ainsi la plus grande période de l'élément 104 serait de l'ordre de 1 seconde ; celle de l'élément 108 de l'ordre de 1  $\mu$ sec.

Ghiosso (15) a en outre remarqué que la période de fission semble diminuer brusquement lorsque le noyau contient plus de 152 neutrons.

Alors que pour les éléments légers, la probabilité de sortie du noyau d'une particule  $\alpha$  est nettement plus grande que celle de fission, il semble que cette règle se renverse pour les éléments très lourds. Ainsi le rapport  $\frac{\text{période fission}}{\text{période } \alpha}$  est de  $10^{11}$  pour l'uranium 234 et d'environ  $10^{-3}$  pour le

fermium 256. Studier et Huizenga <sup>(16)</sup> ont trouvé une relation entre le rapport précédent et le paramètre de fission  $\frac{Z^2}{A}$ . La figure I-12 montre que ce rapport diminue, et que les éléments qui diffèrent entre eux de deux unités de Z et de 6 unités de A sont sur une même droite. Ainsi il semble bien se confirmer que l'impossibilité d'obtenir des éléments très lourds soit imputable à la fission spontanée qui serait plus rapide que l'émission  $\alpha$ .

### 3 - Les produits de fission

Lors de la fission spontanée, le noyau lourd donne deux noyaux plus légers et des neutrons.

Les noyaux formés sont très variables ; on constate cependant que la probabilité de former certains noyaux est maximale lorsque ceux-ci ont des nombres de masse voisins de 100 et de 140.

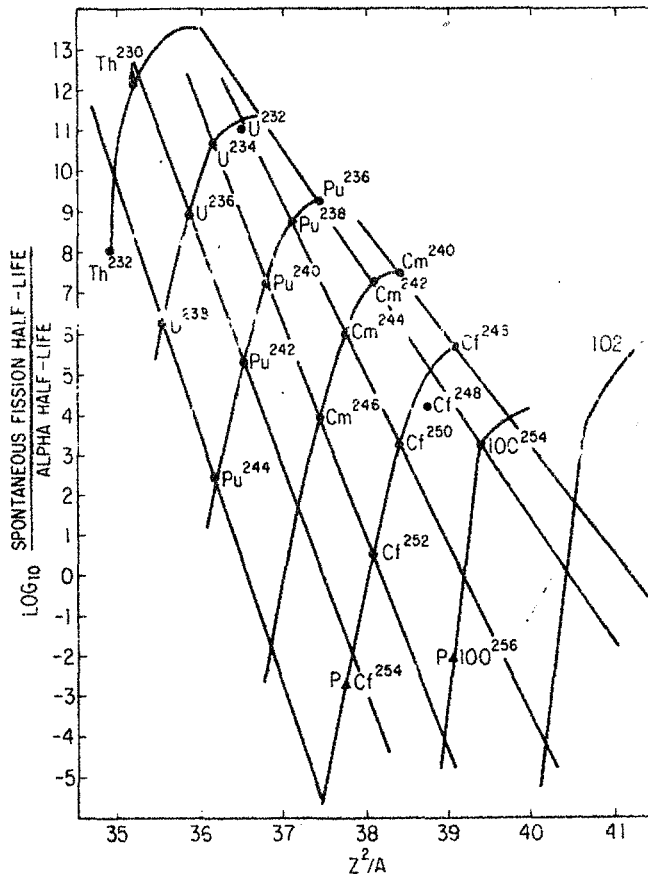


Fig. I-12

Il ne semble pas que le nombre moyen  $\bar{\nu}$  de neutrons émis soit relié à  $\frac{Z^2}{A}$  ou à l'énergie libérée  $E_d$ . La figure I-13 montre l'existence d'une relation linéaire entre  $\bar{\nu}$  et le nombre de masse A du noyau lourd.

En conclusion, la fission spontanée des éléments transuraniens est encore très mal connue au point de vue théorique malgré les succès de la théorie de Bohr et Wheeler. La plupart des travaux de synthèse consiste à examiner les relations entre les différents paramètres.

C - Décroissance  $\beta$  des éléments transuraniens

Nous avons vu, à partir de l'équation de masse du modèle de la goutte liquide, que, pour A constant, les noyaux de nombre de masse impairs se plaçaient sur une parabole, ceux de nombre de masse pairs sur deux paraboles.

Si on désigne par  $Z_A$  la valeur de Z qui correspond au minimum de la parabole, on peut toujours adopter pour l'équation de cette courbe l'expression :

$$M(Z, A) = M(Z_A, A) + \frac{1}{2} B_A (Z - Z_A)^2 + \begin{cases} 0 & \text{si } A \text{ impair} \\ -\frac{1}{2} \delta_A & \text{si } \begin{cases} A \text{ pair} \\ Z \text{ pair} \end{cases} \\ +\frac{1}{2} \delta_A & \text{si } \begin{cases} A \text{ pair} \\ Z \text{ impair} \end{cases} \end{cases}$$

Le coefficient  $B_A$  peut être soit calculé en fonction de A par l'équation de masse, soit déterminé expérimentalement.

L'énergie mise en jeu lors de la désintégration d'un noyau s'écrit :

$$E_\beta = M(Z, A) - M(Z+1, A) = B_A \left( |Z_A - Z| - \frac{1}{2} \right) \begin{cases} + 0 & A \text{ impair} \\ - \delta_A & \text{si } \begin{cases} A \text{ pair} \\ Z \text{ pair} \end{cases} \\ + \delta_A & \text{si } \begin{cases} A \text{ pair} \\ Z \text{ impair} \end{cases} \end{cases}$$

Le tracé de  $Z_A$  en fonction de A définit la ligne de stabilité  $\beta$ .

Glass, Thomson et Seaborg<sup>(17)</sup> ont appliqué les résultats précédents aux éléments lourds. Ils ont déterminé expérimentalement les valeurs des coefficients  $\delta_A$ ,  $B_A$  et  $Z_A$  pour ces éléments.

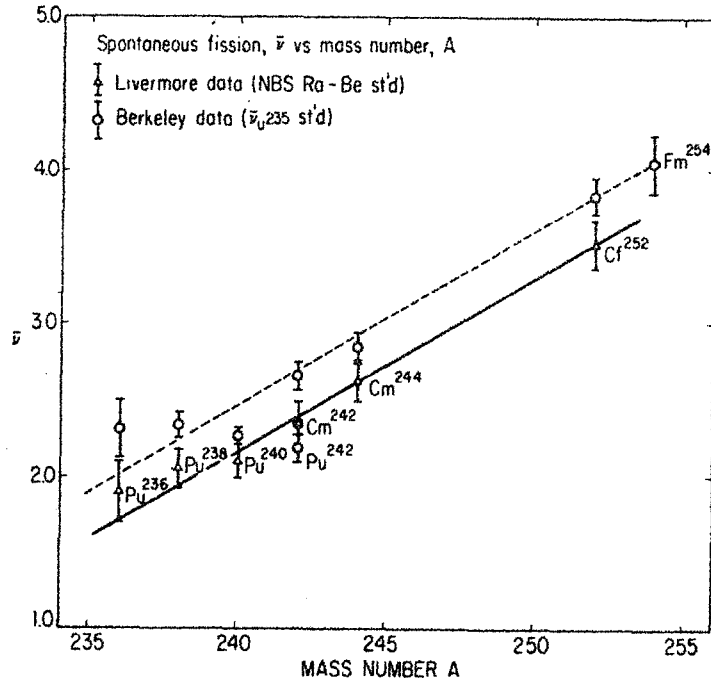


Fig. I-13

Les figures I-14, I-15 et I-16 comparent respectivement les valeurs de  $\delta_A$  pair (pour A pair),  $\delta_A$  impair,  $B_A$  et  $Z_A$  avec les valeurs théoriques déduites du modèle de la goutte liquide. A partir de ces courbes, on peut tracer les courbes analogues à celles de la figure I-17.

Dans le cas de noyaux de nombre de masse pair, la transition  $\beta$  implique le saut entre la parabole définie par N impair, Z impair et la parabole définie par N pair, Z pair. L'écart d'énergie entre ces deux courbes est assez important (de l'ordre de 1,5 Mev pour les éléments lourds (cf. fig. I-14) pour qu'il soit possible d'envisager plus d'un isobare stable. La figure I-17 montre l'exemple de deux isobares stables : Z+2 et Z+4.



