HAL
open science

# Réalisation d'un spectromètre de masse opérant dans le faisceau externe d'un accélérateur. Application à l'étude d'isotopes à très courtes périodes produits par fission de l'uranium

Itzhak Amarel

**To cite this version:**

Itzhak Amarel. Réalisation d'un spectromètre de masse opérant dans le faisceau externe d'un accélérateur. Application à l'étude d'isotopes à très courtes périodes produits par fission de l'uranium. Physique Nucléaire Expérimentale [nucl-ex]. Université Paris Sud - Paris XI, 1967. Français. NNT : . tel-01062393

**HAL Id: tel-01062393**

**https://theses.hal.science/tel-01062393v1**

Submitted on 9 Sep 2014

**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.

Série A, n°
N° d'ordre

57

# THESES

présentées

A LA FACULTE DES SCIENCES D'ORSAY

UNIVERSITE DE PARIS

pour obtenir

le titre de DOCTEUR D'UNIVERSITE

par

Itzhak AMAREL

1ère thèse : "Réalisation d'un spectromètre de masse opérant dans le faisceau externe d'un accélérateur. Application à l'étude d'isotopes à très courtes périodes produits par fission de l'uranium."

2ème thèse : Propositions données par la Faculté.

Soutenue le 26 octobre 1967 devant la Commission d'Examen.

| | |
|---|---|
| M. J. TEILLAC | : Président |
| Mme N. MARTY | : |
| M. R. BERNAS | : Examinateurs |
| M. R. FOUCHER | : |

# TABLE DES MATIERES


PREMIERE PARTIE

REALISATION DU SPECTROMETRE DE MASSE EN LIGNE

A - Introduction

B - Réalisation du spectromètre de masse

1 - Généralités

2 - La source d'ions cible

3 - La détection

4 - Installation dans le faisceau extrait

5 - Balayage des masses

DEUXIEME PARTIE

MESURE DES SECTIONS EFFICACES DES ISOTOPES DE RUBIDIUM ET DE CESIUM

A - Introduction

B - Diffusion

C - Résultats relatifs aux sections efficaces

D - Discussion sur la précision de nos résultats

1 - Discrimination isotopique

2 - Sensibilité aux rayonnements du multiplicateur d'électrons

3 - Phénomènes susceptibles de rendre nos résultats partiellement cumulatifs

4 - Remarque concernant la contribution des neutrons

E - Discussion des résultats

1 - Comparaison avec des résultats antérieurs

2 - Effet de couches

F - Remarques

1 - Contamination par des éléments naturels

2 - Influence de la température sur le nombre d'ions détectés

3 - Possibilité d'étudier d'autres éléments que les alcalins

TROISIEME PARTIE

APPLICATION A LA SPECTROSCOPIE NUCLEAIRE

A - Méthode expérimentale

1 - Le déflecteur d'ions

2 - Le collecteur

3 - Transport des ions sous vide vers une salle de mesure

4 - Le système de détection β et méthode de mesure

B - Résultats

1 - Périodes de désintégration β

2 - Spectres β

3 - Spectres γ

4 - Mise en évidence de nouveaux émetteurs de neutrons différés

BIBLIOGRAPHIE

# AVANT - PROPOS

L'étude de la structure du noyau qui est l'un des buts de la Physique Nucléaire s'effectue principalement à l'aide de réactions nucléaires induites par des particules chargées ou neutres et par des études classiques de radioactivité. Ces deux modes de travail ont chacun leurs limitations:

Dans une réaction nucléaire une grande gamme de niveaux excités d'un isotope déterminé peut être étudiée mais seuls des isotopes stables ou de longue période peuvent servir de cible.

Dans une étude classique de radioactivité les moyens de production d'isotopes radioactifs ne permettent que rarement l'étude approfondie de noyaux de périodes inférieures à quelques minutes, ceci limite l'importante étude de la variation des caractéristiques nucléaires en fonction du nombre de neutrons car les périodes sont rapidement courtes pour les noyaux s'écartant de la zone de stabilité et près de cette zone les énergies disponibles sont petites.

La nécessité, pour compléter nos connaissances sur la structure nucléaire d'étudier le plus grand nombre possible de noyaux nous a conduit à mettre au point, au laboratoire, un système permettant d'étudier les noyaux de périodes plus courtes, ce qui impliquait de réduire au minimum le délai entre la production et la mesure. Pour atteindre ce résultat nous avons disposé directement un spectromètre de masse dans le faisceau externe du synchrocyclotron d'ORSAY. Il a été convenu d'appeler ces expériences "expériences en ligne".

C'est cette méthode et ses résultats appliqués à l'étude de l'Uranium, que nous décrirons dans ce mémoire:

La première partie décrira la réalisation de l'appareillage.

La seconde partie portera sur la mesure des sections efficaces des isotopes du Rubidium et du Cesium produits par fission.

Dans la troisième partie nous décrirons les mesures de spectroscopie nucléaire faites sur les isotopes ainsi séparés.

Ce travail a été réalisé à l'Institut de Physique Nucléaire d'ORSAY. Je remercie vivement Monsieur le Professeur J. TEILLAC, directeur de l'Institut pour l'accueil bienveillant et les facilités qu'il a bien voulu m'accorder, ainsi que la direction de la Commission à l'Energie Atomique Israëlienne pour m'avoir donné la possibilité d'effectuer cette étude.

Je tiens à exprimer ma profonde reconnaissance à M. R. BERNAS qui a dirigé ce travail et dont les conseils m'ont été très précieux.

A M. R. FOUCHER qui m'a aidé et dirigé dans les applications à la spectroscopie nucléaire, j'exprime mes très vifs remerciements ainsi qu'à Mme N. MARTY pour son appui et ses encouragements, ainsi que pour avoir facilité l'insertion de nos expériences dans le programme du synchrocyclotron.

Je tiens à remercier MM. R. KLAPISCH, J. CHAUMONT et Mlle PHILIPPE qui m'ont initié aux problèmes de la spectrométrie de masse et avec lesquels j'ai eu de nombreuses et fructueuses discussions.

Je remercie également Mme A. JOHNSON pour ses calculs sur l'optique ionique et pour son aide ainsi que celle de M. J. JASTRZEBSKI en spectroscopie nucléaire, de M. H. GAUVIN qui a collaboré à l'étude des émetteurs de neutrons différés, et de M. REIDE pour la réalisation des circuits électroniques.

Je n'aurai garde d'oublier ceux dont la contribution technique a été essentielle : MM. ALORENT, BIDERMAN, BIETH, BOUET, ENARD, FERGEAU et SALOME, ainsi que les équipes de conduite du synchrocyclotron.

# PREMIERE PARTIE

## REALISATION DU SPECTROMETRE DE MASSE - EN LIGNE

### A - INTRODUCTION

Avant de décrire l'appareillage que nous avons mis au point, il nous paraît nécessaire de préciser le type d'information que peut apporter l'étude d'isotopes de courtes périodes à nos connaissances sur la structure nucléaire.

Les études de spectroscopie nucléaire ont porté jusqu'à présent sur environ mille noyaux proches de la zone de stabilité. Les expériences en ligne doivent permettre d'étudier près de deux mille isotopes supplémentaires et ces études pourront nous donner des indications très précieuses sur les différents domaines de la spectroscopie nucléaire.

Le fait d'obtenir pour un même élément plusieurs isotopes, loin de stabilité, est d'un grand intérêt pour l'étude des variations des différents paramètres nucléaires avec le nombre des neutrons du noyau et pour contrôler et améliorer les formules de masses actuellement utilisées.

Les isotopes émetteurs $\beta$ très éloignés de la stabilité, auront des énergies de désintégration $\beta$ de plusieurs MeV ce qui permettra de peupler de nombreux niveaux de haute énergie et apportera ainsi des informations intéressantes sur les modes de désintégration $\beta$ et sur les schémas de niveaux.

Ces isotopes étant produits par des réactions nucléaires, l'étude des états isomères formés, pourra donner des indications sur la réaction elle-même, en particulier en ce qui concerne les moments angulaires.

La possibilité de produire des noyaux doublement magiques présente un grand intérêt pour les études du modèle des couches. De même l'étude de nouvelles zones de déformation nucléaire prévues par la théorie peut être envisagée.

Le champ d'étude de l'émission différée de neutrons et de protons s'élargira et on pourra atteindre la limite de stabilité des noyaux, noyaux dont l'existence est ou a été contestée comme $^{11}$Li, $^{19}$Na, etc. en liaison avec les formules de masses (1-2).

Nous pouvons donc dire que les expériences "en ligne" pourront nous donner au total une image plus complète des réactions nucléaires et de la structure nucléaire que celle qui nous est donnée par les connaissances actuelles.

Un autre type d'information auquel la méthode du spectromètre de masse en ligne se prête particulièrement bien est la mesure des sections efficaces des réactions nucléaires.

Ces sections efficaces qui complètent celles obtenues par radiochimie sont nécessaires pour confirmer et corriger les modèles qui expliquent les mécanismes de la spallation, de la fragmentation et de la fission à partir de modèles nucléaires proposés.

Les sections efficaces cumulatives des réactions de fission, par exemple, sont assez bien connues, mais les résultats expérimentaux sur les distributions de charges sont rares. Les mesures en ligne permettront d'obtenir des sections efficaces indépendantes d'où les distributions de charges pourront être plus facilement déduites. Certains effets de couches pourront être beaucoup plus visibles que dans les mesures cumulatives.

Ces données en conjonction avec d'autres sont nécessaires pour calculer les distributions d'énergie d'excitation, les paramètres de déformation, et la manière dont l'existence de couches fermées se manifeste dans la fission.

Puisqu'elle implique une séparation isotopique, la production de noyaux de courtes périodes peut s'effectuer de deux façons différentes : soit par séparateur électromagnétique d'isotopes en ligne, soit par un spectromètre de masse en ligne.

Le premier type d'appareil est plus important et pourra permettre l'étude d'une grande variété de noyaux. Toutefois, la réalisation des expériences sera ssez complexe car elle exigera une séparation chimique rapide et en ligne pour une grande partie des noyaux produits.

Des projets utilisant des séparateurs d'isotopes sont en cours de réalisation. Un des plus important est le projet ISOLDE du C.E.R.N. (3) auprès du synchrocyclotron de 600 MeV de ce centre.

D'autres projets auprès de réacteurs sont prévus : à l'Université d'AMES (Iowa) (4), en ISRAEL(5) et à GRENOBLE (4). A DUBNA (4) un séparateur d'isotopes est en ligne avec un cyclotron à ions lourds.

Des mesures en ligne effectuées avec un séparateur et utilisant des séparations chimiques spécifiques à quelques éléments ont été déjà faites par S. BORG (6) qui a étudié les isotopes du xénon et du krypton jusqu'à des périodes de 10 secondes à l'aide d'une cible de stéarate d'Uranium.

Par ailleurs, H. EWALD et son équipe (7) ont utilisé un appareil du type Mattauch-Herzog, permettant de séparer les fragments de fission, énergiques et multichargés. HOVESTADT et ARMBRUSTER (8) ont employé un séparateur du type Cohen pour la mesure des spectres $\gamma$ et $\beta$ des produits de fission et utilisant une technique qui simule les expériences en ligne NEUMANN (9), étudie les Xénon provenant de la fission spontanée du $^{252}$Cf à l'aide d'un séparateur du type scandinave.

Le deuxième type d'appareil possible, le spectromètre de masse, est plus simple, mobile, mais plus limité dans la gamme d'éléments qu'il permet d'étudier par les expériences en ligne.

Toutefois, les raisons de simplicité et d'efficacité ont paru suffisamment intéressantes pour que dès 1964 R. BERNAS et R. KLAPISCH (10-11), au laboratoire, expérimentent un spectromètre de masse de petites dimensions, avec une source à émission thermoionique utilisée pour réaliser simultanément l'ionisation et la séparation chimique. Ce spectromètre de masse a été installé dans le faisceau de protons de 150 MeV du synchrocyclotron d'ORSAY, pour mettre en évidence les possibilités de cette méthode et par la suite poursuivre des études de réactions nucléaires (spallation, fragmentation) à haute énergie par l'intermédiaire de la mesure des sections efficaces de production (11-12-13).

Empruntant la même technique nous nous sommes orientés vers des applications non seulement de mesure des sections efficaces, indépendantes, de production par fission à haute énergie, mais également à des études de spectrométrie nucléaire en ligne sur les noyaux produits et leurs descendants (12).

Parmi les réactions nucléaires possibles, nous avons choisi la fission car il nous a paru possible d'obtenir ainsi de nombreux isotopes d'éléments alcalins (Rb et Cs) très riches en neutrons. Ces prévisions s'étant confirmées il nous a été possible alors d'aborder l'étude spectroscopique des noyaux formés.

| Z \ N | 72 | 73 | 74 | 75 | 76 | 77 | 78 | 79 | 80 | 81 | 82 | 83 | 84 | 85 | 86 | 87 | 88 | 89 |
|---|---|---|---|---|---|---|---|---|---|---|---|---|---|---|---|---|---|---|
| 56 | $^{128}$Ba 2,4 j | $^{129}$Ba 2,1 h / 2,2 h | $^{130}$Ba St | $^{131}$Ba 14,6 m / 11,6 j | $^{132}$Ba St | $^{133}$Ba 39 h / 7,2 a | $^{134}$Ba St | $^{135}$Ba 29 h / St | $^{136}$Ba St | $^{137}$Ba 2,6 m / St | $^{138}$Ba St | $^{139}$Ba 83 m | $^{140}$Ba 12,8 j | $^{141}$Ba 18 m | $^{142}$Ba 11 m | $^{143}$Ba 12 s | $^{144}$Ba 11,4s | |
| 55 | | $^{128}$Cs 3 m | $^{129}$Cs 31 h | $^{130}$Cs 30 m | $^{131}$Cs 9,7 j | $^{132}$Cs 6,6 j | $^{133}$Cs St | $^{134}$Cs 2,9 h / 2,1 a | $^{135}$Cs 53 m / $2 10^6$ a | $^{136}$Cs 13 d | $^{137}$Cs 30 a | $^{138}$Cs 32,2m | $^{139}$Cs 9,5 m | $^{140}$Cs 66 s | $^{141}$Cs 24 s | $^{142}$Cs 2,3 s | $^{143}$Cs 1,6 s | $^{144}$Cs 1,06 s | 90 |
| 54 | | | $^{128}$Xe St | $^{129}$Xe 8j St | $^{130}$Xe St | $^{131}$Xe 12 j St | $^{132}$Xe St | $^{133}$Xe 2,3 j / 5,3 j | $^{134}$Xe St | $^{135}$Xe 16 m / 9,2 h | $^{136}$Xe St | $^{137}$Xe 3,9 m | $^{138}$Xe 14 m | $^{139}$Xe 41 s | $^{140}$Xe 16 s | $^{141}$Xe 2 s | $^{142}$Xe ~1,5s | $^{143}$Xe 1 s | $^{144}$Xe ~ 1 s |

| Z \ N | 45 | 46 | 47 | 48 | 49 | 50 | 51 | 52 | 53 | 54 | 55 | 56 | 57 | 58 | 59 | 60 | 61 |
|---|---|---|---|---|---|---|---|---|---|---|---|---|---|---|---|---|---|
| 38 | $^{83}$Sr 33 h | $^{84}$Sr St | $^{85}$Sr 70 m / 64 j | $^{86}$Sr St | $^{87}$Sr 2,8 h / St | $^{88}$Sr St | $^{89}$Sr 50,4 j | $^{90}$Sr 28 a | $^{91}$Sr 9,7 h | $^{92}$Sr 2,7 h | $^{93}$Sr 8,3 m | $^{94}$Sr 1,2 m | $^{95}$Sr 26 s | $^{96}$Sr 4 s | $^{97}$Sr | $^{98}$Sr | |
| 37 | | $^{83}$Rb 83 j | $^{84}$Rb 20 m / 33 d | $^{85}$Rb St | $^{86}$Rb 1 m / 18,7j | $^{87}$Rb $510^{10}$ a | $^{88}$Rb 18 m | $^{89}$Rb 15 m | $^{90}$Rb 4,3 m / 2,6 m | $^{91}$Rb 57,4 s | $^{92}$Rb 4,43 s | $^{93}$Rb 5,89 s | $^{94}$Rb 2,67 s | $^{95}$Rb 0,36 s | $^{96}$Rb 0,23 s | $^{97}$Rb ~ 0,14 s | $^{98}$Rb | 62 |
| 36 | | | $^{83}$Kr 1,9 h / St | $^{84}$Kr St | $^{85}$Kr 4,4 h / 10,8 a | $^{86}$Kr St | $^{87}$Kr 76 m | $^{88}$Kr 2,8 h | $^{89}$Kr 3,2 m | $^{90}$Kr 33 s | $^{91}$Kr 10 s | $^{92}$Kr 3 s | $^{93}$Kr 2 s | $^{94}$Kr 1 s | $^{95}$Kr | $^{96}$Kr | $^{97}$Kr | $^{98}$Kr |

Nouveaux isotopes — Périodes mesurées — Identification des précurseurs de neutrons différés

Régions de la table des isotopes étudiés dans ce travail

## B - REALISATION DU SPECTROMETRE DE MASSE.

### 1 - Généralités.

Le spectromètre de masse que nous avons construit est du type Nier, à secteur magnétique homogène de 60°, avec un rayon moyen de 22 cm; la tension d'accélération est de 3 000 volts, la fente source a une ouverture de 0,3 mm et la fente collectrice de 0,5 mm. Ces fentes sont plus larges que pour les spectromètres de masse d'analyse car nous sommes plus intéressés par le rendement que par le pouvoir de séparation; Avec ce réglage le pouvoir séparateur théorique maximum que l'on peut espérer obtenir est de 275. Le pouvoir séparateur mesuréà 1 % de la hauteur des raies est del'ordre de 190 au voisinage de la masse 140. Ceci correspond à un élargissement du faisceau d'ions de l'ordre de 0,4 mm. Nous avons recherché les causes possibles de cet élargissement à partir de la relation :

$$\Delta W = r\,\alpha^2 + r\left(\frac{\Delta E}{E}\right) + 2\,r\left(\frac{\Delta B}{B}\right)$$

qui fait intervenir l'influence des fluctuations de l'énergie des ions ( $\frac{\Delta E}{E}$ ) et du champ magnétique ( $\frac{\Delta B}{B}$ ). (Nous avons négligé l'élargissement dû à la diffusion des ions sur les molécules du gaz résiduel).