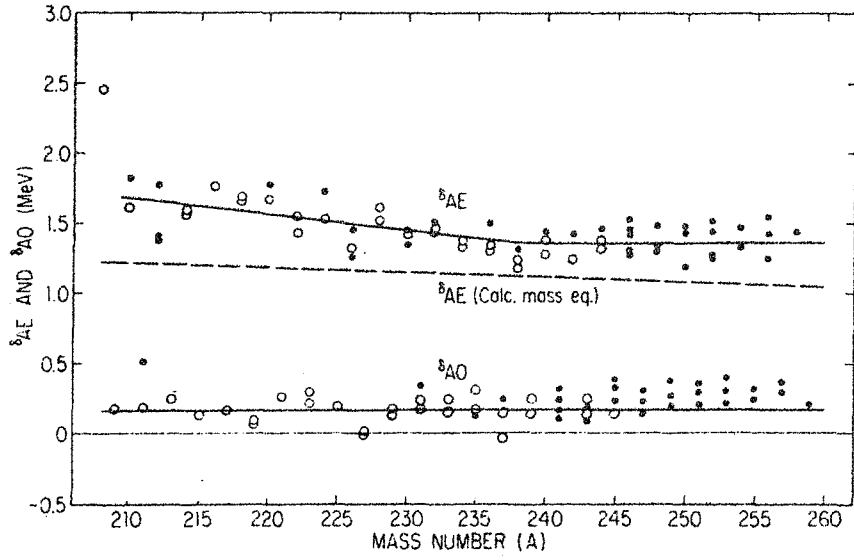


Fig. I-14

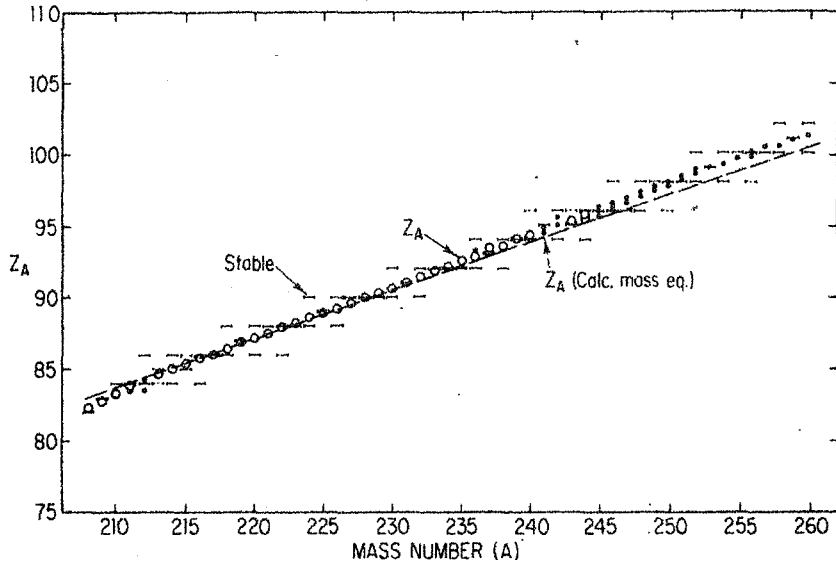


Fig. I-15

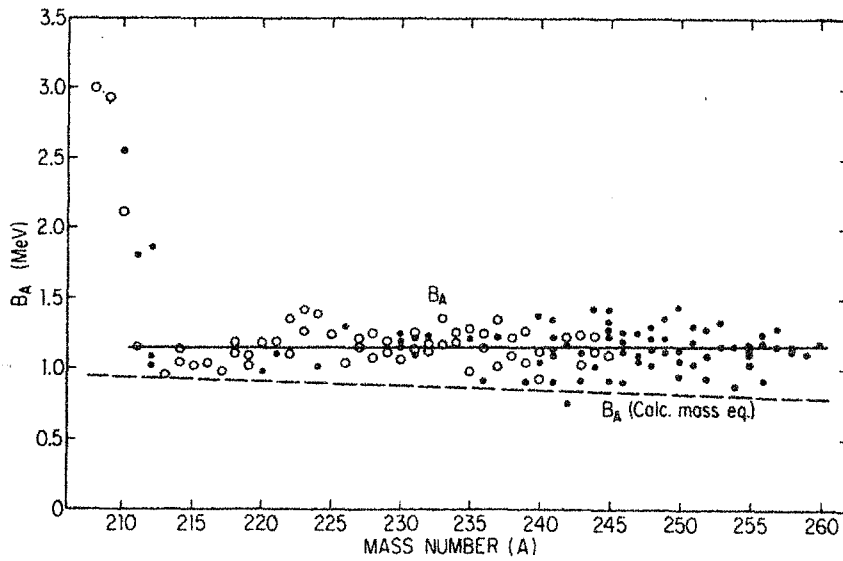


Fig. I-16

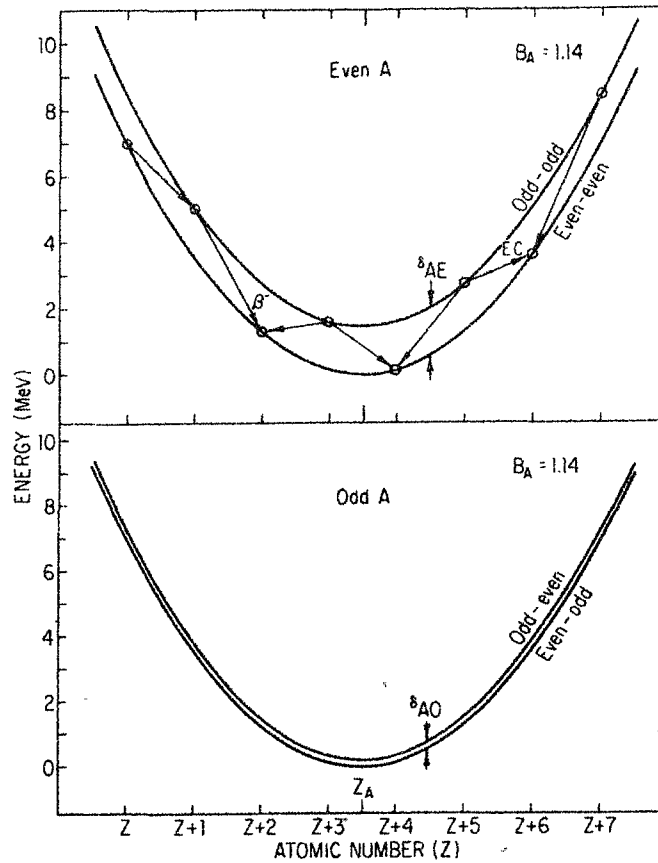


Fig. I-17

Dans le cas des noyaux de nombre de masse impair, contrairement à la théorie, on a été amené à introduire un coefficient  $\delta_A$  impair (la figure I-14 montre que  $\delta_A$  impair est légèrement différent de zéro). Les deux paraboles obtenues sont très proches l'une de l'autre (la fig. I-14 montre que la différence est d'environ 0,2 Mev). On ne peut donc pas, dans ce cas, envisager la possibilité de 2 isobares stables.

Il est ainsi possible de calculer l'énergie de désintégration  $\beta$ . Si  $Z_A - Z$  est négatif, cela signifie que le noyau  $(Z+1, A)$  donne le noyau  $(Z, A)$  par capture électronique.

Le tableau I-5 donne la liste des éléments transuraniens stables vis-à-vis de la désintégration  $\beta$ .

Elément	Z	Isotopes stables $\beta$
Np	93	237
Pu	94	236, 238, 239, 240, 242, 244
Am	95	241
Cm	96	240, 242, 243, 244, 245, 246, 248, 250
Bk	97	247
Cf	98	248, 249, 250, 251, 252, 254, 256
Es	99	253
Fm	100	252, 254, 255, 256, 257, 258, 260, 262
Md	101	259
Nb	102	(258) (260) (261) (262) (263) (264) (266)
Lw	103	(265)

Tableau I-5

Il résulte de ce tableau que pour Z impair, on ne connaît qu'un seul isotope stable, au contraire pour Z pair, le nombre d'isotope stable est important.

#### D - La place des transuraniens dans les familles radioactives naturelles

Avant la découverte des éléments transuraniens, on connaissait 3 familles naturelles de radioéléments, ces familles étaient désignées par :

- série  $4n$  : ou série du Thorium ;
- série  $4n + 2$  : ou série de l'uranium-Thorium ;
- série  $4n + 3$  : ou série de l'uranium-actinium.

Pour chacune de ces familles, le nombre de masse des noyaux est divisible par 4 avec un reste égal à 0, 2 ou 3. On constatait ainsi une lacune : la série  $4n + 1$ . C'est la découverte du 1er transuranien, le Neptunium 237, qui permit d'obtenir la série  $4n + 1$ . La découverte des autres éléments transuraniens a permis de compléter les 4 familles radioactives.

Le fait que la famille  $4n + 1$  n'ait pas été découverte dans la nature provient du phénomène suivant : l'élément le plus stable de cette série ( $^{237}\text{Np}$ ) a une période  $2,2 \times 10^6$  ans alors que pour les autres séries, l'élément le plus stable a une période de  $10^9$  ans au moins. L'âge de la terre a été évalué à  $3 \times 10^9$  ans, il en résulte que si les éléments transuraniens, et ceux de la famille  $4n + 1$ , existaient au moment de la formation de la terre (comme il est vraisemblable), ils ne peuvent qu'avoir disparu aujourd'hui.

#### IV - REACTIONS NUCLEAIRES DES ELEMENTS TRANSURANIENS

Nous excluons de ce paragraphe les réactions de fissions induites étudiées plus loin. Les différents types de réactions données par les éléments transuraniens seront envisagés dans le chapitre suivant sur l'obtention de ce noyau.

Nous avons vu qu'une des caractéristiques importantes des éléments transuraniens est l'existence d'une barrière de potentiel élevée vis-à-vis des particules chargées. Cette barrière entraîne des modifications sur la nature des réactions nucléaires dans lesquelles interviennent ces particules.

Un noyau composé formé à partir d'une cible lourde ne peut pratiquement pas émettre un ion. C'est ainsi que les réactions du type  $(n, \alpha)$  par exemple sont pratiquement impossibles. Cependant on connaît des réactions du type  $(d, p)$  par exemple.

Nous allons voir que l'explication du mécanisme de ces réactions est très différente et ne fait pas intervenir de noyau composé.

Lorsqu'un projectile chargé est lancé sur un noyau transuranien, trois types d'interactions sont possibles :

##### 1 - Réaction classique

La particule est captée par le noyau ; il y a formation d'un noyau composé qui se désexcite par des processus compétitifs ; le plus souvent en émettant un neutron (voir chapitre II).

##### 2 - Effet Oppenheimer Phillip (ou capture en vol)

L'ion projectile est déformé par le champ électrique créé par le noyau.

La première étape d'une telle réaction serait une scission du projectile en deux fragments, dont l'un est capté par le noyau, l'autre restant libre. Il est vraisemblable que la partie non capturée est fortement chargée. Par exemple dans le cas de la réaction  $^{237}\text{Np} (d, p) ^{238}\text{Np}$  on admet le mécanisme suivant :

- 1re étape :  $d \rightarrow p + n$  (au voisinage du noyau) ;
- 2e étape :  $^{237}\text{Np} + n \rightarrow ^{238}\text{Np}$

Ainsi, le proton émis n'a pas à franchir la barrière de potentiel du noyau cible.

### 3 - Excitation de la cible

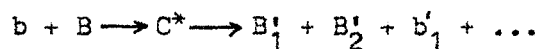
On sait que les noyaux transuraniens sont caractérisés par un moment quadrupolaire important. Lorsqu'un projectile chargé passe au voisinage d'un tel noyau, il peut se produire un effet électromagnétique dû à l'interréaction du quadrupole de la cible avec le champ électrique variable créé par l'ion en mouvement. On obtient ainsi un rayonnement  $\gamma$ .

## V - FISSION INDUITE DES NOYAUX TRANSURANIENS

Nous avons vu que pour fissionner un noyau, faiblement fissible par effet tunnel, il faut lui fournir une énergie d'activation, qui est de l'ordre de quelques MeV pour les éléments transuraniens, et qui obéit à la relation semi-empirique.

$$E_a = 22,6 - 0,47 \frac{Z^2}{A}$$

Le seul moyen pratique d'arriver à ce résultat est de passer par l'intermédiaire d'une réaction nucléaire. On cherche à obtenir le noyau à fissionner comme noyau composé excité  $C^*$  à partir d'une réaction appropriée. Le schéma de la fission sera donc :



On peut, au moins théoriquement, à partir de n'importe quel projectile  $b(n, p, d, \dots e, \gamma)$  provoquer la fission de n'importe quel élément transuraniens. Il suffit que le projectile ait l'énergie appropriée à la formation de  $C^*$  dans un état d'excitation suffisante.

Pratiquement on est limité dans les énergies possibles des projectiles et par conséquent dans leur choix. Si la fission par les neutrons est la plus importante, on a cependant réalisé des fissions par des particules chargées. Ainsi on a réalisé les fissions suivantes :  $^{237}\text{Np}$  par particule  $\alpha$ ,  $^{239}\text{Pu}$  par deutons,  $^{239}\text{Pu}$  par  $\alpha$ , etc...

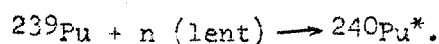
Si on désigne par  $E_{\text{ex}}$  l'énergie d'excitation de C, la fission sera possible si :

$$E_{\text{ex}} > E_a$$

Exemple :

fission de  $^{239}\text{Pu}$  par les neutrons lents.

La formation du noyau composé s'écrit :



Les masses des isotopes sont en U. M. A.

$$^{239}\text{Pu} = 239,1265$$

$$^{240}\text{Pu} = 240,1286$$

$$n = 1,00893$$

d'où :  $\Delta m = 0,00683$

et  $E_{\text{ex}} \text{ (MeV)} = 0,00683 \times 931 = 6,36 \text{ MeV.}$

comme  $A = 240$  et  $Z = 94$ , on peut calculer pour  $E_a$  :

$$E_a = 22,6 - 0,47 \frac{(94)^2}{240} = 5,3 \text{ MeV.}$$

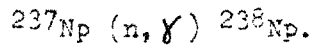
La fission du plutonium 239 induite par les neutrons lents est donc possible.

Dans le cas des neutrons lents, on note que l'énergie d'excitation  $E_{\text{ex}}$  est sensiblement égale à l'énergie de séparation pour le neutron (Sn) du noyau composé. Ainsi dans l'exemple précédent, on relève pour  $^{240}\text{Pu}$  :

$$\text{Sn} = 6,45 \text{ MeV} \neq 6,36 \text{ MeV.}$$

Le fait que les conditions énergétiques soient remplies n'implique pas que la fission soit le seul mode de distinction du noyau C\*.

Dans le cas général, la fission sera accompagnée de réactions nucléaires parasites. Il peut même se faire que la fission soit très désavantagée et soit à peine décelable. Ainsi, par exemple, dans le cas de la fission de  $^{237}\text{Np}$  par les neutrons lents, les conditions énergétiques sont satisfaites puisque  $E_{\text{ex}} \neq 5 \text{ MeV}$ , et  $E_a \neq 4,2 \text{ MeV}$ , cependant on constate que la section efficace de fission est seulement de 0,02 barn alors qu'elle est de 170 barns pour la réaction :



Aussi la fission induite par les neutrons lents est souvent très concurrencée par la capture radiative. On admet pratiquement qu'un noyau est fissible par les neutrons lents quand la section efficace correspondante ( $\sigma_f$ ) est supérieure à 1 barn.