Nous avons vérifié que l'alimentation du champ magnétique étant régulée en courant à mieux que $10^{-4}$, le terme en $\frac{\Delta B}{B}$ contribue pour 0,04 mm seulement. En ce qui concerne le terme en $\frac{\Delta E}{E}$ il peut être dû à trois contributions principales :

a) Les fluctuations de l'alimentation H. T. d'accélération. Elles sont inférieures à $10^{-5}$ et l'effet est donc négligeable.

b) Les variations d'énergie provenant des tensions alternatives induites dans la source d'ions. Nous avons vérifié que ces tensions parasites sont réduites à des valeurs inférieures à 1 volt par des dispositifs appropriés.

c) Une différence de potentiel entre les extrémités du four. Elle provient de la tension alternative de chauffage du four qui varie entre 8,4 et 14 volts de crête à crête. Nous estimons que le tiers de cette tension, correspondant à la seule partie du four vue par les fentes, influe sur l'énergie des ions, le reste se répartissant entre les amenées de courant et la partie inutilisée du four (fig. 1). Comme la tension d'accélération des ions est appliquée au point milieu du four, les variations d'énergie sont de 2,8 à 4,7 volts.

L'élargissement provenant de ces fluctuations d'énergie correspondant à 0,3-0,4 mm, ce qui explique bien la valeur expérimentale trouvée.

Un chauffage en courant continu nous ferait gagner un facteur $2\sqrt{2}$ à puissance égale. Nous n'avons cependant pas utilisé cette modification à cause de son coût trop élevé.

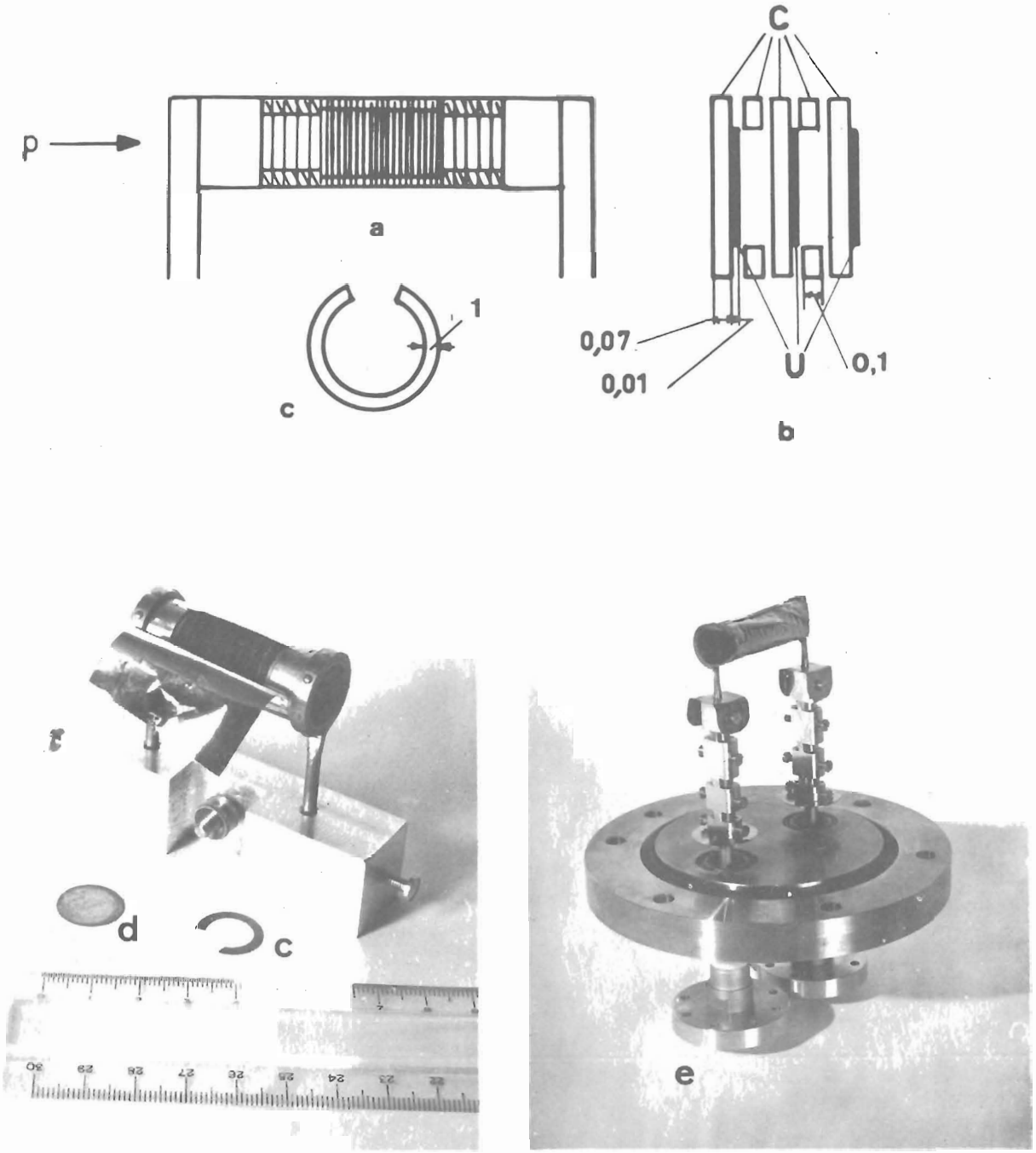


Fig. 1 - a) Le four contenant la cible ; b) Montage schématique des plaquettes et entretoises ; c) Entretoise ; d) Plaquette de graphite avec de l'uranium ; e) Montage du four sur la bride.

Enfin, nous avons déterminé la contamination résiduelle, c'est-à-dire la fraction du courant d'ions de masse m présente à la position (m $\pm$ 1). Cette contamination est en moyenne de :

2,5 $^{o}/_{oo}$ dans la région des isotopes du Cesium

1,5 $^{o}/_{oo}$ dans la région des isotopes du Rubidium.

## 2 - La source d'ions-cible.

Nous avons adapté à notre spectromètre de masse une source d'ions qui joue en même temps le rôle de cible (fig. 2). Elle est composée de plaquettes de graphite recouvertes d'une couche d'uranium et portée à haute température.

La source fonctionne sur le principe suivant : les produits de fission projetés hors de l'Uranium sont arrêtés dans le graphite hors duquel ils diffusent, puis les éléments alcalins sont sélectivement ionisés par effet thermionique. Nous allons décrire maintenant en détail le fonctionnement de cette source.

### a) Ionisation de surface.

Pour ioniser les éléments alcalins produits par la fission on a le choix entre l'ionisation de surface et l'ionisation par bombardement électronique (14). Nous avons résumé brièvement dans le tableau suivant les raisons qui nous ont amenés à choisir l'ionisation de surface.

| | Ionisation de surface | Bombardement électronique |
|---|---|---|
| Sélectivité | très bonne pour alcalins. | aucune |
| Rendement d'ionisation pour Rb et Cs | $>50$ % | de l'ordre de qq°/oo |

L'ionisation de surface est régie par la loi de SAHA-LANGMUIR qui nous donne l'équilibre entre ions positifs et atomes neutres au contact d'une surface métallique chauffée.

La formule utilisée est :

$$\frac{n^+}{n^\circ} = A \exp (W - \phi) / KT$$

$n^+$ : nombre d'ions positifs

$n^\circ$ : nombre d'atomes neutres

A : constante caractéristique de l'élément ionisé (A = 0,5 pour les alcalins)

W : travail de sortie des électrons du métal (ev)

$\phi$ : potentiel d'ionisation de l'élément étudié (ev)

On voit que le rendement d'ionisation est fortement sensible à la différence $(W - \phi)$ qui varie avec les éléments à ioniser et les surfaces ionisantes.

Dans notre cas nous sommes intéressés à séparer le Rubidium et le Cesium des alcalinoterreux (Sr et Ba) pouvant apporter une contribution aux mêmes masses.

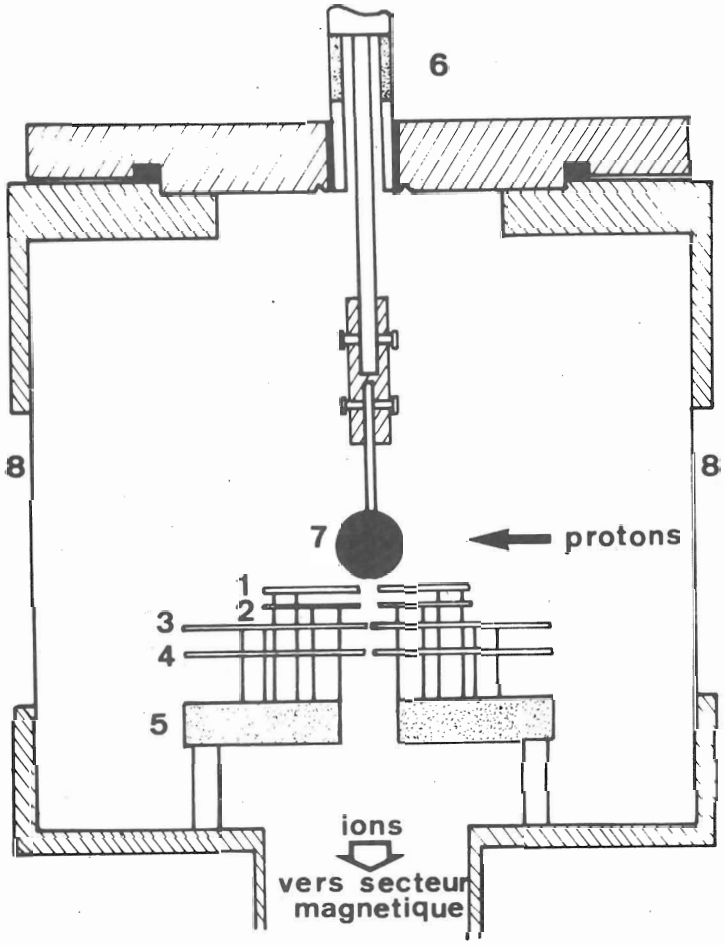


Fig. 2 - Schéma de la source d'ions : 1 - Extractrice ; 2 - Demi-plaques ; 3 - Fente de définition ; 4 - Diaphragme ; 5 - Couronne en oxyde de beryllium ; 6 - Passages de courant ; 7 - Four ; 8 - Fenêtres en acier inoxydable.

La figure 3 nous montre que dans nos conditions expérimentales (1600° C) le rapport entre les rendements d'ionisation sera d'environ 300 pour le Sr et Rb, et d'environ 20 pour le Ba et Cs.

b) Description de la source d'ions (fig. 2)

Nous avons construit une source d'ions qui est semblable aux sources à ionisation de surface utilisées à ORSAY (11) , (15) et qui est adaptée aux exigences de la spectrométrie de masse en ligne. Etant donné les fréquents changements de cible et pour ne pas détériorer les réglages de la source, nous avons séparé celle-ci en deux parties : une optique fixe d'une part et un four contenant la cible, d'autre part. Le tout est contenu dans une enceinte sous vide munie de deux fenêtres minces en acier inoxydable (0,05 mm) sur le passage du faisceau de protons.

α ) L'optique fixe montée sur le tube du spectromètre est formée de quatre plaques :

- l'extractrice (1) qui est portée à un potentiel d'environ 2900 volt sert à extraire les ions du four,
- deux demi plaques (2) qui sont portées à un potentiel d'environ 2 000 volt permettent de centrer le faisceau.
- une fente de définition (3) de 0,3 mm de largeur qui est mise à la masse.
- un diaphragme (4) de 0,7 mm, également à la masse, en vue d'éliminer les trajectoires ioniques trop divergentes.

Etant donné les hautes températures auxquelles est porté le four contenant la cible, les plaques de l'optique fixe sont en molybdène et les bords de fente sont protégés par du graphite. Cette optique est montée sur une couronne en oxyde de beryllium (5, fig. 2) qui sert d'isolant électrique et de conducteur de chaleur. Des caches sont nécessaires afin de protéger l'isolant des vapeurs métalliques.

β ) Le four (7) est formé d'un cylindre de tantale mince (14 μ), avec une fente d'environ 1 mm de largeur pour l'extraction des ions, soudé électriquement par ses deux extrémités à des anneaux de tantale qui servent à la fois au passage du courant et à la rigidité mécanique (fig. 1). Ce four est porté par deux passages de courant (6) isolés par de la céramique et soudés sur une bride en acier inoxydable. Ce four est à un potentiel de 3 KV.

Nous avons utilisé des fours de 8 mm et de 15 mm de diamètre chauffés par effet Joule jusqu'à 1650° C : la puissance de chauffage nécessaire dans ces deux cas est respectivement de 170 watts (60 A, 2,8 V) et 500 watts (100 A, 5 V).

c) La cible qui est représentée sur la figure 1 est constituée de plaquettes de graphite sur lesquelles sont déposées des couches minces d'Uranium. Nous décrirons ci-dessous la préparation de cette cible et le choix des épaisseurs de graphite de l'Uranium.

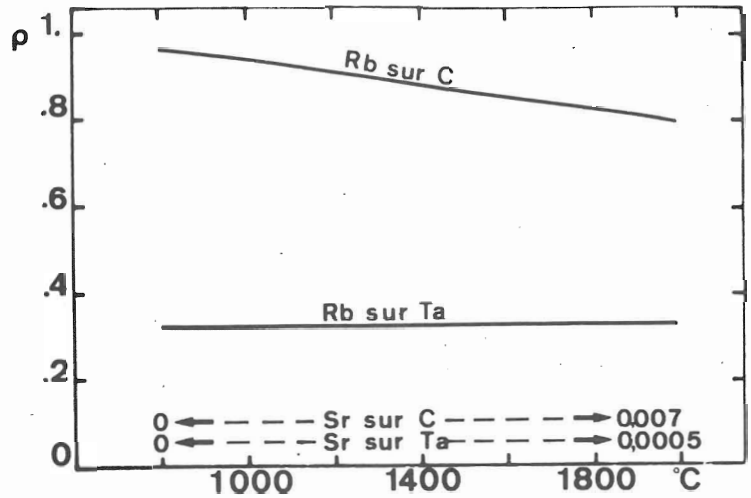


Fig. 3 a - Rendements d'ionisation ( $\rho$ ) du rubidium et du strontium, en fonction de la température.

$$\rho = \frac{\alpha \exp (W-\phi / kT)}{1 + \alpha \exp (W-\phi / kT} \quad ; \quad \alpha (Rb) = \frac{1}{2} \quad ; \quad \alpha (Sr) = 2 \; ;$$

$$\phi_{(Rb)} = 4,17 \text{ eV} \; ; \; \phi_{(Sr)} = 5,67 \text{ eV} \; ; \; W_{(Ta)} = 4,19 \text{ eV}, W_{(C)} = 4,6 \text{ eV}$$

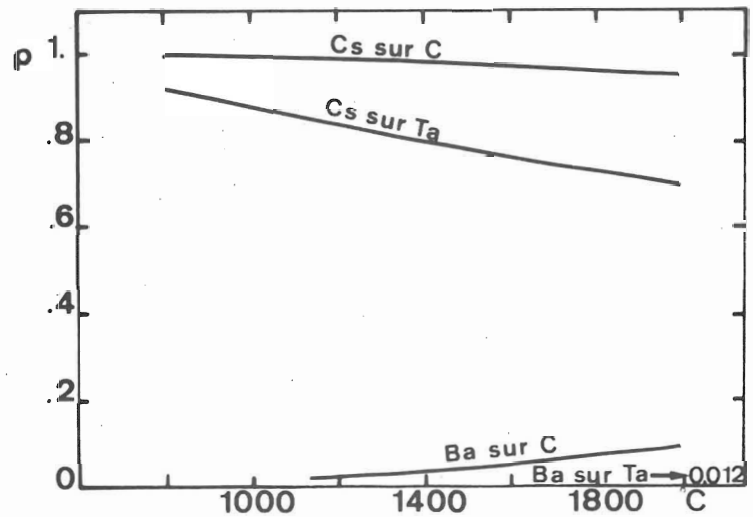


Fig 3 b - Rendements d'ionisation ( $\rho$ ) du césium et du barium en fonction de la température.

$$\alpha_{(Cs)} = \frac{1}{2} \; ; \; \alpha_{(Ba)} = 2 \; ; \; \phi_{(Cs)} = 3,89 \text{ eV} \; ; \; \phi_{(Ba)} = 5,19 \text{ eV} \; ;$$

$$W_{(Ta)} = 4,19 \text{ eV} \; W_{(C)} = 4,6 \text{ eV}$$

α) Préparation de la cible :

Des pastilles en graphite* de 8 ou 15 mm de diamètre et de 1 mm d'épaisseur sont usées jusqu'à une épaisseur de 0,07 mm à l'aide d'un papier abrasif. Elles sont ensuite chauffées à environ 200° C à l'air et l'on pulvérise sur le graphite chaud une solution aqueuse de nitrate d'uranyle (de l'ordre de 20 mg par gr d'eau). Celui-ci se décomposant à 100° C nous obtenons une couche mince d'oxyde d'uranium. L'épaisseur de ces couches est mesurée par pesée de la pastille en graphite avant et après pulvérisation.