Le tableau I-6 donne la liste des noyaux transuraniens ainsi fissibles :

Noyau d'origine	Noyau composé	$\sigma_f$
$^{234}\text{Np}$	$^{235}\text{Np}$	900
$^{236}\text{Np}$	$^{237}\text{Np}$	2 800
$^{238}\text{Np}$	$^{239}\text{Np}$	1 600
$^{236}\text{Pu}$	$^{237}\text{Pu}$	170
$^{238}\text{Pu}$	$^{239}\text{Pu}$	18
$^{239}\text{Pu}$	$^{240}\text{Pu}$	754
$^{240}\text{Pu}$	$^{241}\text{Pu}$	1
$^{241}\text{Pu}$	$^{242}\text{Pu}$	1 060
$^{241}\text{Am}$	$^{242}\text{Am}$	3
$^{242}\text{Am}$	$^{243}\text{Am}$	3 000

Tableau I-6

Noyau d'origine	Noyau composé	$\sigma_f$
$^{242}\text{Cm} ?$	$^{243}\text{Cm}$	5
$^{243}\text{Cm}$	$^{244}\text{Cm}$	500
$^{244}\text{Cm} ?$	$^{245}\text{Cm}$	?
$^{245}\text{Cm}$	$^{246}\text{Cm}$	2 000
$^{247}\text{Cm}$	$^{248}\text{Cm}$	35
$^{249}\text{Cf}$	$^{240}\text{Cf}$	1 730
$^{251}\text{Cf}$	$^{252}\text{Cf}$	3 000
$^{254}\text{Es}$	$^{255}\text{Es}$	2 000

Tableau I-6 (suite)

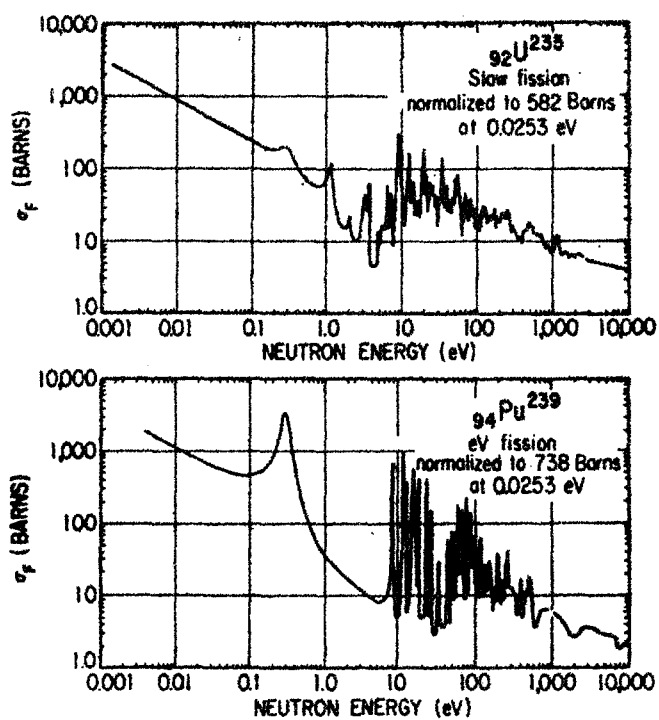


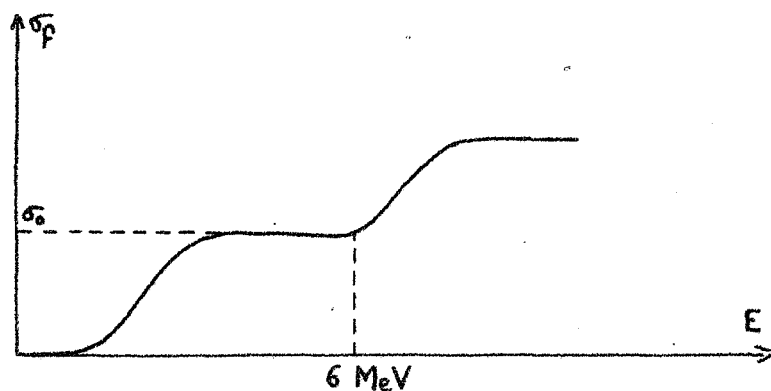
Fig. I-18



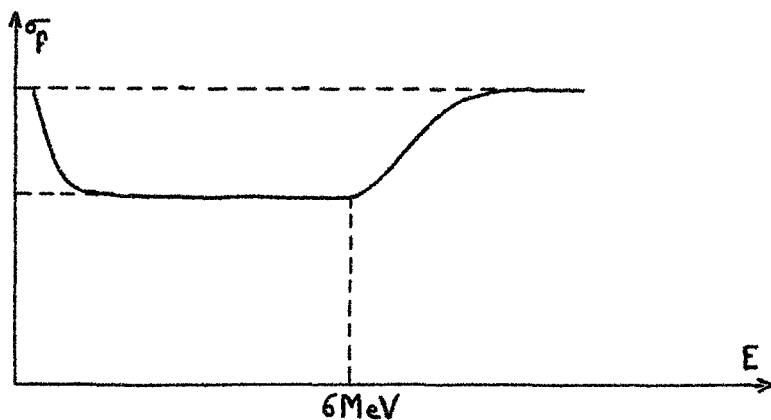
La section efficace de fission varie avec l'énergie des neutrons utilisés.

Dans la région des faibles énergies ( $\sim 1$  ev), la courbe donnant  $\sigma_f$  en fonction de l'énergie des neutrons apparaît comme la superposition d'une courbe décroissante (sensiblement en  $\frac{1}{v}$ ) et de pics de résonance qui correspondent à un niveau énergétique du noyau excité (fig. I-18 pour  $^{239}\text{Pu}$ ). On remarque que la courbe de section efficace de capture  $\sigma_c$  est analogue à la précédente et donne des pics de résonance pour les mêmes valeurs des énergies ; cependant le rapport  $\frac{\sigma_f}{\sigma_c}$  n'a pas la même valeur pour tous les pics de résonance.

Dans la région des fortes énergies (de l'ordre du MeV), la courbe présente deux types d'allures (fig. I-19).



a)



b)

Fig. I-19

a) Ce cas concerne les nucléides pour lesquels le noyau doit apporter une énergie suffisante pour que l'énergie d'excitation dépasse la valeur critique. La fission présente un seuil. Au-dessus du seuil, la fission augmente d'abord exponentiellement puis atteint une valeur limite  $\sigma_0$  sensiblement constante. Au-delà de 6 MeV,  $\sigma$  augmente à nouveau car apparaît la réaction compétitive (n, n'f) dans laquelle le neutron n' est émis par le noyau intermédiaire qui se coupe ensuite en deux fragments (Ex. :  $^{237}\text{Np} + n \rightarrow ^{238}\text{Np}^* \rightarrow n + ^{237}\text{Np} \rightarrow f$ ). On peut citer comme exemple de ce cas,  $^{238}\text{U}$ ,  $^{237}\text{Np}$ ,  $^{240}\text{Pu}$ ,  $^{241}\text{Am}$ .

b) Ce cas est celui des noyaux pour lesquels la section efficace  $\sigma_f$  est maximale pour les neutrons thermiques. Quand l'énergie des neutrons augmente,  $\sigma_f$  diminue et atteint une valeur constante de l'ordre du barn. La courbe croît ensuite pour la même raison que précédemment.

Lorsque l'énergie des neutrons continue de croître, le modèle du noyau composé de Bohr ne peut plus être appliqué et des phénomènes complexes interviennent.

En conclusion, les propriétés nucléaires des éléments transuraniens sont dominées par deux phénomènes fondamentaux : la barrière de potentiel élevée pour les particules chargées et l'énergie d'activation de fission faible.

PREPARATION DES ELEMENTS TRANSURANIENS

I - OBTENTION DES NOYAUX TRANSURANIENS

Etant donné leur instabilité, les noyaux des éléments transuraniens ne peuvent être obtenus que par l'intermédiaire de réactions nucléaires. En principe, toutes les réactions nucléaires pour lesquelles la masse du noyau final est voisine de celle du noyau initial peuvent être envisagées pour l'obtention des éléments transuraniens. A ces réactions, il faut ajouter les filiations naturelles des noyaux lourds, eux-mêmes préparés artificiellement.

On sait qu'en général les réactions nucléaires sont indépendantes de la forme chimique sous laquelle se trouve la cible. On aura tout de même intérêt, dans la mesure du possible, à utiliser des corps simples avec une pureté maximale, ceci afin d'éviter des absorptions d'énergie parasites, des réactions secondaires sur les autres éléments et aussi pour simplifier la séparation chimique du produit de la réaction.

La charge positive du noyau cible conduit à considérer deux catégories de projectiles suivant que ceux-ci sont chargés (positivement) ou non (neutrons).

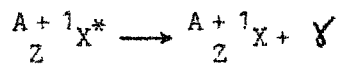
A - Synthèses par capture neutronique

Si on désigne par  ${}^A_Z X$  la cible, le noyau composé sera noté  ${}^{A+1}_Z X^*$  (l'astérisque indiquant que ce noyau est excité). Ce noyau composé apparaît donc comme un isotope excité de la cible.

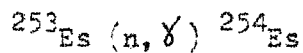
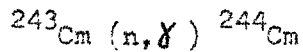
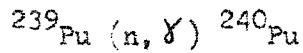
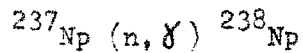
Ces réactions sont les plus courantes. Chaque fois que l'on désire transmuter une quantité importante d'un élément en un autre, la méthode d'irradiation par les neutrons dans un réacteur à haut flux est la seule facile à mettre en oeuvre.

1 - Capture radiative

La désexcitation se fait par émission de photons.



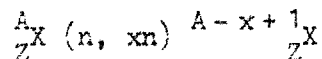
Citons comme exemples :



On obtient dans ce cas l'isotope de la cible qui a un nombre de masse supérieur de une unité.

## 2 - Réémission de neutrons

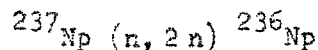
Les réactions de ce type s'écrivent :



Elles présentent un seuil énergétique qui est déterminé par l'énergie de fission des neutrons arrachés. Cette énergie est de l'ordre de 8 MeV par neutron pour les éléments transuraniens.

Le nombre de neutrons expulsés est le plus souvent égal à 1 ou 2. Dans le cas où  $x=1$ , le bilan global de la réaction est le même que lors d'une collision inélastique et ne donne aucune espèce différente de la cible. Dans le cas où  $x=2$  on obtient l'isotope de la cible de nombre de masse inférieur de une unité.

Exemple :



Dans le cas des noyaux transuraniens, il n'y a pas lieu de considérer une probabilité de désexcitation du noyau composé par évaporation de nucléons chargés (protons, particules  $\alpha$ ). En effet, la barrière de potentiel électrostatique créée par la charge positive du noyau est trop élevée pour pouvoir être franchie par des particules positives ; la probabilité correspondante est donc très faible.

Toutes les réactions de captures neutroniques sont fortement concurrencées par le processus de fission et ceci d'autant plus que le noyau est plus lourd. Cette question a été examinée plus en détail lors de l'étude des propriétés nucléaires (chapitre I).

En fait, même en excluant le processus de fission, on n'obtient jamais un élément pur. En effet, les produits primaires obtenus sont souvent aptes à réagir dans les mêmes conditions ou à se transformer par émission  $\beta^-$  en noyaux susceptibles de donner à leur tour la réaction de capture. Si le flux de neutrons, les sections efficaces de capture et le temps d'irradiation sont suffisants on peut obtenir des produits d'ordre élevé à des concentrations appréciables. Avec des flux de  $10^{14}$  neutrons/cm<sup>2</sup>/s, on arrive à obtenir des produits résultant de la capture de 15 neutrons.

La figure (II-1) (18) donne tous les produits obtenus lors de l'irradiation du Plutonium-239.