Une centaine de pastilles préparées de cette façon sont empilées en disposant des cales en graphite de 0,1 mm d'épaisseur. L'expérience montre que ces entretoises (c, fig. 1) servent à améliorer la vitesse de sortie des produits de fission du four en diminuant l'importance des effets de surface qui résulteraient d'un empilement trop serré des pastilles (11).

Le four et les pastilles de graphite sont dégazés sous vide, à une température de 1700° C pendant quelques jours. L'oxyde d'uranium est réduit en partie et il se forme du carbure d'uranium. De cette façon, nous obtenons un mélange d'oxyde et de carbure qui est suffisamment réfractaire.

---

* Graphite Carbone-Lorraine, grade nucléaire n° 2239

Les plaquettes chauffées pendant près de quinze jours n'ont pas fait apparaître de perte d'uranium appréciable et nous avons pu mettre en évidence que l'uranium ne diffuse pas très loin dans le graphite. Pour cela, nous avons calciné les pastilles à l'air et avons obtenu un résidu en forme de pellicule mince par rapport à l'épaisseur du graphite et dont le poids correspond à celui de l'oxyde d'uranium pulvérisé.

β ) Calcul des épaisseurs optima d'uranium et de graphite.

Les études effectuées au laboratoire sur la diffusion dans des métaux divers ont montré que nous ne pouvions utiliser de l'uranium épais comme cible car le temps nécessaire à la diffusion des produits de fission serait alors trop long (11) (16).

Nous nous basons donc sur l'énergie de recul des produits de fission pour les extraire instantanément de l'uranium et nous arrêtons ces produits dans du graphite, cet élément en effet, a été prouvé être le meilleur agent diffuseur. Il est donc nécessaire de déterminer l'épaisseur optimum de la couche d'uranium afin d'avoir le meilleur rendement de collection des produits de fission.

Différents auteurs (18) ont montré que le parcours du $Rb^{86}$ de fission dans l'uranium, est de 10,5 mg/cm$^2$ et celui du $Cs^{137}$ est de 9,18 mg/cm$^2$. Les parcours des autres isotopes du Rb et Cs sont approximativement les mêmes. En supposant une fission homogène dans l'uranium, une valeur moyenne du parcours, et une distribution angulaire approximativement isotrope (17) pour les

fragments (Rb et Cs), un simple calcul nous donne, pour la fraction des fragments qui quittent l'uranium par recul, les relations :

$$\rho = 1 - \frac{d}{2R} \text{ pour } d < R \text{ et } \rho = \frac{R}{2d} \text{ pour } d > R$$

où d est l'épaisseur de la couche d'uranium

R est le parcours moyen dans l'uranium

$\rho$ la fraction des fragments de fission qui sortent de l'uranium par recul.

Nous voyons sur la figure 4 qu'on pourrait augmenter l'épaisseur de la couche d'uranium jusqu'à 10 mg/cm$^2$; au-delà de cette épaisseur le rendement reste constant. En pratique nous avons utilisé des épaisseurs de 1; 3 et 8 mg/cm$^2$.

En ce qui concerne le graphite les parcours des produits de fission peuvent être déduits d'une façon très approximative de la formule: $R = KA^{1/2}$ utilisée par Alexander GAZDIK (19) où :

R est le parcours en mg/cm$^2$

K est une constante variant avec le fragment de recul considéré

A est la masse atomique de l'absorbeur.

En appliquant cette formule le parcours des isotopes du Rubidium dans le graphite serait donc de : 2,1 mg/cm$^2$ ($\simeq$ 12 $\mu$). Aussi en utilisant des plaquettes de 70 $\mu$ d'épaisseur, limite des possibilités de fabrication courante, nous sommes certains d'arrêter tous les produits de fission qui sortent de l'uranium.

D'autre part, le nombre de plaquettes de graphite-uranium que l'on peut utiliser est limité par les dimensions du four et par la dégradation en énergie du faisceau de protons qui traverse la cible.

Dans les tables de parcours de particules (20) on trouve que la perte d'énergie ($-\frac{dE}{dx}$) des protons de 150 MeV est

de 4,9 MeV $cm^2$/ gr dans le carbone

et 2,6 MeV $cm^2$/ gr dans l'uranium,

ce qui correspond, pour une plaquette de 0,07 mm (12,5mgr/$cm^2$) de graphite et de 3 mgr/$cm^2$ d'uranium, à une perte en énergie de 70 KeV par plaquette; soit 7 MeV pour l'ensemble de la cible contenant 100 plaquettes. Cette perte d'énergie est négligeable et nous considérons que nos études ont été faites avec des protons de 150 MeV.

3) La détection.

Le courant d'ions moyen à détecter variant de $10^{-13}$ à $10^{-17}$ ampères, il est indispensable d'utiliser des multiplicateurs d'électrons. En ce qui concerne la mesure elle-même, nous avons choisi d'employer le système de comptage des ions individuels par impulsions (11) au lieu d'intégrer le courant car il présente les avantages suivants :

- Diminution d'une façon très appréciable de la discrimination isotopique, i. e $< 1$ % pour $\frac{Li^6}{Li^7}$ contre 10 % dans un système multiplicateur d'électrons - électromètre (21).

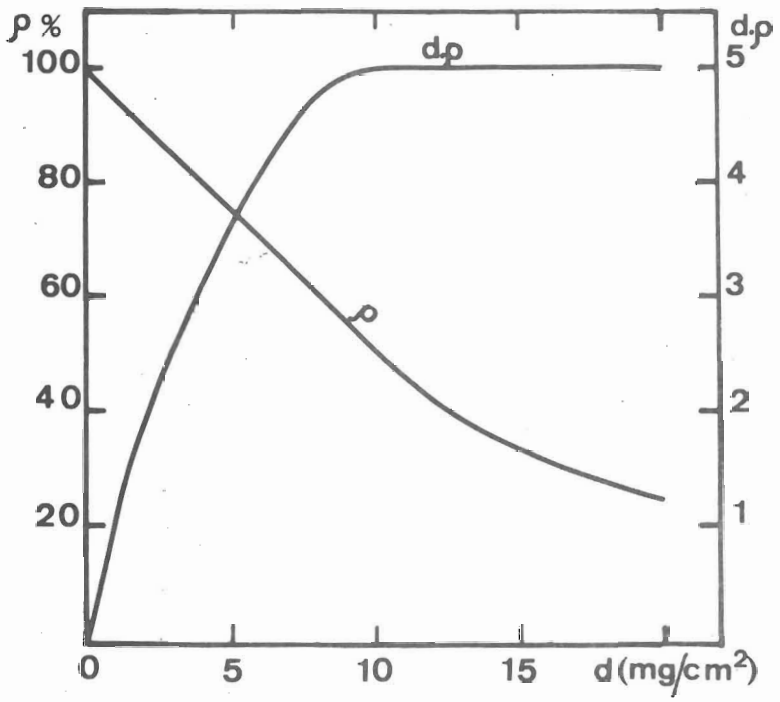


Fig. 4 - Echelle de gauche : Fraction des fragments ( ρ ) sortant de l'uranium par recul en fonction de l'épaisseur de la cible d'uranium (d)

Echelle de droite : Rendement relatif de la cible en fonction de l'épaisseur d'uranium.

- Un rapport signal sur bruit inférieur à celui obtenu par la méthode d'intégrateur. Cette amélioration provient de l'utilisation d'un discriminateur à seuil qui élimine le bruit de fond provenant des différentes dynodes autres que la première. Le rapport signal sur bruit est accru dans ce cas de $\frac{\gamma}{\gamma - 1}$ ( $\gamma$ étant le facteur d'amplification par dynode qui correspond ici à une valeur de 2 à 3).

- Possibilité d'accumulation par cyclage consécutif et enregistrement sur une multiéchelle (22).

- La digitalisation des résultats nous permet de les analyser avec facilité, à l'aide d'ordinateurs.

Nous avons utilisé des multiplicateurs d'électrons à 17 étages, avec des dynodes en Cu-Be, fabriqués à ZURICH (E.T.H.). Leur courbe d'amplification fait apparaître un plateau, où la valeur du gain se stabilise à $10^8$ après un certain temps de rodage.

En travaillant sur ce plateau, nous sommes certains de détecter la plus grande partie des ions atteignant la première dynode et de diminuer la discrimination isotopique.

Pendant les expériences en ligne, il existe un bruit de fond provenant de différentes causes:

- Le mouvement propre du multiplicateur d'électron qui dépend de sa qualité et de la tension appliquée sur les dynodes. Ce bruit est en général de l'ordre de 4 à 5 coups par 10 secondes.

- Le bruit provenant des protons détectés pendant le passage du faisceau est très important (2 à 3 000 c/s); il est en fait réduit à environ 300 c/s en employant une porte qui bloque la détection pendant le passage du faisceau de protons. Ce bruit provient également de la sensibilité des dynodes aux neutrons et aux radiations $\beta$ et $\gamma$ produites dans la salle, mais les vies moyennes de ces radiations étant beaucoup plus longues que l'ouverture de la porte, nous n'en éliminons qu'une partie.

- Un bruit de fond provenant des ions ou des particules neutres émis par la source et rebondissant dans le tube du spectromètre, cette contribution qui dépend surtout de la puissance de chauffage peut atteindre 400 c/s même après être en partie réduite par des chicanes.

- Un signal provenant de la radioactivité des atomes s'accumulant sur la première dynode s'ajoute aux bruits précédents.

Dans le cas d'isotopes à décroissance $\beta$, cet apport est de l'ordre de 10 % du signal en régime d'équilibre.

Quelques performances de notre spectromètre sont indiquées sur la figure 12 qui représente un enregistrement du spectre des isotopes du Rubidium obtenu en ligne par fission de l'uranium par des protons de 150 MeV. Nous discuterons plus loin de l'interprétation de ce spectre.

Une photographie de notre appareil est représentée sur la figure 5.

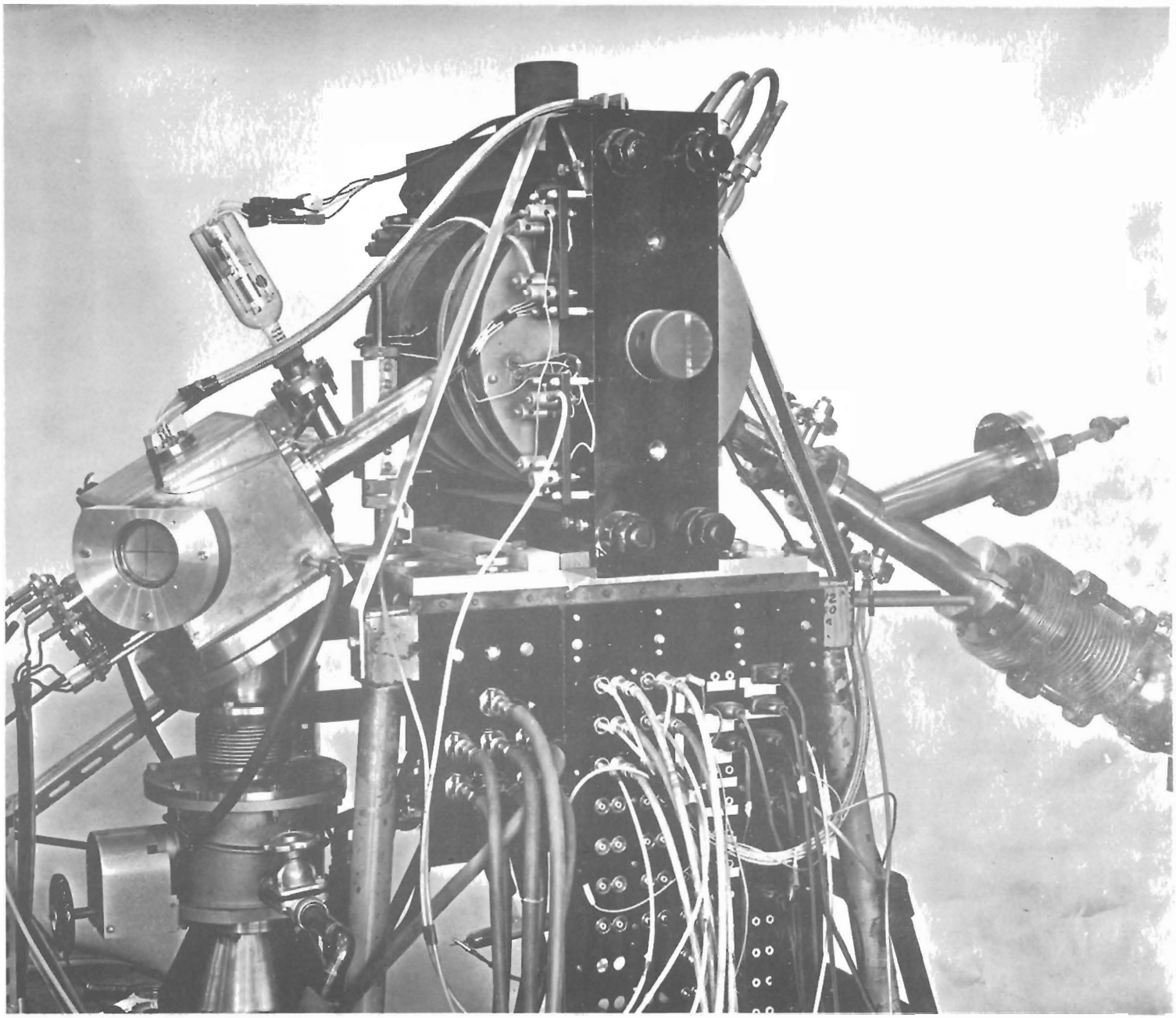

Fig. 5 - Le spectromètre de masse.

4) Installation dans le faisceau extrait.

Nous avons installé notre spectromètre de masse dans le faisceau externe du synchrocyclotron d'ORSAY.

Nous avons fait nos premiers essais sur le faisceau dit à "21°" (fig. 6) avec un faisceau de protons dont le diamètre était inférieur à 8 mm au niveau de notre cible.

Toutes nos autres expériences ont été faites sur le faisceau dit à "8°". Nous avons établi ce faisceau et procédé à quelques essais de focalisation. Les réglages définitifs des lentilles de focalisation correspondent à 186 ampères pour la lentille verticale et 209 ampères pour la lentille horizontale, la valeur du courant du déflecteur était réglée à 5796 sur le voltmètre digital. Ces réglages nous donnaient une tache de 8 mm de diamètre au niveau de la cible.

L'intensité du faisceau de protons extrait est mesurée à l'aide d'une chambre à ionisation à hélium (23) située à une distance de 50 cm environ de notre appareil.

Dans de bonnes conditions de fonctionnement du synchrocyclotron, avec un diaphragme de 70 mm de diamètre au déflecteur et de 10 mm à la sortie du canal magnétique de l'accélérateur, l'intensité du faisceau était de $3,6 \ 10^{11}$ protons par seconde ($7 \ 10^{11}$ protons par seconde sans le diaphragme de 10 mm, évidemment dans ce cas la tache est plus étendue mais on gagne en production).

Le positionnement du spectromètre de masse dans le faisceau de protons et la focalisation de celui-ci sur la cible constituent une manipulation assez délicate, dont nous donnons ci-dessous les étapes principales :

1) Le spectromètre est positionné mécaniquement et avec précision dans le faisceau de protons.

2) A l'aide d'un plastique fluorescent sous l'impact des protons et en observant un écran de télévision, nous focalisons visuellement le faisceau de protons.

3) Des plaques photographiques nous permettent, par "radiographie" du four (fig. 7) de préciser la position de la cible par rapport au faisceau.

4) Finalement, nous optimisons la focalisation du faisceau de protons, en mesurant directement avec le spectromètre de masse la production d'un isotope formé par réaction nucléaire.

5) Balayage des masses.

Tous les paramètres du spectromètre de masse étant fixés, nous faisons défiler les masses devant le collecteur en variant le champ magnétique.

L'enregistrement des spectres de masses par les moyens classiques de l'intégration du courant (balayage continu du champ magnétique et enregistrement sur papier) n'est pas satisfaisant dans notre cas. Outre le fait qu'on ne bénéficie pas des avantages de la détection par impulsions individuelles l'enregistrement sur papier donnerait lieu quelle que soit la vitesse d'enregistrement à des erreurs provenant des différentes fluctuations et des dérives lentes : (intensité du faisceau de protons, température du four).