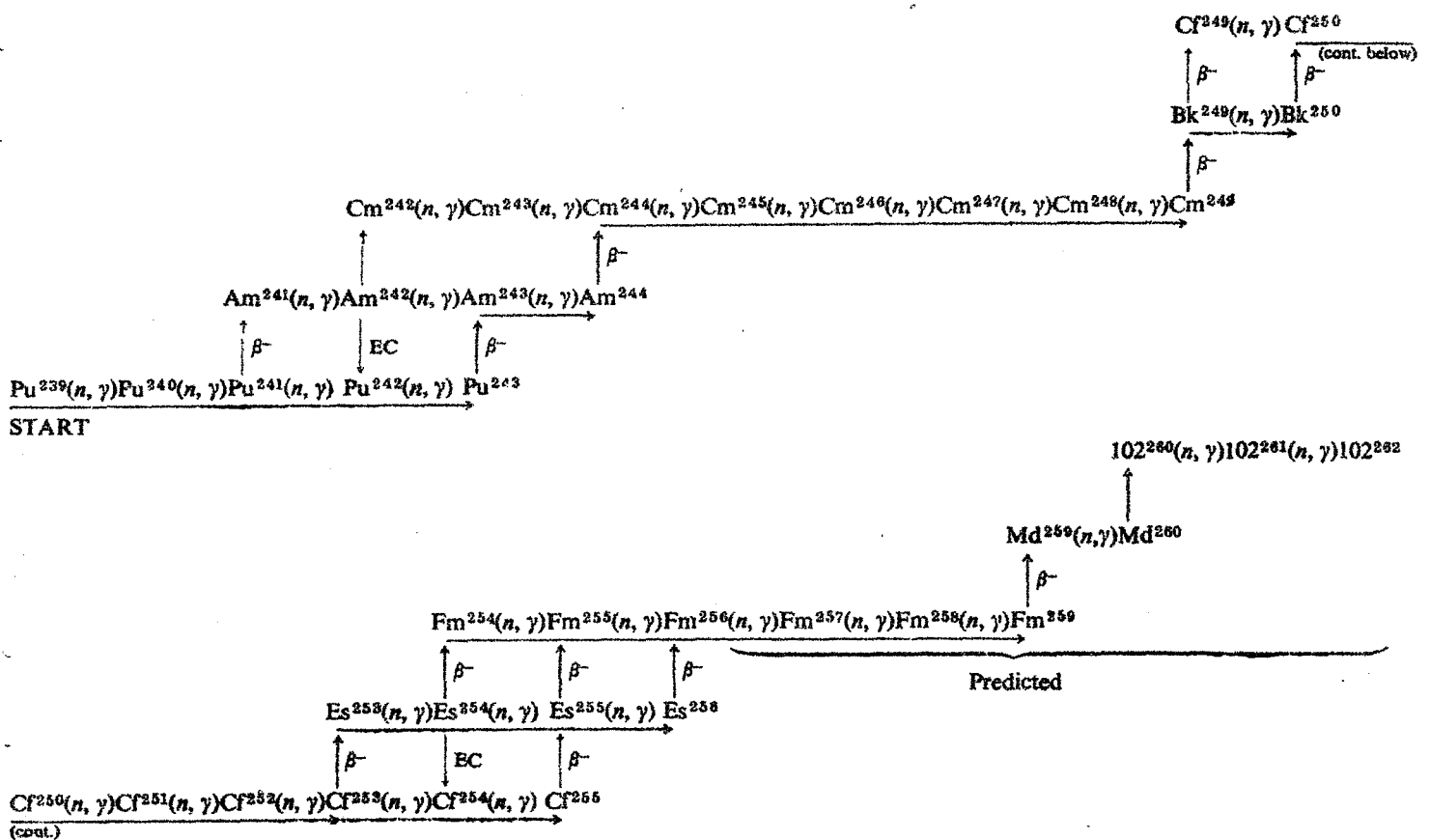


Fig. II-1

La figure (II-2) (19) donne les variations des quantités obtenues pour chaque espèce en fonction du temps d'irradiation.

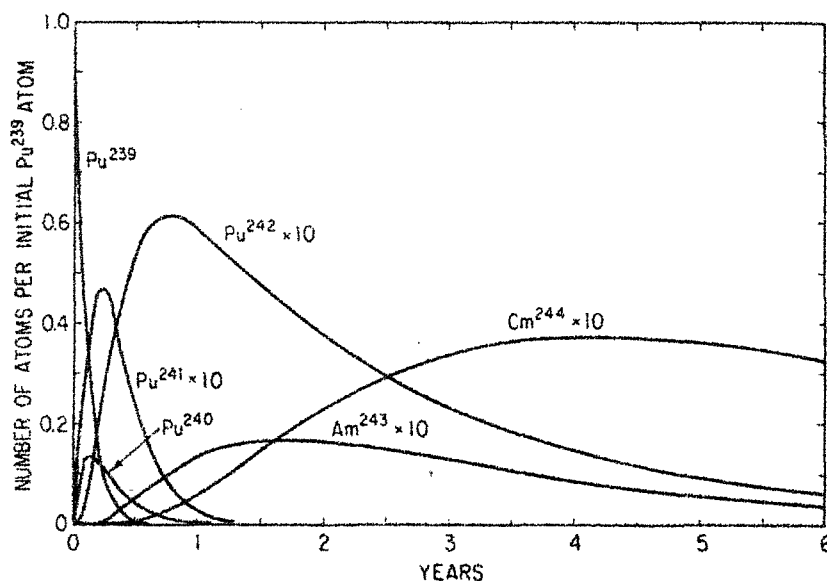


Fig. II-2

Il n'est pas nécessaire ou même désirable de partir du Plutonium-239. Il est fréquemment possible d'isoler un des produits intermédiaires, de le purifier et de le réintégrer dans le réacteur pour poursuivre la transformation.

Le réacteur HFIR (high flux isotope reactor) construit aux Etats-Unis pour la préparation des transuraniens permet la capture de 20 neutrons à cause de son très haut flux :  $5 \times 10^{15}$  neutrons/cm<sup>2</sup>/s. Dans ce réacteur, en un an, 100 g de Curium-244 permettent la production de 100 mg de Californium-252. En quelques années, on peut obtenir environ 1 g de Californium, 100 mg de Berkélium, 10 mg d'Einsteinium et 1 mg de Fermium.

#### B - Synthèse par réactions de particules chargées

Les projectiles chargés donnent avec les noyaux lourds trois types d'interaction (voit chapitre I, les propriétés nucléaires). Seules les deux premières permettent l'obtention d'éléments transuraniens nouveaux. Pour examiner les types de réactions utilisables, nous distinguerons les projectiles ioniques légers (protons, deutérons, hélions) des projectiles ioniques plus lourds. Cette distinction est imposée par les valeurs des énergies nécessaires dans les deux cas.

1) Synthèse par des ions légers à énergies modéréesa) Réactions avec formation de noyaux composés

Pour permettre la formation d'un noyau composé en bombardant une cible lourde par un ion léger, il est nécessaire que l'énergie du projectile soit suffisante pour qu'il puisse pénétrer à travers la barrière de potentiel électrostatique du noyau cible.

La hauteur de cette barrière peut être calculée par la relation simple :

$$E_b \text{ MeV} = \frac{Z_1 Z_2 e^2}{(R_1 + R_2) \times 1,6 \times 10^{-6}} = \frac{0,96 Z_1 Z_2}{A_1^{1/3} + A_2^{1/3}}$$

Dans cette expression,  $Z_1$  est la charge du projectile,  
 $Z_2$  celle de la cible,  
 $e$  est la charge de l'électron en ues

$R_i$  : rayon du noyau  $i$ , relié à son nombre de masse par la relation :

$$R_i = 1,5 \times 10^{-13} A_i^{1/3} \text{ cm}$$

Le tableau II-1 donne les valeurs de  $E_b$  pour différentes cibles et différents projectiles.

Cible	$E_b$ (MeV) Protons	$E_b$ (MeV) Deuteron	$E_b$ (MeV) Hélium
$^{239}\text{Pu}$	12,5	12,2	23,2
$^{249}\text{Bk}$	12,6	12,4	23,7
$^{250}\text{Cf}$	12,8	12,5	23,9
$^{252}\text{Fm}$	13,1	12,8	24,3

Tableau II-1

On voit que l'énergie d'excitation du noyau composé sera toujours élevée.

Dans la majorité des cas, le noyau composé se désexcite par émission  $\gamma$ , évaporation de neutrons ou par fission. La probabilité d'évaporation de particules chargées peut être négligée car ce processus est nettement défavorisé par suite de l'existence de la barrière de potentiel de sortie d'une particule chargée.

La section efficace, pour un projectile et une désactivation donnés, est fonction de l'énergie du projectile, de l'énergie  $Q$  de la réaction et du nombre de particules évaporées. Par exemple, dans le cas d'une réaction  $(p, xn)$ , la section efficace est donnée par la relation :

$$\sigma_{p, xn} = \sigma_{\text{comp.}}(E_0) \times P(E, x)$$

$\sigma_{\text{comp.}}(E_0)$  est la section efficace de formation du noyau composé par bombardement avec un proton d'énergie  $E_0$  ;

$P(E, x)$  (probabilité qu'a le noyau composé, excité à l'énergie  $E$ , d'évaporer  $x$  neutrons) est donnée par :

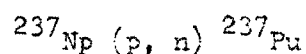
$$E = E_0 + Q$$

Cette probabilité doit tenir compte de l'effet de fission compétitive avec l'émission de neutrons.

Pour une réaction donnée, la section efficace est finalement une fonction de l'énergie  $E$  du projectile. La courbe II-3 donne dans le cas des réactions  $^{253}\text{U}(\alpha, xn)$  les courbes calculées qui sont en bon accord avec les courbes expérimentales.

La section efficace commence par croître quand  $E$  augmente puis passe par un maximum et diminue car la fission devient de plus en plus prépondérante. De toute façon, la section efficace maximale obtenue est de l'ordre de quelques millibarns alors qu'en l'absence de fission, on pourrait espérer des sections efficaces de l'ordre de quelques centaines de barns.

Malgré la faible section efficace, ces réactions ont été utilisées dans un certain nombre de cas. Citons par exemple :





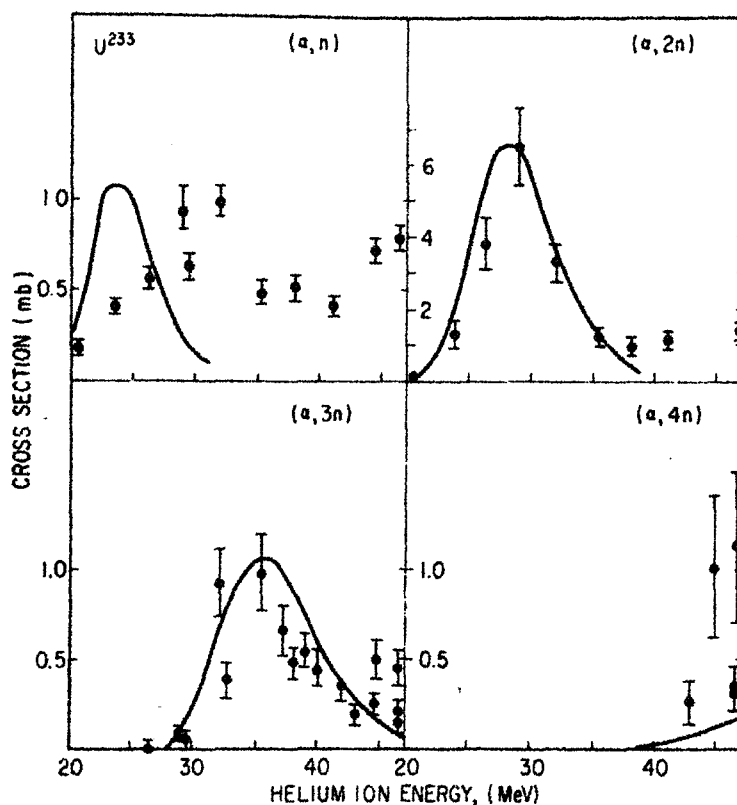


Fig. II-3

$^{238}\text{U} (\text{d}, 9\text{n})$        $^{231}\text{Np}$   
 $^{238}\text{U} (\text{d}, 2\text{n})$        $^{240}\text{Pu}$   
 $^{239}\text{Pu} (\alpha, 1 \text{ à } 5\text{n})$      $^{242} \text{ à } ^{238}\text{Cm}$

b) Réaction par rupture en vol

Lorsque l'énergie du projectile est suffisamment grande, les réactions de rupture en vol, qui ne font pas intervenir la formation préalable d'un noyau composé, deviennent de plus en plus importantes. Les sections efficaces de tels processus deviennent nettement plus importantes que celles du mécanisme classique de Bohr. La courbe II-4 donne l'allure de la section efficace de rupture en vol en fonction de l'énergie des hélions pour la réaction  $^{233}\text{U} (\alpha, p 2\text{n}) ^{234}\text{Np}$ .