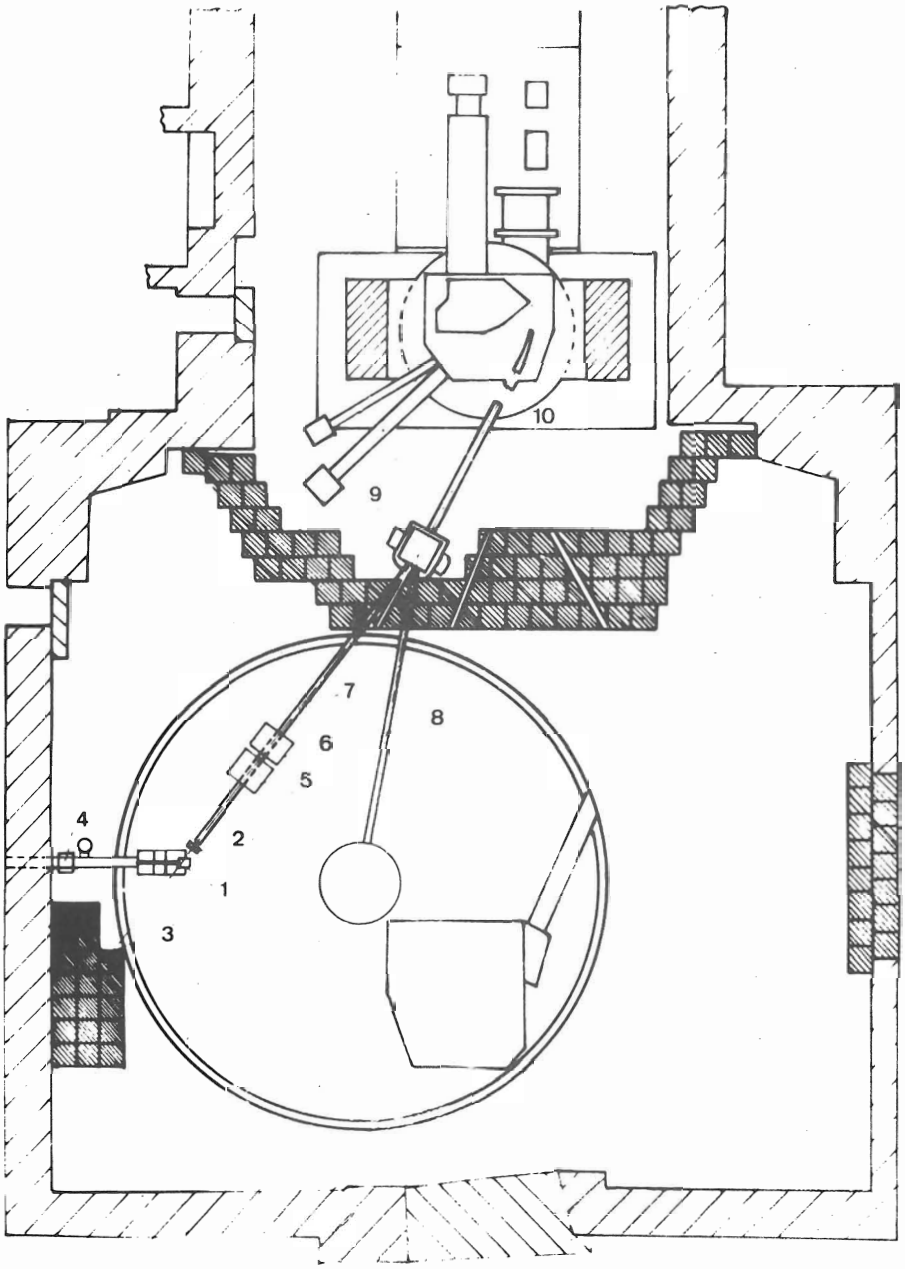


Fig. 6 - Installation du spectromètre de masse dans le faisceau de protons.

1 - Source du spectromètre ; 2 - Chambre à ionisation ;
3 - Piège à protons; 4 - Lentilles quadrupolaires électrostatiques ;
5 et 6 - Lentilles quadrupolaires magnétiques du faisceau de protons ; 7 - Faisceau de protons dit à 8° ; 8 - Faisceau dit à 21° ;
9 - Déflecteur de protons ; 10 - Canal de sortie du synchrocyclotron

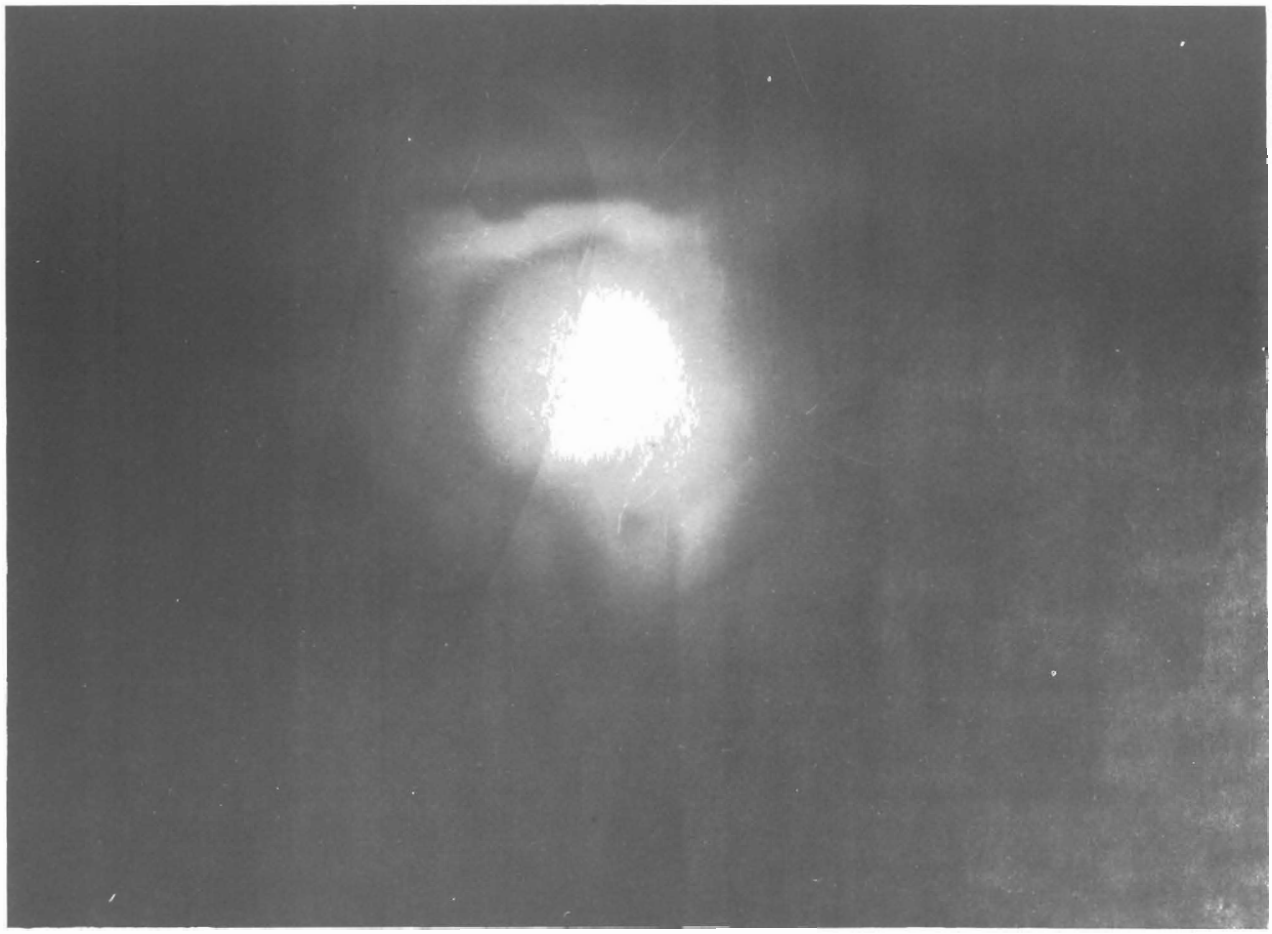

Fig. 7 - Radiographie du four obtenue avec le faisceau de protons.

Nous avons donc automatisé l'enregistrement en construisant un système de balayage magnétique semblable, mais plus simple, à celui décrit par KLEIN et BARTON (22).

Ce système de balayage répétitif (11) (15) nous permet non seulement d'éliminer les erreurs provenant des dérives et des fluctuations mais également d'améliorer d'un facteur $\sqrt{n}$ (n étant le nombre de cycles) le rapport signal sur fluctuations statistique du bruit de fond et aussi de diminuer sensiblement l'influence du bruit de fond $\beta$ dû aux atomes radioactifs. Ce dernier effet serait éliminé par un balayage électrostatique mais compte tenu de l'étendue de la gamme de masses à balayer lors des études de fission (14 masses consécutives) la discrimination isotopique due à la variation de la tension d'accélération des ions dans la source serait très grande et fausserait nos résultats.

Le système que nous avons réalisé consiste en :

- un générateur de signaux triangulaires, basse fréquence, très stable, contrôlant le courant de l'électro-aimant.
- un circuit de Schmitt synchronisé avec le générateur et fournissant l'impulsion nécessaire au démarrage d'un multi-échelle au début de chaque cycle.
- une horloge fournissant les impulsions de commande pour le passage d'un canal au suivant (le schéma de principe de cette installation est indiqué sur la figure 8).

Ce système, non bouclé, tout en n'ayant pas la linéarité de celui de KLEIN et BARTON (22) est bien plus simple à réaliser. Les appareils utilisés ayant une stabilité suffisante le système a pu être employé avec satisfaction en balayage magnétique, ou électrostatique (avec certaines modifications).

Les effets d'hystérésis qui perturbent la linéarité du champ magnétique se stabilisent après quelques cycles.

Nous avons effectué des mesures sur un aimant de spectromètre de masse à culasse en fer Armco, pour déterminer le retard entre le courant et le champ magnétique. Les photographies (fig. 9) montrent la variation avec le temps : du courant ( a ), de la tension aux bornes des bobines ( b ) et du champ magnétique dans l'entrefer ( c ). La constante du temps du champ magnétique est de l'ordre de 0,5 secondes.

Les figures 9 d à 9 h indiquent les variations du champ magnétique en fonction de la fréquence pour un balayage triangulaire. Nous voyons qu'on obtient une linéarité suffisante pour des fréquences inférieures à 0,02 cycles par seconde à condition de ne pas utiliser le début et la fin du cycle. Nous avons réalisé cette condition en retardant le déclanchement du multi-échelle à l'aide du circuit de Schmitt. La perte correspondante en temps d'irradiation est de l'ordre de 10 %, mais ceci est largement compensé par la simplicité du dispositif.

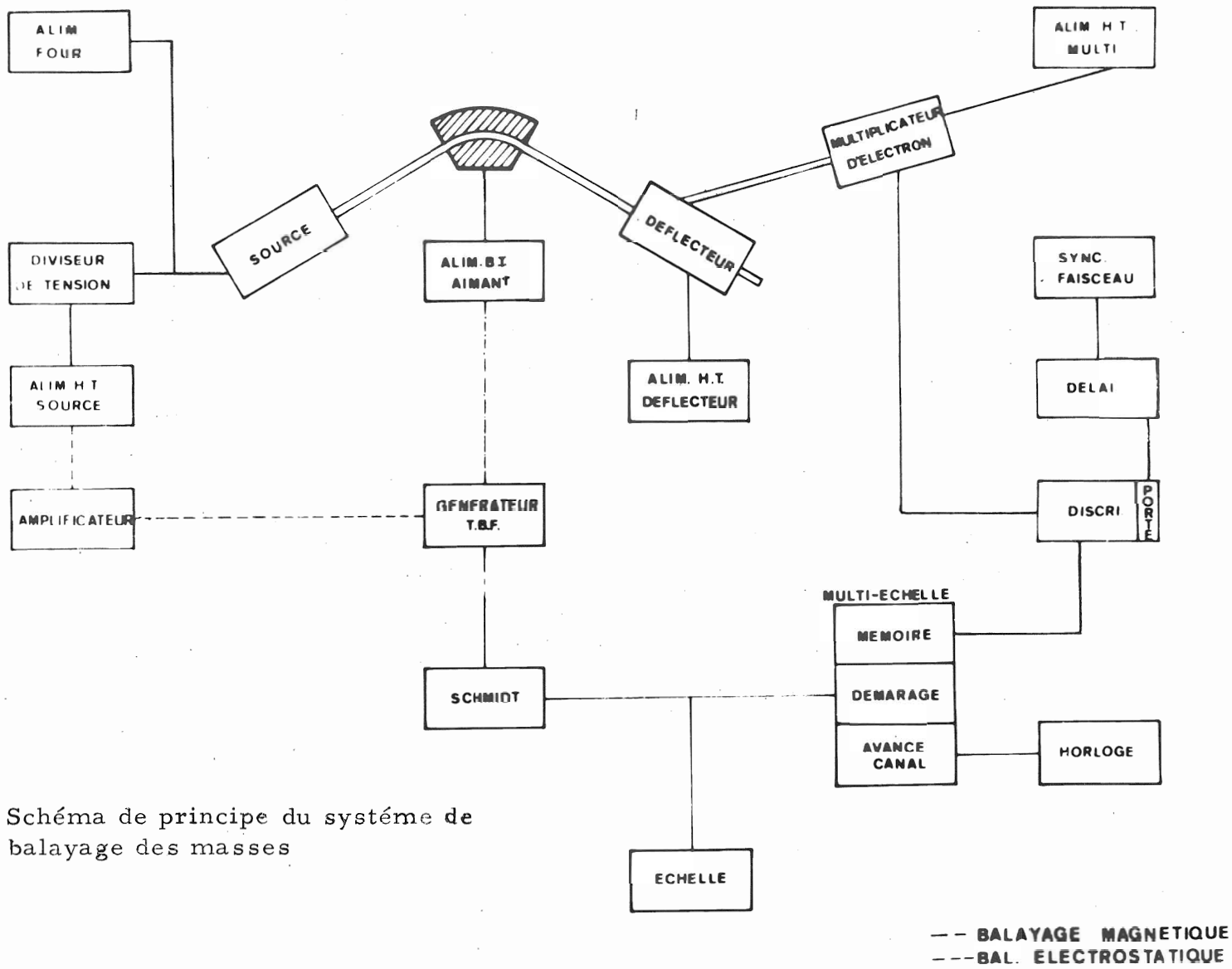


Fig. 8 -

Schéma de principe du systéme de balayage des masses

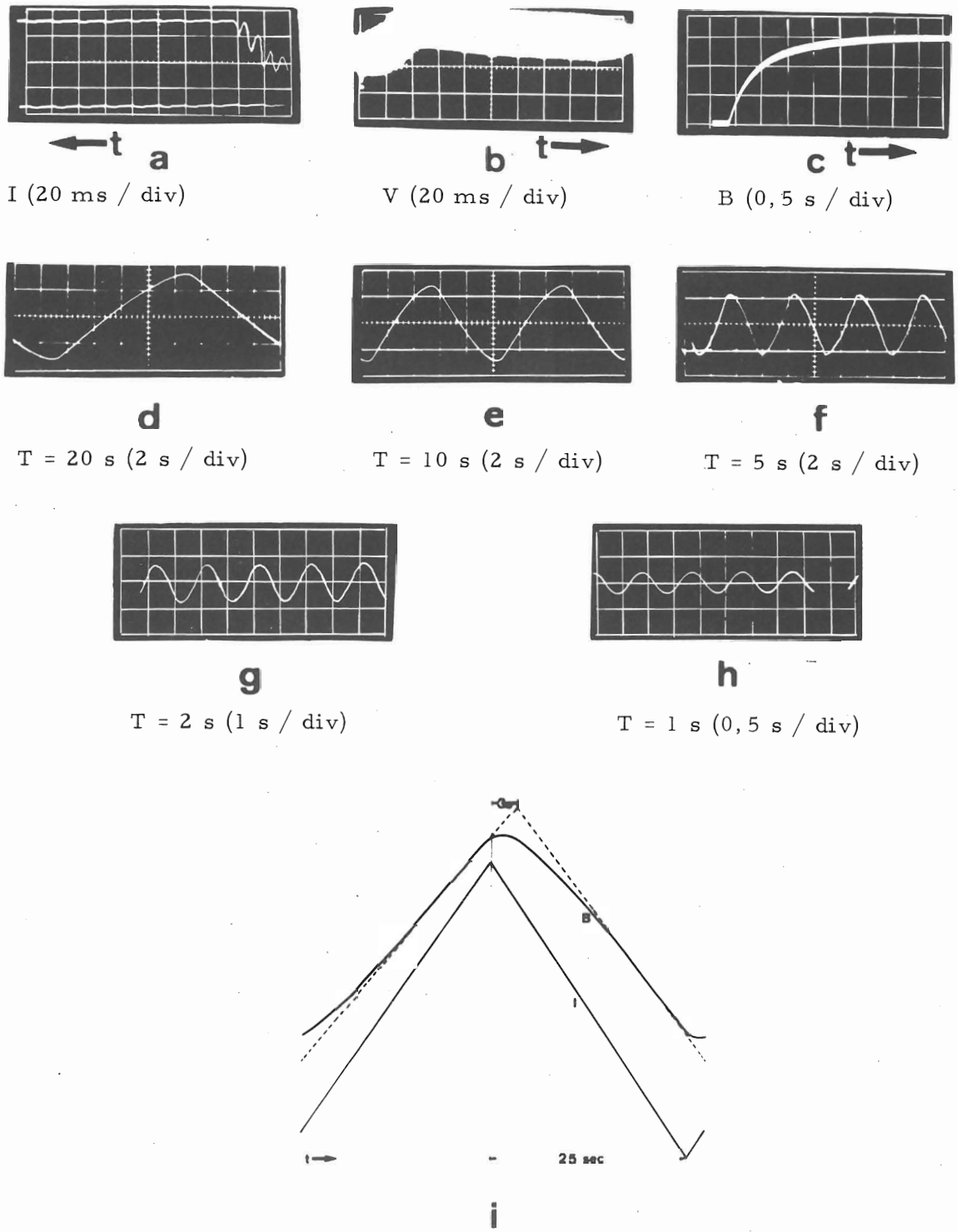


Fig. 9 - Variations en fonction du temps (t) ; a) du courant ; b) de la tension ; c) du champ magnétique ; d) ; e) ; f) ; g) ; h) variations du champ magnétique en fonction de la période T du balayage triangulaire ; i) comparaison courant-champ magnétique.