On voit que pour une énergie de 40 Mev environ, la section efficace est de 10 mb, alors que la courbe II-3 donnait pour cette énergie de l'hélium dans la réaction  $^{233}\text{U} (\alpha, 3n) ^{234}\text{Pu}$  une section efficace de 0,5 mb environ, soit 20 fois plus faible.

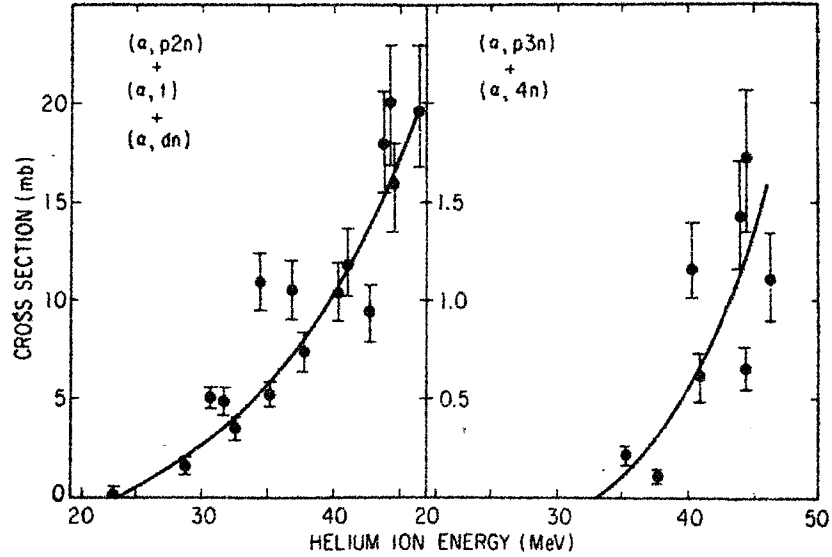
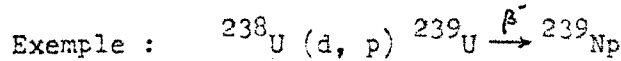


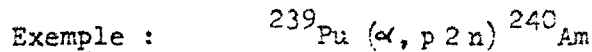
Fig. II-4

A partir des deutons et des hélions, trois sortes de réactions de rupture en vol sont utilisables pour l'obtention des noyaux transuraniens.

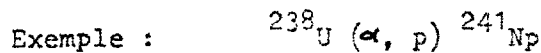
- Réactions d, p



- Réactions α, p x n



- Réactions α, p



2) Réactions provoquées par des ions "lourds"

Les ions pour lesquels le rapport charge/masse est voisin de celui des deuteronns et des hélions ( $\sim 1/2$ ) peuvent être accélérés dans un cyclotron. Cependant il est préférable d'utiliser des accélérateurs linéaires qui donnent un

flux de haute intensité et d'énergie bien définie. On a ainsi utilisé des ions "lourds" pour obtenir les noyaux transuraniens. Par exemple  $^{12}\text{C}^{6+}$ ,  $^{13}\text{C}^{6+}$ ,  $^{14}\text{N}^{6+}$ ,  $^{16}\text{O}^{6+}$ ,  $^9\text{Be}^{4+}$ ,  $^{20}\text{Ne}^{9+}$ ,  $^{22}\text{Ne}^{9+}$ .

L'énergie d'excitation est de l'ordre de 10 Mev par nucléon.

On retrouve avec ces ions les deux possibilités de réactions signalées avec les ions légers.

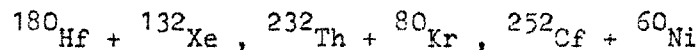
a) Réactions avec formation de noyau composé

Le noyau composé formé est caractérisé par un état énergétique élevé. La fission est le mode de désexcitation prédominant. La section efficace maximale de désexcitation par évaporation de neutrons est de l'ordre de 10 à 100  $\mu\text{b}$ . Le tableau II-2 donne quelques exemples de telles réactions avec la section efficace maximale et l'énergie correspondante du projectile.

Ghiosso et ses collaborateurs (20) envisagent l'extrapolation de cette méthode à l'obtention d'éléments de numéro atomique voisin de 126. Ils préconisent deux types de réactions :

- fusion suivie d'une fission de deux noyaux  $^{238}\text{U}$ .
- fusion complète suivie d'évaporation de neutrons.

Des calculs ont été faits dans le cas des réactions :



dans lesquelles l'élément le plus léger, accéléré avec une énergie de l'ordre de 6 Mev/nucléon, conduirait à des sections efficaces de l'ordre de 60 mb.

b) Réactions avec rupture en vol

Dans ce cas, le morceau de projectile qui n'est pas transféré dans le noyau garde une grande partie de l'énergie cinétique ce qui réduit l'état d'excitation du noyau et de ce fait diminue la probabilité de fission. La figure II-5 donne les sections efficaces en fonction de l'énergie du projectile pour quelques unes de ces réactions.

Ces courbes passent par un maximum, car pour les hautes énergies, la fission devient de plus en plus importante.

Réaction	Section efficace maximale	Energie de bombardement (MeV)
$^{232}\text{Th} (^{13}\text{C}, 5n) ^{240}\text{Cm}$	0,7 mb	
$^{232}\text{Th} (^{22}\text{Ne}, 4n) ^{250}\text{Fm}$	0,25 $\mu\text{b}$	105
	63 $\mu\text{b}$	69
$^{238}\text{U} (^{12}\text{C}, 4n) ^{246}\text{Cf}$	30 $\mu\text{b}$	68
	90 $\mu\text{b}$	74
$^{238}\text{U} (^{12}\text{C}, 5n) ^{245}\text{Cf}$	55 $\mu\text{b}$	75
$^{238}\text{U} (^{12}\text{C}, 6n) ^{244}\text{Cf}$	7 $\mu\text{b}$	84
$^{238}\text{U} (^{13}\text{C}, 5n) ^{246}\text{Cf}$	115 $\mu\text{b}$	78
$^{240}\text{Pu} (^{12}\text{C}, 4n) ^{248}\text{Fm}$	0,5 $\mu\text{b}$	70
$^{241}\text{Pu} (^{13}\text{C}, 4n) ^{250}\text{Fm}$	3 $\mu\text{b}$	
$^{242}\text{Pu} (^{12}\text{C}, 4n) ^{250}\text{Fm}$	7 $\mu\text{b}$	65
$^{246}\text{Cm} (^{12}\text{C}, 4n) ^{254}\text{No}$	0,6 $\mu\text{b}$	70
$^{237}\text{Np} (^{11}\text{B}, 4n) ^{244}\text{Cf}$	3 $\mu\text{b}$	50 - 55
$^{241}\text{Am} (^{11}\text{B}, 4n) ^{248}\text{Fm}$	0,9 $\mu\text{b}$	50 - 55
$^{243}\text{Am} (^{11}\text{B}, 4n) ^{250}\text{Fm}$	10 $\mu\text{b}$	50 - 55
$^{238}\text{U} (^{22}\text{Ne}, p3n) ^{256}\text{Md}$	0,002 $\mu\text{b}$	125 - 130
$^{238}\text{U} (^{16}\text{O}, 4n) ^{250}\text{Fm}$	1 $\mu\text{b}$	
$^{242}\text{Pu} (^{22}\text{Ne}, 4n) ^{260}_{104}$	0,0002 $\mu\text{b}$	114
$^{243}\text{Am} (^{15}\text{N}, 4n) ^{254}\text{No}$		82
$^{238}\text{U} (^{22}\text{Ne}, 6n) ^{254}\text{No}$		
$^{238}\text{U} (^{22}\text{Ne}, 4n) ^{256}\text{No}$	0,045 $\mu\text{b}$	112

Tableau II-2

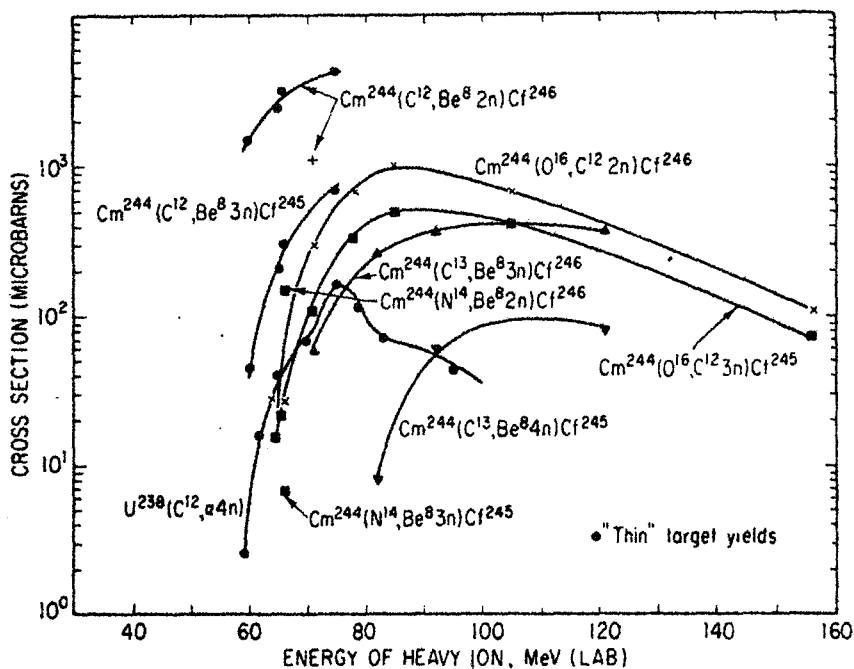


Fig. II-5

En résumé, ces réactions par ions "lourds" sont caractérisées par de très faibles sections efficaces qui résultent d'une concurrence sévère de la fission. Elles constituent cependant une méthode extrêmement intéressante car elles permettent de sauter plusieurs unités de nombre atomique et ainsi d'utiliser des cibles faciles à obtenir en assez grande quantité. Il semble que ce soit la seule méthode pour obtenir les derniers éléments de la classification périodique, ce qui réclamera des énergies pouvant atteindre 800 Mev.

On trouvera, en appendice, un tableau donnant pour chaque élément, les réactions nucléaires qui ont été utilisées pour son obtention.

## II - SEPARATION DES ELEMENTS TRANSURANIENS

On a vu que la préparation d'un élément transuraniens conduisait en fait à un mélange par suite de la concurrence entre plusieurs réactions et des rendements faibles. De plus ces éléments étant instables, ils subissent la fission spontanée et la désintégration  $\alpha$ . En définitive, même si la cible de départ est pure, on obtient un mélange contenant des atomes de la cible, des différents transuraniens, des éléments de masse atomique moyenne et des éléments lourds.

La plupart des éléments peuvent être éliminés par des réactions d'oxydo-réduction. Les uranides peuvent être séparés aussi par réaction rédox à des potentiels différents. Le véritable problème est double : séparation des curides et des lanthanides et séparation des curides entre eux.

#### A - Séparation des lanthanides et des curides

La méthode qui semble être la plus satisfaisante pour séparer les lanthanides des curides est basée sur les échanges ioniques à l'aide de résines cationiques ou anioniques suivis d'une élution par un produit convenable. Street et Seaborg (21) séparent les curides des lanthanides par échange sur la résine cationique "Dovex 50" (polystyrène sulfuré) suivi d'une élution avec une solution d'acide chlorhydrique 13 N à 20 % d'éthanol ou avec une solution de thiocyanate d'ammonium 1,8 N à 87°C.

On peut aussi fixer les curides sur la résine anionique Dovex 1 (copolymère du styrène et du divinylbenzène comportant des radicaux ammonium quaternaire) en solution dans le nitrate de lithium 8 M. On élue ensuite avec une solution de chlorure de lithium 10 N ou une solution d'acide chlorhydrique 13 N. Les lanthanides sont élués en tête.

#### B - Séparation des curides entre eux

Les séparations préliminaires et la purification finales peuvent varier d'un cas à l'autre. Mais en général les méthodes employées sont standardisées (21).

##### 1) Séparations préliminaires

La cible est en général mélangée avec de la poudre d'aluminium pour faciliter l'évacuation de la chaleur au cours de l'irradiation. Les produits irradiés sont traités par de la soude et du nitrate de sodium en solution. Les hydroxydes de transuraniens précipitent entraînant quelques impuretés notamment les lanthanides. Ce précipité est dissous dans l'acide chlorhydrique. On opère ensuite la séparation des lanthanides comme il est indiqué plus haut. Le fer peut être élué sur résine anionique en solution chlorhydrique.