L'horloge utilisée n'est pas synchronisée avec le balayage magnétique mais l'imprécision provenant de ce fait n'est pas supérieure à un canal.

# DEUXIEME PARTIE

## MESURE DES SECTIONS EFFICACES DES ISOTOPES DE RUBIDIUM ET DE CESIUM.

### A - INTRODUCTION.

Le dispositif expérimental que nous venons de décrire se prête particulièrement bien à la mesure de sections efficaces relatives de production des éléments alcalins formés par réactions nucléaires.

En effet, ce dispositif :

- peut être mis en ligne avec un faisceau de particules,
- sa source à émission de surface assure une bonne sélectivité en Z pour les éléments alcalins,
- sa sensibilité de détection est suffisante compte tenu de l'emploi de la méthode d'accumulation sur multi-échelle,
- il permet d'obtenir une grande précision sur les sections efficaces relatives grâce au fait que les mesures effectuées sur les différents isotopes d'un même élément sont obtenues dans des conditions strictement identiques et en un temps très court.

Toutefois, l'étude d'isotopes à vie courte impose que le temps nécessaire à la diffusion des produits de réaction soit court.

Nous allons donc examiner tout d'abord le problème de la diffusion des isotopes du Rubidium et du Cesium dans les cibles que nous avons construites.

## B - DIFFUSION.

Pour déterminer les sections efficaces de production à partir des spectres de masse tels que celui de la figure 12, il nous faut être certain que les différents isotopes d'un même élément se comportent de façon identique dans le spectromètre de masse. Or, la diffusion dans la source peut introduire une discrimination en fonction de la période radioactive de ces isotopes à cause de leur décroissance partielle dans la source avant leur extraction. Il nous a donc été nécessaire de mesurer les temps de diffusion.

Pour cela nous procédons de la manière suivante (fig. 10) :

Nous réglons le spectromètre sur le radioisotope désiré et après un temps d'irradiation suffisamment long nous interrompons le faisceau de protons et nous enregistrons sur un multi-échelle la décroissance du nombre d'ions détectés. Le déclenchement du multi-échelle se fait à l'aide de relais ou du circuit de Schmitt. L'irradiation et la mesure du courant d'ions sont répétés plusieurs fois afin d'améliorer la précision. Une courbe de diffusion typique est représentée sur la figure 11. Ces courbes sont ensuite analysées et les facteurs de correction en sont déduits.

Avant de passer aux résultats expérimentaux, il est intéressant de comparer la théorie de la diffusion avec les mesures expérimentales :

La diffusion est régie par la loi de FICK qui s'écrit :

$$j = D \text{ grad. } C$$

où j est la densité de courant au point considéré,

D est le coefficient de diffusion,

C est la concentration du produit diffusant.

La solution de cette équation dans le cas particulier d'une plaque infinie d'épaisseur 2l avec pour t = 0, une concentration uniforme du produit diffusant (Co) et une évaporation immédiate à la surface est (11) :

$$C(x, t) = 2\,Co \sum^{\infty} \frac{\cos \frac{\beta n . x}{l} \exp\left\{ -\beta_n^2 \frac{D . t}{l^2} \right\}}{\beta_n . \sin \beta_n}$$ avec

$$\beta_n = (2n + 1) \frac{\pi}{2}$$

Le courant I (t) du produit diffusant sortant des deux faces est donné par :

$$\frac{2\,M_{\infty} . D}{l^2} \sum_{0}^{\infty} \exp\left\{ -\beta_n^2 \frac{D . t}{l^2} \right\}$$

où $M_{\infty}$ est la quantité totale du produit diffusant se trouvant dans le diffuseur.

Ainsi, la valeur du courant I (t) est donnée par une série d'exponentielles qui correspondent à des modes différents.

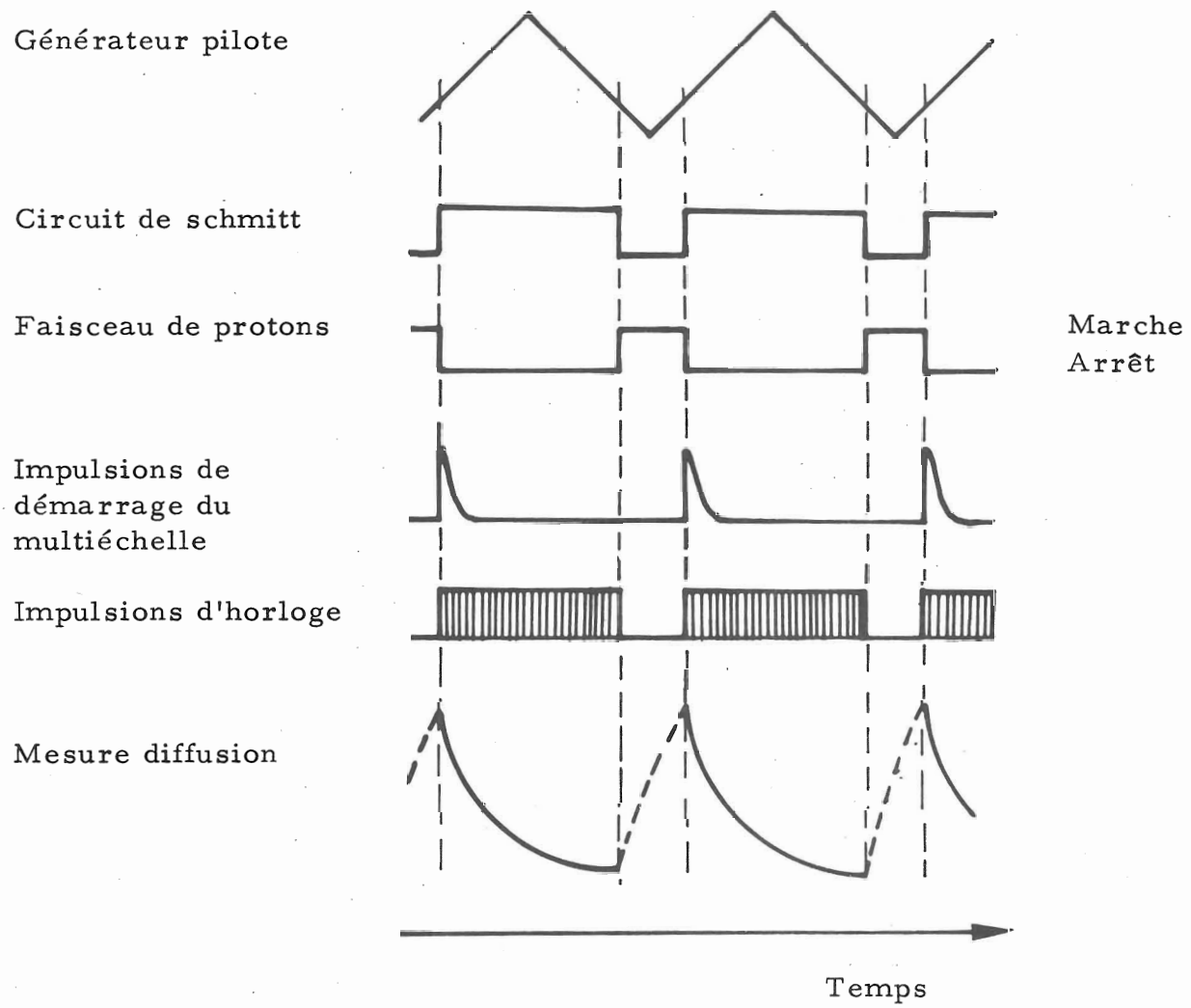


Fig. 10 - Séquence des impulsions de commande pour les mesures de diffusion.

Nous définirons comme période de diffusion (pour chaque mode) le temps nécessaire à l'épuisement de la moitié de la quantité du produit formé diffusant par le mode considéré, cela par analogie avec la définition de la période radioactive ( $\tau$ 1/2). Le rapport des périodes de ces modes est de 1, $\frac{1}{9}$, $\frac{1}{25}$ et la quantité de produits diffusants correspondante est respectivement d'environ 84 %, 9 % et 4 %.

En réalité, il s'avère que si plusieurs modes de diffusion apparaissent bien, les rapports entre les temps de diffusion correspondants ne sont pas les rapports théoriques, et cela pour plusieurs raisons :

- Le graphite que nous utilisons dans nos cibles est polycristallin et plusieurs types de diffusion interviennent donc simultanément : diffusion à l'intérieur des microcristaux et diffusion intergranulaire (30) (60).
- Les parcours finis des produits de fission ne conduisent pas à une distribution uniforme de ces produits dans l'uranium et le graphite de notre cible.
- Les effets de surface (adsorption) qui interviennent lors des rebondissements multiples des atomes évaporés sur les surfaces des plaquettes introduisent des facteurs exponentiels.

Des essais effectués au laboratoire semblent indiquer que ces effets de surface diminuent lorsqu'on améliore le vide dans la chambre à réaction jusqu'au dessous de $10^{-7}$ mm Hg (24). L'amélioration due à l'espacement des plaquettes à l'aide de rondelles de graphite (c de figure 1) est certaine (11).

- Enfin une partie non négligeable des produits de fission ne sont pas projetés hors de l'uranium, et ils diffusent dans cet élément beaucoup plus lentement que dans du graphite.

L'ensemble de ces causes est responsable de la complexité des courbes de diffusion et nous opérons donc la correction sur les courbes expérimentales.

Deux courbes de diffusion typiques correspondant aux cas du Rb à 1650° C et du Cs à 1650° C, sont représentées sur la figure 11.

Comme le nombre de canaux est limité à 400 par le multi-échelle, nous effectuons plusieurs mesures chacune étant optimisée pour l'étude d'un mode de diffusion déterminé.

L'analyse des résultats est effectuée à l'aide de la calculatrice Univac 1107 de la Faculté des Sciences d'ORSAY par le programme FRANTIC (25). Après avoir fixé au départ un nombre d'exponentielles déterminé, ce programme nous permet de déterminer, par la méthode des moindres carrés, les constantes (A et $\lambda$ ) qui indiquent les exponentielles dont la somme est la plus proche de la courbe enregistrée ( $\sum_n A_n e^{\lambda_n t}$).

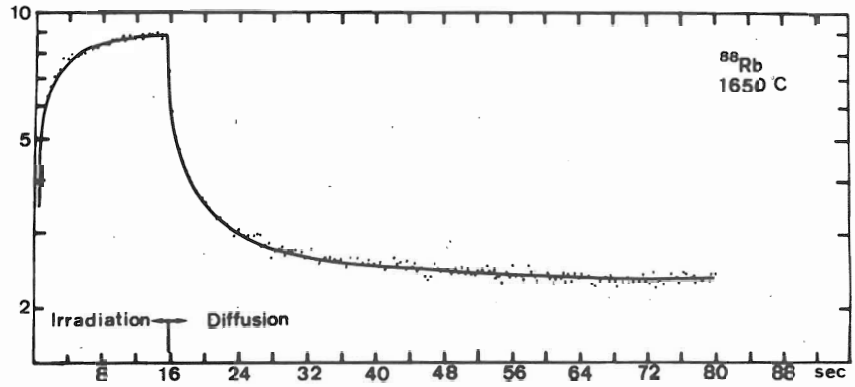


Fig. 11 a - Courbe de diffusion du $^{88}$Rb dans une cible à 1650° C

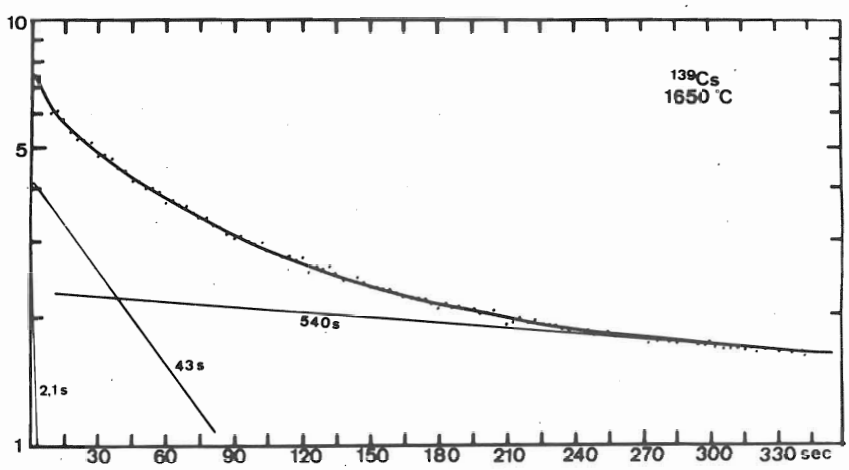


Fig. 11 b - Courbe de diffusion du $^{139}$Cs dans une cible à 1650° C

Ainsi avec deux ou trois enregistrements nous avons ob tenu les résultats indiqués dans le tableau I, pour différents isotopes du Rubidium et du Cesium, produits par fission. Nous avons utilisé un four contenant 50 plaquettes de graphite de 0,07 mm d'épaisseur, sur lesquelles nous avons déposé 3 $mg/cm^2$ d'uranium (0,060 gr au total). Ces plaquettes étaient espacées de 0,1 mm.

Nous avons effectué ces mesures de diffusion sur des isotopes soit stables soit de périodes plus grandes que les périodes de diffusion estimées afin de ne pas avoir à faire une correction pour la période radioactive de l'isotope étudié.

Inversement, en enregistrant la courbe de diffusion d'un isotope dont la période radioactive est inférieure à la période de diffusion, nous avons pu obtenir approximativement la période de cet isotope radioactif (12). Cette méthode sans être précise est toutefois très intéressante car elle ne nécessite aucune installation spéciale de détection de rayonnement ni de transport d'échantillon.

TABLEAU I

| Températures | Isotopes | $A_1$ | $\tau_{1/2}$ | $A_2$ | $\tau_{1/2}$ | $A_3$ | $\tau_{1/2}$ |
|---|---|---|---|---|---|---|---|
| 1500° C | $^{89}Rb$ | 47,7 % | 189 sec. | 36,7 % | 2,18 sec. | 15,6 % | 0,195 sec. |
| 1500° C | $^{139}Cs$ | 63 % | 141 sec. | 37 % | 5,95 sec. | | |
| 1650° C | $^{89}Rb$ | 35,6 % | 162 sec. | 59,2 % | 1,8 sec. | 5,2 % | 0,21 sec. |
| 1650° C | $^{139}Cs$ | 58,7 % | 65 sec. | 41,3 % | 3 sec. | | |

Résultats obtenus après analyse des courbes de diffusion mesurées à différentes températures.

C - RESULTATS RELATIFS AUX SECTIONS EFFICACES de production des différents isotopes du Rubidium et du Cesium.

La technique que nous avons mis au point (voir chapitres précédents) nous a permis d'obtenir les spectres de masse des isotopes du Rubidium depuis la masse 83 jusqu'à la masse 98 (fig. 12) et ceux des isotopes du Cesium de masse 128 à 144 (fig. 13). Les isotopes $^{96}$Rb, $^{97}$Rb, $^{98}$Rb qu'on observe sont nouveaux. L'existence du $^{97}$Rb avait été prévue mais non observée par ADAMS et FINSTON (26) qui avaient étudié la décroissance du $^{97}$Kr. On remarquera aussi que le $^{95}$Rb, dernier isotope connu, correspond à un taux de comptage de 1500 c/s. Ces spectres ont été obtenus avec le four décrit précédemment et un faisceau de protons de $310^{11}$ protons/sec.

Sur les spectres nous avons reporté en pointillé la contribution de la contamination due aux impuretés présentes dans les matériaux de la cible et de la source. Les spectres de masse de la contamination ont été obtenus sans la présence du faisceau de protons, mais sans rien changer aux conditions de fonctionnement du spectromètre de masse.