## 2) Purification finale

La purification finale d'un élément peut se faire soit par échangeur d'ions soit par extraction à l'aide d'un solvant organique.

### a) Purification par échange d'ions

C'est la méthode la plus utilisée. On opère de préférence par élution à 87°C avec l'hydroxyisobutyrate d'ammonium sur Dovex 50 (22). La fig. II-6 donne l'ordre de passage des différents curides.

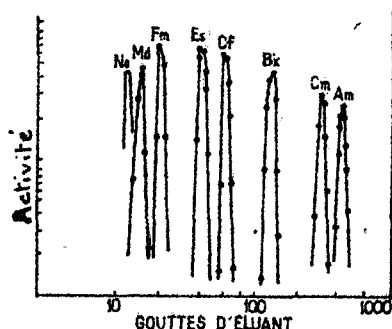


Fig. II-6

D'autres éluants tels que le citrate ou le lactate sont également utilisables, mais leur efficacité est moindre.

### b) Purification par solvants

Cette méthode est généralement moins utilisée pour séparer les curides entre eux. Les coefficients de partage varient peu en passant d'un élément à l'autre. La méthode par solvant est très intéressante pour séparer les curides trivalents des uranides à l'état hexavalent. Le principal solvant utilisé est le phosphate de tributyle (P. T. B.).

On voit que la complexité de la séparation des curides est voisine de celle de la séparation des lanthanides entre eux. A cette complexité chimique viennent s'ajouter des manipulations extrêmement dangereuses du fait des rayonnements  $\alpha$  très intenses émis par la plupart de ces noyaux et des émissions de neutrons provenant des fissions spontanées.

STRUCTURE ELECTRONIQUE ET PROPRIETES CHIMIQUES

Lorsqu'on examine la classification périodique, on constate qu'avec le Thorium ( $Z = 90$ ) doit commencer le remplissage de la sous-couche 5f (saturée à 14 électrons). Devant ce fait, plusieurs auteurs et en particulier Seaborg<sup>(24)</sup> ont postulé l'existence d'une famille chimique d'actinides analogues aux lanthanides. Cette homologie serait représentée par le tableau (III-1).

La	Ce	Pr	Nd	Pm	Sm	Eu	Gd	Tb	Dy	Ho	Er	Tm	Yb	Lu
Ac	Th	Pa	U	Np	Pu	Am	Cm	Bk	Cf	Es	Fm	Md	No	Lw

Tableau III-1

Ce résultat qui repose sur une hypothèse ne semble pas vérifié par les propriétés physiques et chimiques des éléments transuraniens.

La théorie de l'atome de Bohr n'est pas en état de prévoir exactement le nombre atomique de l'élément pour lequel le premier électron 5f doit faire son apparition. Il ne serait pas prudent de conclure à l'existence de  $(n-1)$  électrons 5f dans un atome de nombre atomique  $(Z-1)$  sous le seul prétexte que l'atome  $Z$  contient  $n$  électrons 5f. De même il n'est guère possible de déduire la configuration électronique d'un atome de celle de l'un de ses ions. Ces deux raisonnements sont d'autant plus hasardeux que la différence d'énergie entre deux niveaux est très faible comme c'est le cas entre les sous-couches 5f et 6d.

Il existe plusieurs méthodes qui permettent en principe d'attribuer à un élément donné une certaine configuration électronique. Mais toutes les méthodes comportent des interprétations douteuses, aussi est-il prudent de considérer les données fournies par le plus grand nombre possible de méthodes et d'essayer d'en déduire des conclusions cohérentes. Nous allons examiner les résultats obtenus dans le cas des éléments transuraniens.



Par le calcul, à l'aide d'une méthode due à Slater (25), Cap (26) a déterminé l'énergie totale des atomes neutres de  $Z = 90$  à  $Z = 98$  pour les deux configurations possibles : 5f et 6d. Les résultats (en ev), consignés dans le tableau III-2, montrent que la configuration la plus stable (c'est-à-dire celle pour laquelle l'énergie est minimale) est 6d pour les atomes jusqu'au plutonium inclus ( $Z = 94$ ), qu'elle est au contraire 5f à partir du curium ( $Z = 96$ ), tandis que les deux configurations ont sensiblement la même stabilité pour l'américium ( $Z = 95$ ) (La précision des valeurs calculées a été évaluée à 8 ev).

Elément	Configuration	Energie (ev)	$ \Delta E $
Th	$6s^2 p^6 d^2 7s^2$	- 652 439	17
	$5f 6s^2 p^6 d 7s^2$	- 652 422	
Pa	$6s^2 p^6 d^3 7s^2$	- 669 653	27
	$5f^2 6s^2 p^6 d 7s^2$	- 669 626	
U	$6s^2 p^6 d^4 7s^2$	- 687 780	14
	$5f^3 6s^2 p^6 d 7s^2$	- 687 756	
Np	$6s^2 p^6 d^5 7s^2$	- 707 725	26
	$5f^4 6s^2 p^6 d 7s^2$	- 707 699	
Pu	$6s^2 p^6 d^6 7s^2$	- 724 167	16
	$5f^5 6s^2 p^6 d 7s^2$	- 724 151	
Am	$6s^2 p^6 d^7 7s^2$	- 742 914	3
	$5f^6 6s^2 p^6 d 7s^2$	- 742 917	
Cm	$6s^2 p^6 d^8 7s^2$	- 762 349	28
	$5f^7 6s^2 p^6 d 7s^2$	- 762 377	

Tableau III-2

Par l'étude du spectre de résonance paramagnétique électronique Hubbs et Marrus <sup>(32)</sup> admettent pour le neptunium la structure  $7s^2, 6d^1, 5f^4$  sans cependant exclure totalement la configuration  $7s^2, 6d^3, 5f^2$ .

A partir de l'examen des rayons atomiques, Zachariasen <sup>(33)</sup> déduit que la présence d'électrons 5f dans l'uranium métal est exclue, le neptunium pourrait en compter un au maximum.

L'examen des courbes donnant la densité en fonction du numéro atomique montre une profonde différence entre les lanthanides (courbe pratiquement horizontale) et les actinides (courbe à maximum prononcé).

L'ensemble des résultats obtenus lors de la détermination des configurations électroniques permet de conclure que le curium et les éléments suivants ( $Z > 96$ ) ont une configuration  $6s^2, p^6, d, 7s^2, 5f^n$  ( $n = 7$  pour  $Z = 96$ , 8 pour  $Z = 97$  jusqu'à  $n = 14$  pour  $Z = 103$ ). D'où le nom de curides donné à ces éléments.

Les résultats sont moins nets pour les uranides (U, Np, Pu, Am). On constate de nombreuses contradictions. La configuration électronique dépend de l'état d'oxydation.

Il est cependant important de noter la différence de comportement des électrons 5f de ces éléments avec les électrons 4f des lanthanides. Ce comportement étant proche de celui des électrons d des éléments de transition.

Hafssinsky <sup>(34)</sup> exprime ce résultat de façon schématique en disant que "les configurations électroniques des uranides ont un caractère mixte 5f, 6d". Le tableau III-3 donne les configurations adoptées :

Élément	5 f	5 f - 6 d	6 d	7 s
Th			2	2
Pa		(2 ?)	1	2
U		3	1	2
Np		4	1	2
Pu		5	1	2
Am		7		2
Cm	7		1	2
Bk	8		1	2
Cf	9		1	2
Es	10		1	2
Fm	11		1	2
Md	12		1	2
No	13		1	2
Lw	14		1	2

Tableau III-3

La couche 5f étant complète à l'élément 103 (Lw), l'élément 104 doit posséder deux électrons d ( $6d^2$ ). Récemment <sup>(35)</sup> on a pu prouver à partir des propriétés du chlorure la similitude entre l'élément 104 et l'hafnium. On est donc conduit à la configuration (Tableau III-4) :

Elément	5 f	6 d	7 s
104	14	2	2

Tableau III-4

Les propriétés chimiques semblent confirmer les résultats du tableau III-3. En effet, si on compare les états d'oxydation des lanthanides et des actinides (Tableau III-5) on voit nettement que les éléments 92 (U), 93 (Np), 94 (Pu) et 95 (Am) se distinguent des autres par la multiplicité de leurs valences :

U 3, 4, 5, <u>6</u>	Np 3, 4, <u>5</u> , 6	Pu 3, <u>4</u> , 5, 6	Am <u>3</u> , 4, 5, 6	Cm 3	Bk <u>3</u> , 4	Cf 3
Nd 3	Pm 3	Sm 2, <u>3</u>	Eu 2, <u>3</u>	Gd 3	Tb <u>3</u> , 4	Dy 3
S 3	Fm 3	Md 3	No 3			
Ho 3	Er 3	Tm 3	Yb 2, <u>3</u>			

Tableau III-5

(Les valences les plus stables sont soulignées).

Ainsi au point de vue chimique l'analogie entre les lanthanides et les actinides n'apparaît qu'à partir du curium. Pour les uraniumes, le caractère 6d semble plus probable pour l'uranium (Valence 6 très stable) alors que le caractère 5f est plus probable pour l'américium (Valence 3 plus stable).

CONCLUSION

ET

RESUME GENERAL

Devant l'abondance bibliographique du sujet, notre travail avait surtout pour but de dégager les principales données actuelles concernant les éléments transuraniens.

Dans un premier chapitre, nous avons étudié les propriétés nucléaires de ces éléments. Pour faciliter la compréhension du sujet, nous avons été amenés à exposer quelques notions de physique nucléaire.

Le deuxième chapitre avait pour but de classer les réactions susceptibles de conduire aux noyaux transuraniens et de donner les grandes méthodes de séparation.

Le troisième chapitre étudie le problème de la position de ces éléments dans la classification périodique et l'étude des principaux états de valence.

Au point de vue pratique on ne saurait négliger l'importance du plutonium dans l'exploitation de l'énergie nucléaire ; la plupart des puissances mondiales possèdent ou construisent des usines permettant de préparer ces éléments en grande quantité. Parmi les autres éléments, on peut citer l'utilisation du Neptunium comme émetteur  $\alpha$  puissant et pratique à transporter.

Mais c'est surtout au point de vue théorique qu'il est important de savoir où s'arrêtera la liste des éléments transuraniens. La préparation d'éléments très lourds apportera certainement des données supplémentaires sur la structure du noyau et sur celle de l'atome.