Nous disposons donc maintenant des données nécessaires pour calculer les sections efficaces indépendantes de production des isotopes du Rubidium et du Cesium produits par fission. Nous allons développer tout d'abord la formule qui nous permet de corriger les pertes dues à la décroissance radioactive des isotopes dans la source d'ions :

Pour chaque mode exponentiel de diffusion, la variation en fonction du temps du nombre d'atomes présents dans la source pour un isotope donné est :

$$\frac{dN}{dt} = F - \frac{N}{\tau} - \frac{N}{\Delta}$$

avec :

F : taux de production de cet isotope dans la source,

$\tau$ : constante de désintégration de l'isotope considéré,

$\Delta$ : constante de temps de diffusion

N : nombre d'atomes présents dans la source au temps t

(N = o , t = o)

$$N = F\left(\frac{\Delta.\tau}{\Delta+\tau}\right) \cdot \left[1 - e^{-t\left(\frac{1}{\tau}+\frac{1}{\Delta}\right)}\right]$$

Le nombre d'atomes du même isotope, ionisé par la source et détecté par le multiplicateur d'électrons par unité de temps est donné par :

$$M = \frac{RN}{\Delta} = RF\left(\frac{\tau}{\tau+\Delta}\right) \cdot \left[1 - e^{-t\left(\frac{1}{\tau}+\frac{1}{\Delta}\right)}\right]$$

où R est le rendement d'ionisation et de transmission du spectromètre de masse. Nous admettons que R est constant pour un élément donné.

A l'équilibre, c'est-à-dire pour une irradiation de $t > 5\Delta$ ou $t > 5\tau$ (en prenant le plus court), ce qui est le cas pour nos enregistrements, nous obtenons :

$$M = RF\frac{\tau}{\tau+\Delta}$$

∴ F est donné par :

$$^{k}F = \alpha\, ^{k}M \left(1 + \frac{\Delta}{\tau_k}\right) \quad \text{où}$$

k est l'indice de l'isotope en question.

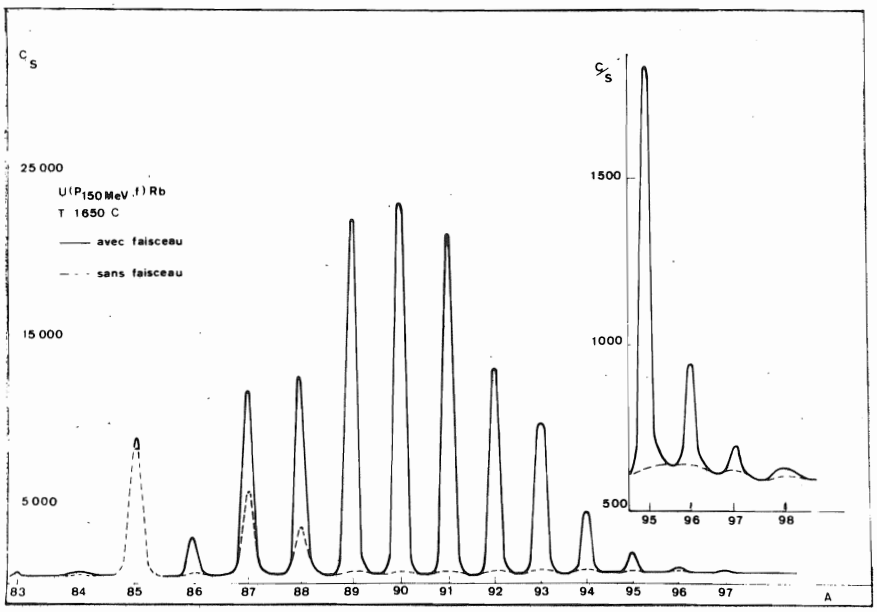


Fig. 12 - Spectre des isotopes du rubidium obtenu par fission de l'uranium naturel avec des protons de 150 MeV.

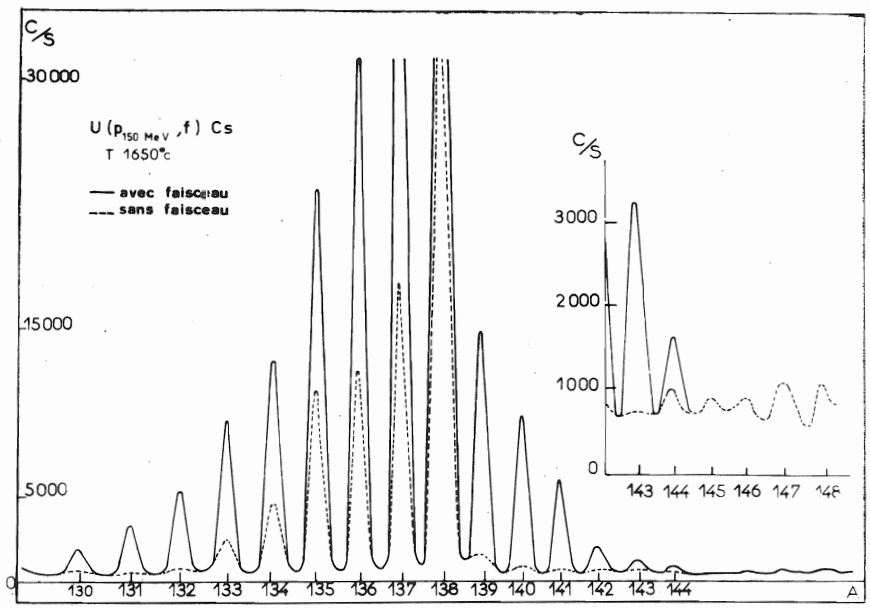


Fig. 13 - Spectre des isotopes du césium obtenu par fission de l'uranium naturel avec des protons de 150 MeV.

Etant donné l'existence de plusieurs modes de diffusion possédant chacun un coefficient $A_n$ et une constante de temps $\Delta n$, il est nécessaire de faire une correction pondérée en fonction de l'importance de chaque mode, la correction à faire est donc de :

$$k_F \propto k_M \frac{1}{\sum_n \frac{An}{1 + \frac{\Delta n}{\tau_k}}}$$

Les sections efficaces relatives obtenues à partir de deux expériences différentes, sont calculées en considérant le poids statistique de chacune d'elles. Ces résultats moyens sont représentés sur la figure 14 (Rb) et la figure 15 (Cs) et couvrent une gamme de masses de 83 à 96 et de 128 à 144 respectivement. Les périodes radioactives des $^{97}$Rb et $^{98}$Rb étant inconnues nous n'avons pas pu placer ces isotopes sur la courbe, mais une extrapolation de celle-ci est possible et elle nous permet de fixer un ordre de grandeur à la période radioactive du $^{97}$Rb et du $^{98}$Rb (voir en 3ème partie).

Les résultats ont été normalisés par rapport aux sections efficaces absolues du $^{132}$Cs (4,3 mb) et du $^{86}$Rb (1,4 mb) mesurées par FRIENDLANDER, FRIEDMAN, GORDON et JAFFE (27). La valeur pour 150 MeV a été interpolée des résultats obtenus à 100 et 200 MeV par ces auteurs.

Nous discuterons plus loin de l'interprétation qu'il est possible de donner au fait que les isotopes $^{87}$Rb et $^{137}$Cs s'écartent très notablement de l'ensemble des autres points.

Les barres d'erreurs indiquées sur les courbes sont les erreurs statistiques et incluent de façon pondérée: le taux de comptage avec et sans faisceau, l'erreur sur le temps de diffusion et le coefficient $A_n$ donnés par l'analyse, et l'erreur sur la mesure de la période de l'isotope radioactif. Ces erreurs sont assez faibles ($\pm$ 5 % pour le $^{89}$Rb) pour les isotopes à vie longue à cause du taux de comptage et de la faible correction de diffusion à leur apporter. Par contre, pour les isotopes à vie courte les barres d'erreurs augmentent ($\pm$ 37 % pour le $^{96}$Rb) avec l'importance de la correction (pour le $^{96}$Rb il faut multiplier le nombre d'ions collectés par 8,3).

## D - DISCUSSION SUR LA PRECISION DE NOS RESULTATS.

Nous discuterons ci-dessous les différents types de discrimination et d'erreurs possibles et leur importance relative.

1) Nous examinons tout d'abord les effets pouvant résulter d'une discrimination isotopique.

- Discrimination d'évaporation

On sait que dans les sources d'ions à évaporation thermique classique il existe une discrimination isotopique due au fractionnement pendant l'évaporation de l'échantillon. On admet que cette discrimination varie avec $\left(\frac{M_1}{M_2}\right)^{1/2}$, $M_1$ et $M_2$ étant les masses des isotopes évaporés.

Dans les conditions où nous opérons, la production continue ne permet pas à cette discrimination d'être cumulative, comme dans le cas où l'on effectue un dépôt sur un filament. Comme nous travaillons en régime d'équilibre, cette discrimination est nulle pour les isotopes de période longue et faible pour les autres isotopes.

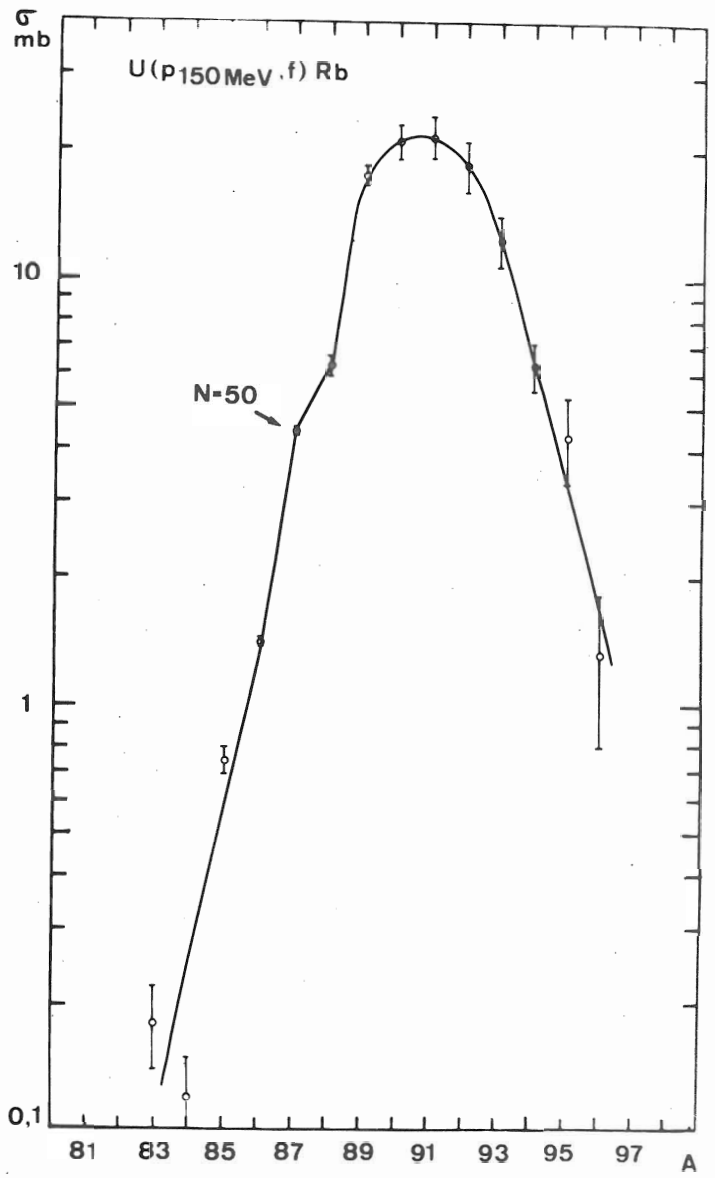


Fig. 14 - Sections efficaces de production des isotopes du rubidium calculées à partir des spectres de masses et des coefficients de diffusion. Les valeurs absolues ont été obtenues après normalisation par rapport au $^{86}$Rb (1,4 mb (7) ).

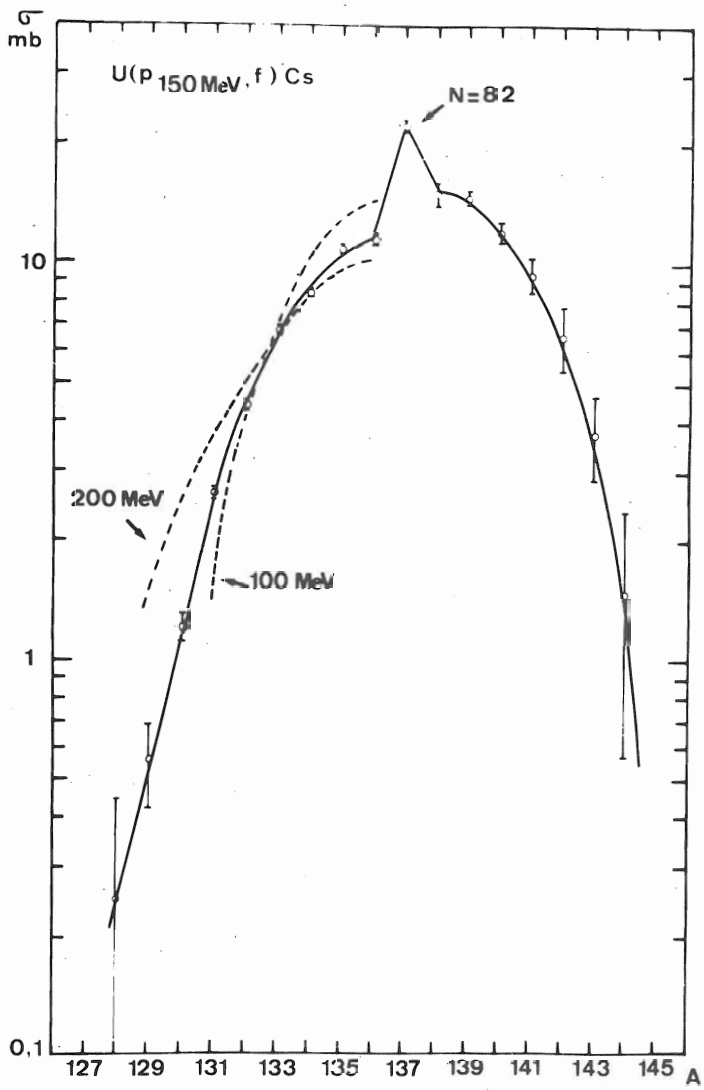


Fig. 15 - Sections efficaces de production des isotopes du césium calculées à partir des spectres de masses et des coefficients de diffusion. Les valeurs absolues ont été obtenues après normalisation par rapport au $^{132}Cs$ (4, 3 mb (7) ).

- Discrimination intervenant lors de l'extraction des ions

Cette discrimination est très faible pour les différents isotopes d'un élément à condition de maintenir constante l'énergie des ions. Ceci est obtenu en opérant le relevé du spectre de masses à l'aide d'un balayage de champ magnétique.

- Discrimination due au multiplicateur d'électrons

Le nombre d'électrons secondaires émis par la première dynode du multiplicateur est fonction de la vitesse de l'ion incident (28). L'énergie des ions étant fixée, il existe donc une discrimination isotopique qui varie approximativement en fonction de $\sqrt{M}$.

Nous diminuons l'importance de ce type de discrimination en employant un système de comptage d'impulsion muni d'un discriminateur dont le seuil est réglé à une valeur telle que le rendement soit à peu près égal pour tous les isotopes étudiés (voir 1ère partie).

- Discrimination due à la diffusion

Les différentes théories de la diffusion (29) prévoient une variation des constantes de diffusion qui est fonction de la masse (M) de l'atome diffusant et l'on devrait donc s'attendre à ce que l'extrapolation des résultats obtenus pour une masse donnée conduise à des erreurs. En réalité, dans nos expériences, les corrections calculées pour les $^{91}$Rb, $^{92}$Rb, $^{93}$Rb à partir de mesures de diffusion soit du $^{87}$Rb, $^{88}$Rb ou $^{89}$Rb, ont donné des résultats identiques, aux erreurs expérimentales près. Cela est probablement dû à la complexité des modes de diffusion et aux effets de surface qui ne sont pas prévus par la théorie.

- Discrimination due au recul des fragments de fission

De nombreuses expériences ont montré que l'énergie de recul des différents fragments de fission n'est pas la même pour différents isotopes d'un même élément (18). Il en résulte que la distribution des atomes de Rb et de Cs dans le graphite de notre source et le nombre d'atomes stoppés dans l'uranium de la cible ne sont pas les mêmes pour les différents isotopes de ces éléments. Un effet sélectif résultant des variations de profondeur d'arrêt s'ajoute donc à la discrimination de masse de la diffusion.

Les fragments s'arrêtant dans l'uranium diffusent très lentement (temps de diffusion mesuré approximativement : 200 sec.). Mais pour améliorer la précision de nos corrections, nous en avons tenu compte dans nos calculs.

Il existe encore des périodes de diffusion bien plus longues, mais nous ne les avons pas prises en considération (fig. 16) car l'erreur qui en découle est très faible par rapport aux corrections précédentes. Toutes ces discriminations dues à la diffusion et au recul sont certainement atténuées par l'existence des effets de surface, constants pour un élément donné et dont la contribution aux périodes de diffusion semble être importante. Le fait d'obtenir les mêmes sections efficaces relatives lors d'expériences effectuées à deux températures différentes, 1500° C et 1650° C, confirme nos estimations.

2) Erreurs provenant de la sensibilité aux rayonnements $\beta$ du multiplicateur d'électrons.