---

Appendice I

Tableau I-3

Z	A	$\sqrt[3]{A}$	E	Z	A	$\sqrt[3]{A}$	E	
93	231	5,12	6,08	94	248	6,28	4,25	
	232	5,13	6,00		249	6,29	4,20	
	233	5,14	5,94		250	6,30	4,14	
	234	5,15	5,89		251	6,30	4,14	
	235	5,16	5,84		252	6,31	4,08	
	236	5,17	5,78		253	6,32	4,00	
	237	5,18	5,73		254	6,32	4,00	
	238	5,19	5,67		255	6,33	3,17	
	239	5,20	5,19		95	237	6,18	6,38
	240	5,21	5,10			238	6,19	5,33
	241	5,22	5,05			239	6,20	6,27
	242	5,23	4,99			240	6,21	6,19
	243	5,24	4,93			241	6,22	6,13
	244	5,25	4,88			242	6,23	6,08
	245	5,25	4,09			243	6,24	6,02
94	232	5,13	7,14	244		6,25	5,53	
	233	5,14	6,27	245		6,25	5,53	
	234	5,15	6,22	246		6,26	5,48	
	235	5,16	6,17	247		6,27	5,42	
	236	5,17	6,11	248		6,28	5,37	
	237	5,18	6,06	249		6,29	5,32	
	238	5,19	6,00	250		6,30	5,24	
	239	5,20	5,94	251		6,30	4,45	
	240	5,21	5,86	252	6,31	4,39		
	241	5,22	5,80	253	6,32	4,33		
	242	5,23	5,32	254	6,32	4,33		
	243	5,24	5,26	255	6,33	4,28		
	244	5,25	5,21	96	238	6,19	6,66	
	245	5,25	5,21		239	6,20	6,60	
	246	5,26	5,15		240	6,21	6,52	
247	5,27	5,09						

Z	A	$\sqrt[3]{A}$	E	Z	A	$\sqrt[3]{A}$	E	
96	241	6,22	6,46	98	248	6,28	6,76	
	242	6,23	6,41		249	6,29	6,71	
	243	6,24	6,35		250	6,30	6,65	
	244	6,25	6,29		251	6,30	6,65	
	245	6,25	6,29		252	6,31	6,17	
	246	6,26	6,23		253	6,32	6,11	
	247	6,27	5,75		254	6,32	6,11	
	248	6,28	5,70		255	6,33	6,05	
	249	6,29	5,65		99	245	6,25	7,28
	250	6,30	5,57			246	6,26	7,20
	251	6,30	5,57			247	6,27	7,14
	252	6,31	5,51			248	6,28	7,09
	253	6,32	4,66			249	6,29	7,04
	254	6,32	4,66			250	6,30	6,98
	255	6,33	4,60			251	6,30	6,98
97	243	6,24	6,68	252		6,31	6,90	
	244	6,25	6,62	253		6,32	6,84	
	245	6,25	6,62	254		6,32	6,44	
	246	6,26	6,56	255	6,33	6,38		
	247	6,27	6,48	256	6,34	6,32		
	248	6,28	6,44	100	248	6,28	7,42	
	249	6,29	5,97		249	6,29	7,37	
	250	6,30	5,89		250	6,30	7,29	
	251	6,30	5,89		251	6,30	7,29	
	252	6,31	5,84		252	6,31	7,23	
253	6,32	5,78	253		6,32	7,17		
254	6,32	5,78	254		6,32	7,17		
255	6,33	5,72	255		6,33	7,11		
98	244	6,25	6,95	256	6,34	7,06		
	245	6,25	6,95	101	255	6,33	7,44	
	246	6,26	6,87		256	6,34	7,35	
	247	6,27	6,81					

Z	A	$\sqrt[3]{A}$	E	Z	A	$\sqrt[3]{A}$	E
102	251	6,30	8,73	103	256	6,34	8,02
	252	6,31	7,89			257	6,35
	253	6,32	7,83	104	260	6,37	8,17
	254	6,32	7,83				
	255	6,33	7,75				
	256	6,34	7,69				

Appendice II

Eléments	Isotopes	Modes d'obtention
Neptunium	$^{231}\text{Np}$	$^{238}\text{U} (d, 9n) ; ^{235}\text{U} (d, 6n).$
	232	$^{233}\text{U} (d, 3n).$
	233	$^{235}\text{U} (d, 4n).$
	234	$^{233}\text{U} (d, 2n) ; ^{234}\text{U} (d, 3n).$
		$^{235}\text{U} (d, 3n).$
	235	$^{236}\text{U} (d, 4n) ; ^{235}\text{U} (\alpha, p 4 n) ; ^{231}\text{Pa} (\alpha, n) ;$
		$^{234}\text{U} (d, 2n) ; ^{233}\text{U} (d, n) ; ^{233}\text{U} (\alpha, p 2 n) ;$
		$^{235}\text{U} (p, 2n) ; ^{234}\text{Pu} \xrightarrow{\text{E.C}}$
	236	$^{235}\text{U} (d, 2n).$
		$^{235}\text{U} (\alpha, p 3 n) ; ^{233}\text{U} (\alpha, p n) ;$
		$^{235}\text{Pu} \xrightarrow{\text{E.C}} ; ^{239}\text{Am} \xrightarrow{\alpha} .$
	237	$^{238}\text{U} (d, 4n) ; ^{237}\text{Np} (n, 2n).$
		$^{235}\text{U} (d, n) ; ^{235}\text{U} (\alpha, p 2 n) ;$
	238	$^{237}\text{Np} (\alpha, \alpha n) ; ^{233}\text{U} (\alpha, p).$
$^{237}\text{U} \xrightarrow{\beta} .$		
239	$^{241}\text{Am} \xrightarrow{\alpha} .$	
	$^{238}\text{U} (d, 2n) ; ^{237}\text{Np} (n, \gamma) ;$	
	$^{238}\text{U} (\alpha, p 3 n) ; ^{235}\text{U} (\alpha, p).$	
240	$^{242}\text{Am} \xrightarrow{\alpha} .$	
	$^{239}\text{U} \xrightarrow{\beta} ; ^{238}\text{U} (\alpha, p 2 n) ; ^{238}\text{U} (d, n) ;$	
	$^{238}\text{Np} (n, \gamma).$	
241	$^{243}\text{Am} \xrightarrow{\alpha} .$	
	$^{238}\text{U} (\alpha, p n) ; ^{240}\text{U} \xrightarrow{\beta} ; ^{239}\text{Np} (n, \gamma).$	
242 - 245	$^{238}\text{U} (\alpha, p).$	
	débris thermonucléaires (1952)	



Eléments	Isotopes	Modes d'obtention
Plutonium	232	$^{235}\text{U} (\alpha, 7n) ; ^{233}\text{U} (\alpha, 5n).$
	233	$^{233}\text{U} (\alpha, 4n).$
	234	$^{235}\text{U} (\alpha, 5n) ; ^{233}\text{U} (\alpha, 3n) ; ^{238}\text{Cm} \xrightarrow{\alpha} .$
	235	$^{235}\text{U} (\alpha, 4n) ; ^{233}\text{U} (\alpha, 2n).$
	236	$^{238}\text{U} (\alpha, 6n) ; ^{235}\text{U} (d, n) ; ^{240}\text{Cm} \xrightarrow{\alpha} .$
		$^{235}\text{U} (\alpha, 3n) ; ^{237}\text{Np} (d, 3n) ; ^{237}\text{Np} (\alpha, p 4n) ;$ $^{233}\text{U} (\alpha, n) ; ^{236}\text{Am} \xrightarrow{\text{E.C}} .$ $^{236}\text{Np} \xrightarrow{\beta} .$
	237	$^{238}\text{U} (\alpha, 5n) ; ^{235}\text{U} (\alpha, 2n) ; ^{237}\text{Np} (p, n) ; ^{241}\text{Cm} \xrightarrow{\alpha}$ $^{237}\text{Np} (d, 2n).$
	238	$^{238}\text{U} (\alpha, 4n) ; ^{235}\text{U} (\alpha, n) ; ^{237}\text{Np} (d, n) ; ^{242}\text{Cm} \xrightarrow{\alpha}$ $^{238}\text{Am} \xrightarrow{\text{E.C}} ; ^{238}\text{Np} \xrightarrow{\beta} .$
	239	$^{238}\text{U} (\alpha, 3n) ; ^{239}\text{Np} \xrightarrow{\beta} ; ^{238}\text{Pu} (n, \gamma).$ $^{238}\text{U} (d, n) ; ^{238}\text{U} (\alpha, p 2n).$ $^{243}\text{Cm} \xrightarrow{\alpha} .$
	240	$^{239}\text{Pu} (n, \gamma) ; ^{238}\text{U} (\alpha, 2n) ; ^{240}\text{Np} \xrightarrow{\beta} ; ^{244}\text{Cm} \xrightarrow{\alpha}$ $^{240}\text{Am} \xrightarrow{\text{E.C}} .$
	241	$^{238}\text{U} (\alpha, n) ; ^{241}\text{Np} \xrightarrow{\beta} ; ^{240}\text{Pu} (n, \gamma).$ $^{245}\text{Cm} \xrightarrow{\alpha} .$
	242	$^{241}\text{Pu} (n, \gamma) ; ^{242}\text{Am} \xrightarrow{\text{E.C}} .$ $^{246}\text{Cm} \xrightarrow{\alpha} .$
	243	$^{242}\text{Pu} (n, \gamma).$
	244	$^{243}\text{Pu} (n, \gamma).$
		$^{244}\text{Np} \xrightarrow{\beta} ; ^{243}\text{Pu} (n, \gamma) ; ^{244}\text{Am} \xrightarrow{\text{E.C}} .$
	245	$^{244}\text{Pu} (n, \gamma).$

Eléments	Isotopes	Modes d'obtention
Plutonium	246	$^{245}\text{Pu} (n, \gamma)$ .
	247 - 255	débris thermonucléaires.
Américium	237	$^{239}\text{Pu} (d, 4n)$ .
	238	$^{239}\text{Pu} (d, 3n)$ ; $^{237}\text{Np} (\alpha, 3n)$ .
		$^{239}\text{Pu} (p, 2n)$ .
	239	$^{239}\text{Pu} (d, 2n)$ ; $^{237}\text{Np} (\alpha, 2n)$ .
		$^{239}\text{Pu} (p, n)$ ; $^{239}\text{Pu} (\alpha, p 3n)$ ; $^{239}\text{Cm} \xrightarrow{\text{E.C.}}$ ; $^{243}\text{Bk} \xrightarrow{\gamma}$
	240	$^{239}\text{Pu} (d, n)$ ; $^{237}\text{Np} (\alpha, n)$ ; $^{239}\text{Pu} (\alpha, p 2n)$ .
	241	$^{241}\text{Pu} \xrightarrow{\beta}$ ; $^{245}\text{Bk} \xrightarrow{\alpha}$ ; $^{241}\text{Cm} \xrightarrow{\text{E.C.}}$ .
	242	$^{241}\text{Am} (n, \gamma)$ ; $^{242\text{m}}\text{Am} \xrightarrow{\gamma}$ .
	243	$^{242}\text{Am} (n, \gamma)$ ; $^{243}\text{Pu} \xrightarrow{\beta}$ . $^{247}\text{Bk} \xrightarrow{\alpha}$ .
	244	$^{243}\text{Am} (n, \gamma)$ .
	245	$^{245}\text{Pu} \xrightarrow{\beta}$ .
	246	$^{246}\text{Pu} \xrightarrow{\beta}$ .
		247 - 255 débris thermonucléaires.
	Curium	238
		$^{238}\text{Pu} (\alpha, 4n)$ .
239		$^{239}\text{Pu} (\alpha, 4n)$ .
240		$^{239}\text{Pu} (\alpha, 3n)$ ; $^{232}\text{Th} (^{12}\text{C}, 4n)$ $^{244}\text{Cf} \xrightarrow{\alpha}$ ; $^{232}\text{Th} (^{13}\text{C}, 5n)$
241		$^{239}\text{Pu} (\alpha, 2n)$ .

Eléments	Isotopes	Modes d'obtention
Curium	242	$^{239}\text{Pu} (, n) ; ^{242}\text{Am} \xrightarrow{\beta} .$
		$^{241}\text{Am} (d, n) ; ^{246}\text{Cf} \xrightarrow{\alpha} .$
	243	$^{242}\text{Cm} (n, \gamma) .$
		$^{243}\text{Bk} \xrightarrow{\text{E.C}} .$
	244	$^{243}\text{Cm} (n, \gamma) ; ^{244}\text{Am} \xrightarrow{\beta} .$
	245	débris thermonucléaires
		$^{245}\text{Bk} \xrightarrow{\text{E.C}} .$
	246	$^{245}\text{Cm} (n, \gamma) ; \text{Pu} + n .$
		$^{246}\text{Bk} \xrightarrow{\text{E.C}} ; ^{250}\text{Cf} \xrightarrow{\alpha} ; ^{246}\text{Am} \xrightarrow{\beta} .$
	247	débris thermonucléaires. $^{246}\text{Cm} (n, \gamma) .$
Californium	248	$^{247}\text{Cm} (n, \gamma) ; ^{252}\text{Cf} \xrightarrow{\alpha} .$
	249	$^{248}\text{Cm} (n, \gamma) .$
	250	
	↓	débris thermonucléaires.
	255	
	252	$^{251}\text{Cf} (n, \gamma) .$
	253	$^{252}\text{Cf} (n, \gamma) .$
	254	$^{253}\text{Cf} (n, \gamma) ; ^{254}\text{Es} \xrightarrow{\text{C.E}} .$
	255	débris thermonucléaires.
	Einsteinium	245
246		$^{238}\text{U} (^{14}\text{N}, 6n) .$
247		(rien).
248		$^{249}\text{Cf} (d, 3n) .$
249		$^{249}\text{Bk} (\alpha, 4n) ; ^{249}\text{Cf} (d, 2n) .$
		$^{249}\text{Cf} (\alpha, p 3n) .$