Ainsi que nous l'avons vu plus haut le multiplicateur d'électrons est sensible aux rayonnements $\beta$ provenant de la décroissance radioactive des isotopes collectés sur la première dynode. Le nombre d'impulsions détecté, en gardant le champ magnétique constant, et en régime d'équilibre, est par ce fait majoré d'approximativement 10 %. Par contre à la cadence où nous balayons le champ magnétique (40 sec. par cycle, 40msec. par canal) cet effet est réduit :

a) Pour les corps ayant une période longue par rapport à la durée du comptage par canal, la contribution résiduelle provenant des isotopes déposés lors des cycles précédents s'ajoute au bruit de fond qui tout en n'étant pas uniforme, peut être déduit du signal.

b) Pour les corps ayant les périodes $\beta$ les plus courtes (230 msec) la décroissance a lieu pendant l'enregistrement de la raie et il en résulte au maximum une majoration de 3 à 4 % du signal que l'on peut calculer par la formule :

$$\Delta N_k \simeq 0,1 \sum_n N_{kn} \lambda_k e^{-\lambda_k (T_s - T_n)}$$

où :

$\Delta N_k$ est l'accroissement du taux de comptage sur le sommet de la raie.

$N_{kn}$ est le nombre d'ions collectés, par canal, par cycle pendant l'enregistrement de la raie k, n étant le numéro du canal (n = 0 au début de la raie k)

$\lambda_k$ la constante de désintégration de l'isotope k

$T_n$ le temps qui s'écoule entre le début de l'enregistrement de la raie k (n = 0) et le canal n

$T_s = T_n$ au sommet de la raie.

3) Phénomènes susceptibles de rendre nos résultats partiellement cumulatifs.

Deux phénomènes peuvent intervenir :

a) L'ionisation d'éléments autres que le rubidium et le Cesium pendant les mesures.

Comme nous l'avons montré plus haut théoriquement, la sélectivité de l'ionisation de surface pour les alcalins dans un four en tantale ne permet pas d'ioniser d'autres éléments (Ba et Sr en particulier), aux températures auxquelles nous travaillons, avec un rendement suffisant pour que nos résultats soient cumulatifs. La contribution n'atteint pas 5 % pour le barium et 0,5 % pour le strontium.

b) La décroissance radioactive d'éléments produits dans la cible en même temps que les isotopes que nous étudions avant leur diffusion hors de la source : Barium et Xénon pour le Césium, Strontium et Krypton pour le Rubidium.

Par référence aux courbes des figures 14 et 15, nous distinguerons trois régions.

- Région des isotopes déficients en neutrons :
($^{82-88}Rb$ et $^{128-134}Cs$). Dans cette région les résultats obtenus ne sont pas cumulatifs étant donné que les isotopes du Krypton et du Strontium d'une part, du Xénon et du Barium d'autre part, sont soit stables soit ont des périodes radioactives longues.

- Région voisine du sommet de la courbe des sections efficaces.
($89 < A < 92$ et $135 < A < 140$).
Dans cette région les périodes de décroissance des isotopes du Kr ou du Xe sont suffisamment courtes sauf pour les $^{135}Xe$ et le $^{136}Xe$ (3,18 min. pour $^{89}Kr$, 33 sec. pour $^{90}Kr$, 3,9 min. pour $^{137}Xe$, 17 min. pour $^{138}Xe$, 41 sec. pour $^{139}Xe$, etc.) pour que ces isotopes puissent décroître sur les isotopes du Rubidium et du Cesium correspondants, sauf si leur temps de diffusion est inférieur ou du même ordre de grandeur que celui des éléments alcalins.

Malheureusement, les données sur la diffusion des gaz rares et autres éléments dans l'uranium et le graphite sont peu nombreuses et ne correspondent pas à nos conditions expérimentales (30) (60). Il semblerait toutefois qu'à cause de sa taille (3,8 Å) le Xénon diffuse plus lentement que le Césium (3,3 Å) dans le graphite qui a un réseau cristallin hexagonal avec une distance interlaminaire de 3,4 Å. Nous ne pouvons donc pas chiffrer l'erreur provenant du Xénon; quant au Krypton, ses dimensions étant plus petites que la distance interlaminaire, l'effet de taille n'interviendrait pas.

- Région des isotopes riches en neutrons

($92 < A < 96$ et $141 < A < 144$).

Dans cette région les courbes de distribution de charge calculées par H. GAUVIN (31) pour la fission de l'uranium à 150 MeV et représentées sur la figure 17 indiquent que les sections efficaces de production des isotopes du Krypton et du Xénon sont bien plus faibles que celles des isotopes de même masse du Rubidium et du Césium. La contribution de ces éléments est donc négligeable même dans le cas d'une diffusion lente des gaz rares.

4) Remarque concernant la contribution des neutrons.

Des neutrons rapides sont formés par l'interaction des protons du faisceau avec la matière de la cible épaisse (50 à 500 mgr U) aussi la fission que nous observons n'est-elle pas due aux seuls protons. Cette contribution des particules secondaires peut être calculée à partir des résultats de PETER (32) qui a mis en évidence que dans le cas de l'uranium, 10 à 12 neutrons sont émis par fission à 150 MeV.

La section efficace totale de collision inélastique des protons sur l'uranium à 150 MeV est de 1,7 barn et la fission intervient pour environ 80 % de cette valeur. La section efficace de fission de l'uranium naturel par des neutrons rapides étant environ de 1,2 barn la contribution des neutrons secondaires provenant de la fission dans nos expériences est inférieure à 1 %. A cela il faut ajouter toutefois les neutrons provenant du réflecteur en tantale. Nous obtenons donc une contribution totale due aux réactions avec les neutrons secondaires, inférieure à 2 %.

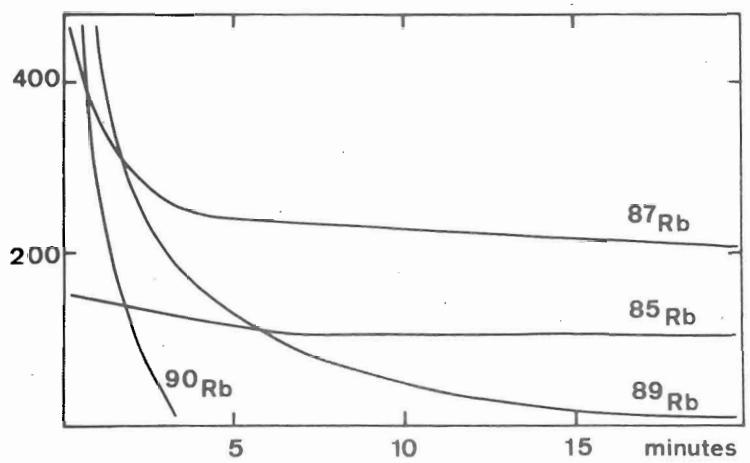


Fig. 16 - Exemple des périodes longues de diffusion. A noter que le $^{90}Rb$ et $^{89}Rb$ décroissent également par désintégration radioactive.

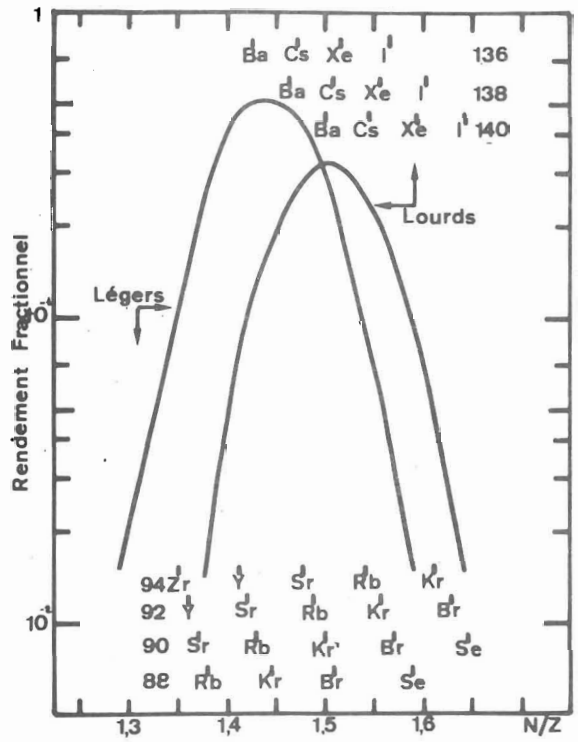


Fig. 17 - Courbes de distribution de charge dans la fission de l'uranium naturel par des protons de 150 MeV.

A 3 GeV et pour une cible de 100 mgr d'uranium FRIEDLANDER et al (27) chiffrent à 7 % la contribution due aux particules secondaires.

Nous voyons donc que cette contribution dans notre cas n'est pas importante.

## E - DISCUSSION DES RESULTATS

Les résultats que nous venons d'exposer montrent bien que la méthode de la spectromètrie de masse en ligne permet d'obtenir des données expérimentales nouvelles dans l'étude des réactions nucléaires, telle que la fission. Notre objectif n'étant pas l'étude de ce phénomène, nous ne discuterons que brièvement dans ce qui suit, les résultats obtenus sur ce sujet et nous passerons ensuite à la description des résultats concernant les applications à la spectroscopie nucléaire.

### 1) Comparaisons de nos résultats avec les sections efficaces publiées antérieurement.

Notre courbe des sections efficaces indépendantes de production des isotopes du Césium qui comporte à la fois des produits déficients en neutrons et des produits riches en neutrons est en excellent accord avec les valeurs publiées par FRIEDLANDER et al (27) pour la fission d'uranium naturel par des protons de 100 et 200 MeV, et cela pour les masses 128 à 136. La méthode utilisée par FRIEDLANDER et al ne leur a pas permis de faire des mesures sur des isotopes dont la masse est supérieure à 136.

Les études effectuées avant notre travail sur la mesure des sections efficaces indépendantes de production des isotopes du Rubidium n'ont porté que sur deux isotopes de cet élément (27) et il ne nous a donc pas été possible d'établir une courbe que nous aurions pu comparer à la nôtre.

2) Effets de couches.

Il est clairement apparent sur la figure 15 que la section efficace de production du $^{137}Cs$ ressort très nettement (+ 58 %) de la courbe moyenne, de même que sur la figure 14 la section efficace du $^{87}Rb$ (+ 50 %).

Ces noyaux ayant respectivement 82 et 50 neutrons, nous supposons que cette augmentation de la section efficace est en grande partie due à l'existence de couches fermées de neutrons pour ces valeurs.

Signalons avant d'examiner brièvement les origines possibles de ces valeurs des sections efficaces du $^{137}Cs$ et $^{87}Rb$, que l'effet observé ne paraît pas explicable par des erreurs expérimentales. Nous avons répété nos expériences à différentes températures et avec différentes épaisseurs d'uranium, le graphite ayant toujours une épaisseur de 0,07 mm :

- Pour le $^{137}Cs$ nous avons observé le même effet avec une cible de 8 mgr/cm$^2$ à 1300° C et avec une cible de 3 mgr/cm$^2$ à 1500° C et 1650° C.
- Pour le $^{87}Rb$ avec une cible de 1 mgr/cm$^2$ à 1650° C et avec une cible de 3 mgr/cm$^2$ à 1500° C et 1650° C.

Un seul point mérite d'être mentionné : il concerne la diffusion du Xénon qui pourrait être suffisamment lente pour permettre la décroissance de certains isotopes du Xénon sur les Césium correspondants dans la cible, et augmenter ainsi la section efficace apparente de ceux-ci.

Pour examiner la possibilité d'une accumulation due à la décroissance radioactive des isotopes du Xénon (voir table des isotopes, p. 8) nous avons supposé, pour les sections efficaces de production du Césium, une courbe lisse et symétrique calculée à partir de la courbe des distributions de charges (fig. 17). Nous avons attribué la différence entre cette courbe lisse et la courbe expérimentale au Xénon (fig. 18).

En comparant cette différence avec les sections efficaces de production du Xénon, calculées à partir de la courbe de distribution de charge, nous trouvons qu'une contribution de 50 % serait due au $^{138}$Xe, à cette masse. La période moyenne de diffusion du Xénon que l'on peut en déduire serait de l'ordre de 17 minutes, ce qui permettrait une désintégration quasi totale du $^{137}$Xe (3,9 m) sur le $^{137}$Cs et qui ramenerait ainsi sur la courbe lisse le point expérimental de la masse 137. Mais alors, les sections efficaces des isotopes du Xénon ($A > 140$) déduites de la figure 18 seraient supérieures d'au moins un facteur deux aux sections efficaces prévues par le calcul (A condition que la courbe de distribution de charge soit assez précise).

Il semble donc difficile d'attribuer la forme de la courbe uniquement à l'accumulation du Xénon. Il semble également improbable qu'une accumulation due au $^{137}Xe$ reste constante au cours d'expériences effectuées dans des conditions différentes et notamment à des températures de plus en plus hautes. Aussi devons-nous rechercher si un processus, dans la réaction elle-même, peut donner lieu à cet effet sélectif déjà observé sur la distribution de masse (cumulative) en fission par différents auteurs cités par HYDE (18).

Les premiers à observer l'existence de déviations par rapport à une courbe lisse ont été THODE et son équipe (33-35) qui ont observé une abondance anormale du $^{134}Xe$ dans la fission thermique de $^{235}U$. STANLEY et KATCOFF (36) ont également observé une anomalie dans la production de $^{136}I$ par fission thermique de $^{233}U$, $^{235}U$ et $^{239}Pu$.

Un effet de couche ayant lieu lors de la scission devrait se réfléchir sur le fragment complémentaire. Effectivement GLENDENIN et al (37) ont mesuré des sections efficaces de production anormalement hautes dans la région des masses 98 à 100 (particulièrement le $^{100}Mo$) cette région est complémentaire des $^{134}Te$, $^{135}I$, $^{136}Xe$ (N = 82 neutrons).

Dans la région de 50 neutrons de faibles structures fines ont été observées par WANLES et THODE (35), FLEMING et al (38), et KAPLAN et CORYELL (39).

Des structures fines ont été également observées (38) dans la fission par des neutrons rapides.

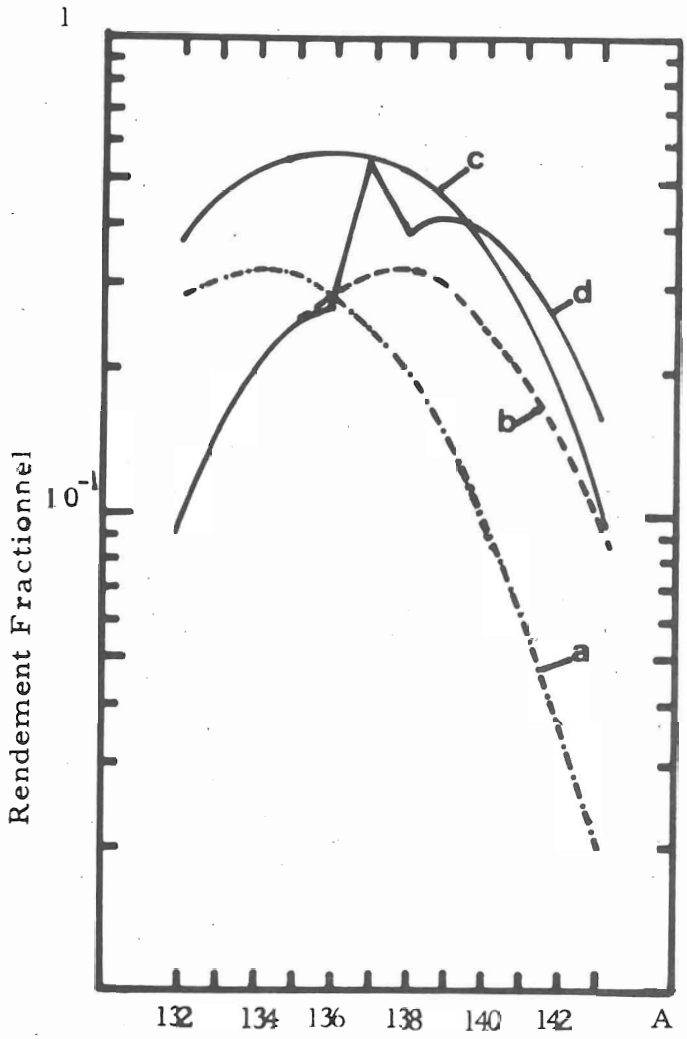


Fig. 18 - Rendements fractionnels de production dans la fission à 150 MeV
a) Courbe calculée pour le xenon à partir de la distribution de charge.
b) Courbe calculée comme (a) mais pour le césium.
c) La somme des courbes a et b (Xe + Cs)
d) Courbe expérimentale normalisée sur les isotopes A < 136 du césium.

HAGEB Ø (40) signale une structure observée dans la distribution isotopique des masses 115-140, provenant de la fission de l'uranium naturel par des protons de haute énergie.

Avant de discuter de la provenance de l'effet de couche que nous observons, il est intéressant de rappeler brièvement les étapes qui mènent à la fission par des protons de 150 MeV. On admet généralement que la première étape est une cascade rapide conduisant à l'éjection de plusieurs nucléons, la seconde étape étant une desexcitation du noyau résiduel par évaporation de différentes particules. Dans le cas des noyaux les plus lourds (U, Th, etc.) la fission peut entrer en compétition avec ces processus dans la deuxième étape.

Cette fission débute par une déformation du noyau suivie de sa scission, et les fragments primaires ainsi obtenus se desexcitent eux-mêmes par évaporation.