Eléments	Isotopes	Modes d'obtention
Einsteinium	250	$^{249}\text{Bk} (\alpha, 3n) ; ^{249}\text{Cf} (\alpha, p 2n) .$ $^{249}\text{Cf} (d, n) ; ^{249}\text{Cf} (\alpha, t) ; ^{250}\text{Fm} \xrightarrow{\text{E.C}} .$
	251	$^{249}\text{Bk} (\alpha, 2n) .$
	252	$^{249}\text{Bk} (\alpha, n) .$
	253	$\text{U} + n ; \text{Pu} + n .$ $^{253}\text{Cf} \xrightarrow{\beta} ; ^{253}\text{Fm} \xrightarrow{\text{E.C}} .$
	254	$^{253}\text{Es} (n, \gamma) ; \text{Pu} + n .$
	255	$\text{U} + n ; \text{Pu} + n .$ $^{254}\text{Es} (n, \gamma) .$
	256	$^{255}\text{Es} (n, \gamma) .$
	Fermium	248
249		$\text{U} + ^{16}\text{O} .$
250		$^{238}\text{U} (^{16}\text{O}, 4n) ; ^{249-252}\text{Cf} (\alpha, xn) ; ^{242}\text{Pu} (^{12}\text{C}, \dots) .$ $^{244}\text{Cm} (^{16}\text{O}, \dots) ; ^{241}\text{Pu} (^{13}\text{C}, 4n) .$
251		$^{254}\text{No} \xrightarrow{\alpha} .$
252		$^{249}\text{Cf} (\alpha, 2n) .$ $^{249-252}\text{Cf} (\alpha, xn) ; ^{250}\text{Cf} (^9\text{Be}, \alpha 3n) .$
253		$^{256}\text{No} \xrightarrow{\alpha} .$
254		$^{252}\text{Cf} (\alpha, 3n) .$
255		$^{252}\text{Cf} (^9\text{Be}, \alpha 3n) ; ^{254\text{m}}\text{Es} \xrightarrow{\beta} .$ $^{252}\text{Cf} (^9\text{Be}, \alpha 2n) ; \text{débris thermonucléaires} .$
Berkélium	243	$^{255}\text{Es} \xrightarrow{\beta} ; ^{254}\text{Fm} (n, \dots) .$ $^{241}\text{Am} (\alpha, 2n) ; ^{238}\text{U} (^{14}\text{N}, \alpha 5n) .$

Eléments	Isotopes	Modes d'obtention
Berkélium	243	$^{243}\text{Am} (\alpha, 4n) ; ^{242}\text{Cm} (d, n) ; ^{244}\text{Cm} (d, 3n).$
	244	$^{241}\text{Am} (\alpha, n) ; ^{238}\text{U} (^{14}\text{N}, \alpha 4n).$
		$^{243}\text{Am} (\alpha, 3n).$
	245	$^{243}\text{Am} (\alpha, 2n) ; ^{238}\text{U} (^{14}\text{N}, \alpha 3n).$
		$^{242}\text{Cm} (\alpha, p) ; ^{244}\text{Cm} (d, n).$
	246	$^{243}\text{Am} (\alpha, n) ; ^{244}\text{Cm} (\alpha, pn).$
	247	$^{247}\text{Cf} \xrightarrow{\text{C.E}} .$
		$^{244}\text{Cm} (\alpha, p) ; ^{246}\text{Cm} (\alpha, 3p) ; ^{245}\text{Cm} (\alpha, 2p).$
	248	$^{247}\text{Bk} (n, \gamma) ; ^{245}\text{Cm} (\alpha, p).$
		$^{252}\text{Es} \xrightarrow{\alpha} .$
	249	$^{249}\text{Cm} \xrightarrow{\beta} .$
	$^{253}\text{Es} \xrightarrow{\alpha} .$	
250	$^{249}\text{Bk} (n, \gamma).$	
	$^{254}\text{Es} \xrightarrow{\alpha} .$	
	251 - 255	débris thermonucléaires.
Californium	244	$^{238}\text{U} (^{12}\text{C}, 6n) ; ^{239}\text{Pu} (^9\text{Be}, 4n) ; ^{242}\text{Cm} (\alpha, 2n).$
		$^{244}\text{Cm} (\alpha, 4n) ; ^{248}\text{Fm} \xrightarrow{\alpha} .$
	245	$^{238}\text{U} (^{12}\text{C}, 5n) ; ^{242}\text{Cm} (\alpha, n) ; ^{244}\text{Cm} (\alpha, 3n) ;$ $^{239}\text{Pu} (^9\text{Be}, 3n).$
	246	$^{238}\text{U} (^{12}\text{C}, 4n) ; ^{238}\text{U} (^{14}\text{N}, p 5n) ; ^{244}\text{Cm} (\alpha, 2n).$
		$^{243}\text{Cm} (\alpha, n) ; ^{246}\text{Es} \xrightarrow{\text{E.C}} .$
	247	$^{238}\text{U} (^{14}\text{N}, p 4n) ; ^{244}\text{Cm} (\alpha, n).$
248	$^{238}\text{U} (^{14}\text{N}, p 3n) ; ^{245}\text{Cm} (\alpha, n).$	
	$^{246}\text{Cm} (\alpha, 2n) ; ^{247}\text{Cm} (\alpha, 3n) ; ^{248}\text{Cm} (\alpha, 4n) ;$	

Eléments	Isotopes	Modes d'obtention	
Californium	248	$^{248}\text{Bk} \xrightarrow{\beta}$ ; $^{248}\text{Es} \xrightarrow{\text{E.C}}$ ; $^{252}\text{Fm} \xrightarrow{\alpha}$ .	
	249	$^{249}\text{Bk} \xrightarrow{\beta}$ .	
	250	$^{250}\text{Bk} \xrightarrow{\beta}$ ; $^{249}\text{Cf} (n, \gamma)$ .	
		$^{249}\text{Bk} (d, n)$ ; $^{247}\text{Cm} (\alpha, n)$ ; $^{248}\text{Cm} (\alpha, 2n)$ ;	
		$^{254}\text{Fm} \xrightarrow{\alpha}$ .	
	251	$^{250}\text{Cf} (n, \gamma)$ . $^{255}\text{Fm} \xrightarrow{\alpha}$ .	
Fermium	256	$^{252}\text{Cf} (^9\text{Be}, \alpha n)$ ; $^{253}\text{Es} (\alpha, p)$ ; $^{256}\text{Es} \xrightarrow{\beta}$ . $^{256}\text{Md} \xrightarrow{\text{E.C}}$ .	
	Mendelevium	255	$^{253}\text{Es} (d, 2n)$ . $^{253}\text{Es} (\alpha, 2n)$ .
256		$^{253}\text{Es} (\alpha, n)$ .	
Nobelium		251	$^{244}\text{Cm} (^{13}\text{C}, 6n)$ .
	253	$^{244}\text{Cm} (^{13}\text{C}, 4n)$ . $^{241}\text{Pu} (^{16}\text{O}, 4n)$ . $^{246}\text{Cm} (^{12}\text{C}, 5n)$ .	
	254	$^{246}\text{Cm} (^{12}\text{C}, 4n)$ ; $^{246}\text{Cm} (^{13}\text{C}, 5n)$ . $^{238}\text{U} (^{22}\text{Ne}, 6n)$ . $^{243}\text{Am} (^{15}\text{N}, 4n)$ .	
	255 ?	Cf + C ?	
	256	$^{238}\text{U} (^{22}\text{Ne}, 4n)$ . $^{242}\text{Pu} (^{18}\text{O}, \dots)$ .	
	Lawrencium	256	$^{246}\text{Cm} (^{14}\text{N}, 4n)$ .
		257 ?	Cf + B ?

## BIBLIOGRAPHIE

- ( 1 ) Mc MILLAN - ABELSON : Phys. Rev. 57 (1940) 1185.
- ( 2 ) SEABORG - Mc MILLAN - KENNEDY - WAHL : Phys. Rev. 69 (1946) 366.
- ( 3 ) HYDE - PERLMAN - SEABORG : The nuclear properties of the heavy elements : I. Systematics of nuclear structure and Radioactivity. Prentice-Hall New Jersey 1964, p. 46.
- ( 4 ) RAMARAO : Indian J. Phys. 39 (1965) 505.
- ( 5 ) DZHELEPOV - IVANOV - NEDOVESOV - CHECHEV : Zh. Eksperim. i Jeor. Fiz. 45 (1963) 1360.
- ( 6 ) HYDE - PERLMAN - SEABORG (Cf. ref. 3), p. 255.
- ( 7 ) BAYET : Physique nucléaire. Masson, Paris 1960.
- ( 8 ) Cf. ref. 3, p. 241.
- ( 9 ) Cf. ref. 3, p. 300.
- ( 10 ) Cf. ref. 3, p. 299.
- ( 11 ) BOHR - WHEELER, d'après HYDE.
- ( 12 ) SEABORG : Phys. Rev. 85 (1952) 157.
- ( 13 ) HUIZENGA : Phys. Rev. 94 (1954) 158.
- ( 14 ) FRANKEL - METROPOLIS : Phys. Rev. 72 (1947) 914.
- ( 15 ) GHIOSSO : Proceeding of the international conference on the peaceful uses of the atomic energy United Nations. New-York 1956.
- ( 16 ) HUIZENGA - STUDIER : Phys. Rev. 96 (1954) 545.
- ( 17 ) GLASS - THOMSON - SEABORG : J. inorg and Nucl. chem. 1 (1955) 3.
- ( 18 ) Cf. ref. 3, p. 364.
- ( 19 ) Cf. ref. 3, p. 365.
- ( 20 ) SIKKELAND - CLERKSON - LEBECK - GHIOSSO : Inorg. Nucl. chem. Letters 2 (1966) 141.
- ( 21 ) STREET - SEABORG : J. A. C. S. 72 (1950) 2790.

- (22) THOMSON - MUGA : 2e conférence de Genève 1958, p. 825.
  - (23) CHOPPIN - HARREY - THOMSON : J. inorg. Nucl. chem. 2(1956) 66.
  - (24) SEABORG : Chem. Eng. News 23 (1945) 2190.
  - (25) SLATER : Phys. Rev. 36 (1930) 57.
  - (26) CAP : Experientia 6 (1950) 291.
  - (27) LEHMAN : Rapport américain - North American Aviation (1956) 1685 et (1957) 1839.
  - (28) HUBBS - MARRUS - NIERENBERG - WORCESTER : Phys. Rev. 109 (1957) 390.
  - (29) CAUCHOIS : J. Phys. 14 (1953) 73. 5.
  - (30) FRIEDEL : Proc. Roy. Soc. A 66 (1953) 333.
  - (31) DAWSON : Nucleonics 10 (1952) 39.
  - (32) HUBBS - MARRUS : Phys. Rev. 110 (1958) 287.
  - (33) ZACHARIASEN : The Actinides elements : SEABORG et KATZ : N. Y. 1954, p. 769.
  - (34) HAÏSSINSKY : Nouveau Traité de Chimie Minérale. T. XV, 3e fascicule : PASCAL, Masson, Paris 1962.
  - (35) ZVARA : At. Energy (U. R. S. S.) 21 (1966) 83.
-



BIBLIOGRAPHIE GENERALE

- PASCAL - HAÏSSINSKY : Nouveau Traité de Chimie Minérale, Tome XV, fascicule 3. Masson, Paris 1962.
  
  - HYDE - PERLMAN - SEABORG : The Nuclear properties of the heavy elements.
    - I - Systematics of nuclear structures and radioactivity.
    - II - Detailed radioactivity properties.
    - III - Fission phenomena.Prentice Hall. New Jersey 1964.
  
  - FRIEDLANDER - KENNEDY : Chimie nucléaire et radiochimie. Traduit par GUIZERIX et MARTINELLI. Dunod, Paris 1960.
  
  - GOVAERTS : Introduction à la chimie nucléaire. Dunod, Paris 1961.
  
  - BAYET : Physique nucléaire. Masson, Paris 1960.
  
  - SEABORG - KATZ : The actinides elements. Mc GRAW-HILL : New-York 1954.
-