Sur la base de ce modèle il est intéressant de voir à quel stade de la fission pourrait apparaître l'effet de couche que nous observons.

a) Lors de la scission.

Le noyau excité en se déformant passe par plusieurs configurations. Parmi ces différentes configurations, celles correspondant à des couches fermées sont plus réfractaires aux déformations ultérieures et dans ce cas la scission se ferait avec un des fragments possédant une couche fermée. Cet effet qui a été proposé par WILES et al (41) n'est valable que si le noyau est faiblement excité comme dans le cas de la fission thermique (fission asymétrique). Or, J. GALIN dans une étude récente (42) chiffre la contribution des modes symétriques et asymétriques dans la fission à 150 MeV. On peut en conclure que dans la moitié des cas les isotopes $^{87}Rb$ et $^{137}Cs$ proviennent de la fission asymétrique, ce qui fait qu'une préférence de structure pendant la scission peut être envisagée.

b) Au cours de l'évaporation de neutrons par les fragments de fission. Deux cas sont à envisager :

- L'énergie de liaison du dernier neutron dans les isotopes à couche fermée est supérieure (de 2 à 3 MeV) à celle des isotopes voisins plus lourds. Au cours de l'évaporation des neutrons après la fission des fragments primaires riches en neutrons évaporeront donc plus facilement un neutron que les noyaux possédant 82 ou 50 neutrons et leur section efficace sera donc inférieure. HEIFETZ et PETER (61) ont observé une structure dans l'évaporation des neutrons pour les fragments de masse 130 à 140.

- FARRAR et THOMLINSON (43) et TERREL (44) ont calculé que la variation lente du nombre de neutrons évaporés par les fragments primaires serait la cause des structures fines vues dans les courbes de masse en fission thermique. Cette explication pourrait être envisagée pour les courbes de sections efficaces cumulatives, mais il est difficile de voir comment une variation lente du nombre de neutrons évaporés pourrait donner à elle seule une discontinuité importante (portant sur une seule masse) dans une distribution isotopique.

- L'effet de couche que nous observons pourrait donc provenir des deux étapes de la fission. Scission préférentielle d'une part, et arrêt d'évaporation de neutrons à la couche fermée d'autre part.

Actuellement, il ne nous est donc pas possible de conclure si l'effet observé provient d'une accumulation dans la cible ou d'un processus nucléaire. Des expériences sur la mesure des constantes de diffusion des gaz rares sont prévues pour résoudre ce problème.

## F - REMARQUES CONCERNANT LES EXPERIENCES EN LIGNE.

### 1) Contamination par des éléments naturels.

Sur les spectres de masses enregistrés nous voyons que les quantités d'isotopes stables présents dans notre source ne sont pas négligeables.

Les isotopes de Rubidium, Strontium et Ytrium, au voisinage des masses 85 - 90 et de Cesium, Barium, Cerium, Praséodyme, Lantane et Néodyme vers les masses 140 nous donnent des pics en l'absence de faisceaux de protons. Cette contamination est partiellement réduite en choisissant soigneusement les matériaux entrant dans la fabrication de la source et de la cible et en dégazant tous les éléments de la source à haute température et sous vide pendant quelques jours. Nous avons réussi à diminuer considérablement de cette façon le Rubidium et le Cesium naturel mais non le Strontium et le Barium. En ce qui concerne ces éléments, un choix judicieux de la température à laquelle nous travaillons permet d'éliminer ou de diminuer de façon appréciable leur contribution au spectre de masse.

Comme on le voit sur les figures 12-13, le nombre d'ions produit par fission est en moyenne bien supérieur à la contamination et il suffit de soustraire ce fond naturel.

C'est le cas du $^{87}$Rb et des $^{84-88}$Sr pour les fragments légers et des $^{133}$Cs, $^{130-138}$Ba, $^{139}$La, $^{136-142}$Ce et $^{141}$Pr pour les fragments lourds.

Par contre les radio-isotopes très riches ou très pauvres en neutrons ont des sections efficaces de production relativement faibles et des périodes de décroissance radio-actives courtes. De ce fait, la contamination ($^{85}$Rb et $^{142-150}$Nd) devient gênante. Heureusement l'ionisation du Nd est très sensible à la température et en choisissant 1650° C ou au-dessous, nous pouvons quand même détecter les isotopes du Cesium jusqu'à la masse 144 (à 1650° C 150c/s de $^{144}$Cs et 60 c/s de $^{144}$Nd).

Au-dessus de la masse 90 nous n'avons pas de contamination visible.

Le fait de détecter une contamination due à des éléments naturels non alcalins n'infirme pas ce qui a été dit plus haut au sujet de la sélectivité de l'ionisation de surface pour les alcalins; en effet, les quantités d'éléments stables contaminant, exprimées en nombre d'atomes, sont de plusieurs ordres de grandeurs supérieures aux quantités de ces mêmes éléments produits par fission.

2) Influence de la température sur le nombre d'ions détectés.

Ainsi que nous l'avons montré précédemment le rendement d'ionisation des isotopes du Rubidium et du Cesium diminue avec l'accroissement de la température, nous avons effectivement observé cet effet (courbe 1, figure 19).

Par contre, lorsque les mesures sont effectuées sur un isotope à période courte de cet élément ($^{92}$Rb par exemple), la variation avec la température est la résultante de deux effets : variation de l'efficacité d'ionisation et réduction du temps de diffusion. On obtient alors la courbe 2 de la figure 19. Il est clair qu'il existera donc une température optimale pour chaque isotope.

3) Possibilité d'étudier d'autres éléments que les alcalins.

Il a été montré par différents auteurs qu'il est possible d'ioniser sélectivement les halogènes par ionisation de surface. Quelques études sont résumées dans le livre de KAMINSKY (14). Au laboratoire, R. KLAPISCH et J. CHAUMONT ont proposé d'élargir l'étude d'isotopes à vie courte aux éléments halogènes produits par spallation, fragmentation (Fluor et Chlore) et par fission (Brome et Iode). On pourrait également étudier d'autres éléments, comme par exemple le Barium et le Strontium, en ionisant sur du Rhénium mais alors se poseront des problèmes de séparation chimique.

L'Indium et le Gallium qui ont des potentiels d'ionisation bien inférieurs à ceux de leurs voisins pourraient également être ionisés sélectivement par l'effet thermoionique.

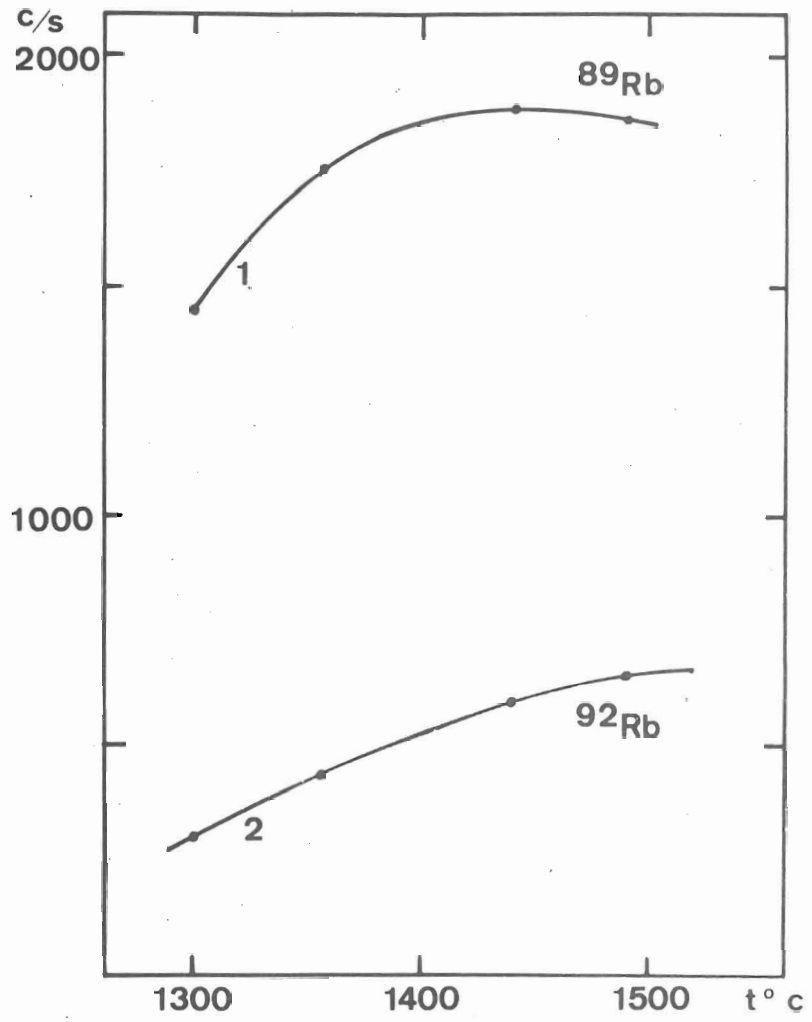


Fig. 19 - Influence de la température sur le nombre d'ions détectés. A noter la différence entre la courbe 1 ($^{89}Rb$) où l'influence de l'ionisation est prédominante et la courbe 2 ($^{92}Rb$) où l'influence de la diffusion est prédominante.

# TROISIEME PARTIE

## APPLICATION A LA SPECTROSCOPIE NUCLEAIRE.

Après avoir mesuré les sections efficaces des isotopes du Rubidium et du Cesium, nous avons effectué d'autres expériences avec des fours contenant 100 plaquettes de 15 mm de diamètre, avec 3 mg/cm$^2$ d'Uranium (0,5 gr au total) et avec un faisceau de protons amélioré. Ces modifications nous ont permis d'obtenir sur le $^{90}$Rb 160 000 c/s au lieu de 25 000 c/s avec le four précédent. En retirant le diaphragme de 10 mm de la sortie du synchrocyclotron on augmente encore le taux de comptage d'un facteur deux.

Ces résultats nous ont amené à envisager l'étude, par spectroscopie nucléaire, des noyaux produits. Nous avons donc modifié notre spectromètre de masse afin de pouvoir accumuler sur un collecteur les atomes d'un isotope séparé et d'étudier ainsi le rayonnement émis.

Nous exposerons tout d'abord la méthode utilisée pour l'étude des rayonnements $\beta$, nous indiquerons plus loin les modifications apportées pour les mesures $\gamma$ et pour la détection des neutrons.

### A - METHODE EXPERIMENTALE.

Le dispositif que nous avons réalisé pour les études de spectroscopie $\beta$ est représenté sur la figure 20 et une brève description en a été publiée (12). Il comporte quatre parties principales que nous allons décrire :

1) Le déflecteur d'ions.

Nous avons incorporé au spectromètre de masse un déflecteur électrostatique, (1) fig. 20, après la fente du collecteur classique. Ce déflecteur nous permet d'aiguiller les ions soit vers le multiplicateur d'électrons (à 45°) (2) soit vers un collecteur (3) placé dans l'axe du spectromètre.

Ce déflecteur est formé de deux électrodes de 20 par 30 mm espacées de 10 mm. L'électrode supérieure, portée à - 2.200 V, est pliée pour permettre le passage des ions défléchis. L'électrode inférieure est à la masse.

Des essais effectués en mettant deux multiplicateurs d'électrons, l'un sur l'axe du tube du spectromètre et de l'autre sur le tube à 45° ont fait ressortir que le pouvoir séparateur et le rendement de détection étaient identiques dans les deux positions.

2) Le collecteur.

Le collecteur que nous avons construit (3) fig. 20, contient un ruban en acier inoxydable (4) de 80 mm de largeur et 0,05 mm d'épaisseur. Les ions séparés sont collectés sur ce ruban et dès qu'une mesure est terminée le ruban est déplacé à l'aide d'un moteur. Ceci permet d'éloigner du détecteur les descendants de l'isotope étudié, qui s'accumulent pendant le mesure, et de collecter sur une surface propre soit une nouvelle quantité de l'isotope étudié, soit un autre isotope.

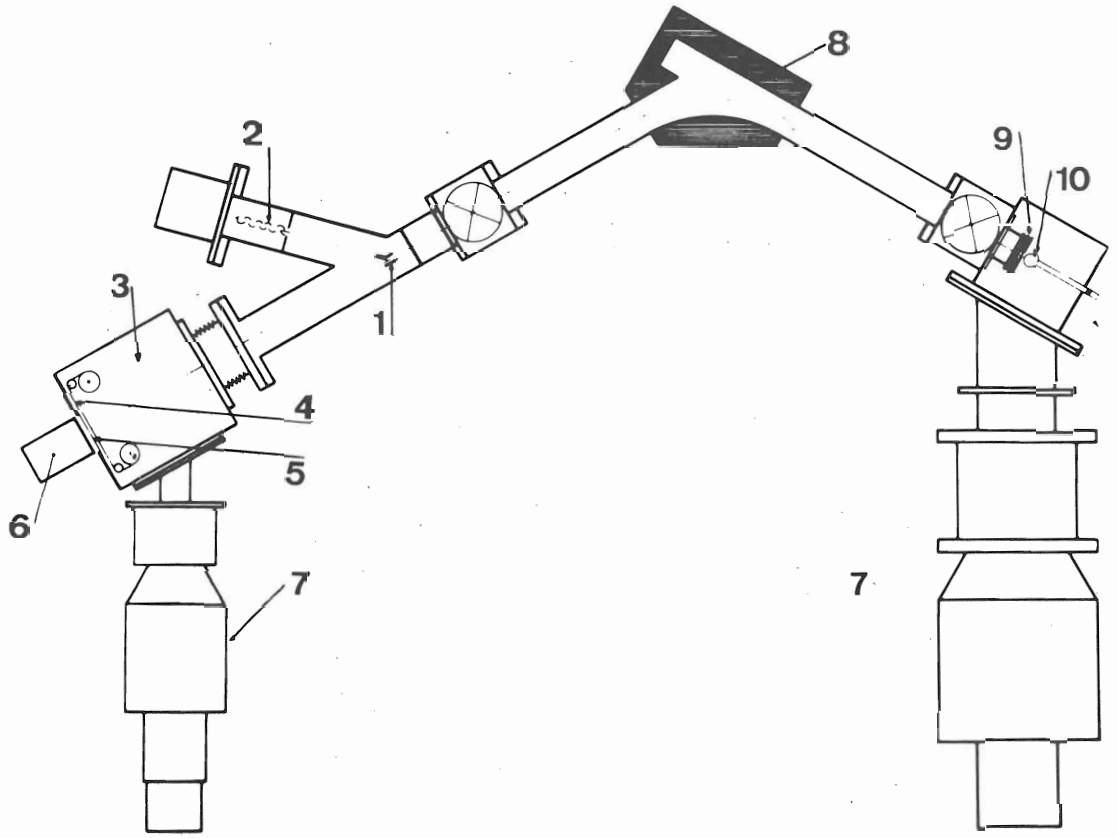


Fig. 20 - Dispositif utilisé dans la salle du faisceau pour la mesure des périodes radioactives.
1 - Déflecteur d'ions ; 2 - Multiplicateur d'électrons ; 3 - Collecteur ; 4 - Ruban en acier inoxydable ; 5 - Fenêtre mince ; 6 - Détecteur des rayons β ; 7 - Pompes à diffusion ; 8 - Secteur magnétique ; 9 - Optique ionique de la source ; 10 - Four contenant la cible.

Une fenêtre (5) (0,05 mm d'acier inoxydable) isole le ruban de la pression atmosphérique tout en permettant le passage des rayonnements $\beta$ sans une perte d'énergie trop grande compte tenu que nous détectons des rayons $\beta$ de hautes énergies (150 KeV pour l'ensemble du ruban et de la fenêtre).

3) Transport des ions sous vide vers une salle de mesure.

Lors du passage du faisceau de protons le bruit de fond $\beta$ et $\gamma$ de la salle du faisceau est très important. Après la coupure du faisceau ce bruit de fond baisse très sensiblement et avec rapidité mais l'activité résiduelle, qui elle décroît très lentement est encore trop importante pour permettre des mesures valables de spectroscopie nucléaire.

Ceci nous a conduit tout d'abord à utiliser un télescope, que nous décrirons plus loin, pour la détection des rayonnements $\beta$. Puis nous avons cherché à transporter les ions hors de la salle du faisceau. Pour cela, ainsi qu'on le voit sur la figure 21, nous avons percé un trou de 30 cm. de diamètre dans le mur de la salle et nous avons prolongé le tube du spectromètre de cinq mètres, en y ajoutant un dispositif d'optique ionique supplémentaire de façon à focaliser les ions vers le cube décrit précédemment, ce cube se trouvant alors dans une cave bien protégée.

La nécessité d'une refocalisation du faisceau d'ions est évidente lorsqu'on sait que le demi-angle d'ouverture du faisceau sortant de la fente du spectromètre de masse est de l'ordre de 1,2°, ce qui, sur une distance de 5 mètres, donnerait une tache de 20 cm de diamètre environ.

Nous avons donc réalisé avec l'aide de Madame A. JOHNSON, un système de lentilles quadrupolaires électrostatiques plus léger, plus facile à construire et à alimenter qu'un système magnétique bien que cela impose de mettre ces lentilles sous vide.

D'autre part, nous avons voulu diminuer la diffusion des ions par les particules du gaz résiduel et outre l'obtention d'un vide inférieur à $10^{-6}$ mm Hg dans le tube (par deux pompes de 600 l/sec.) nous avons prévu de post-accélérer les ions jusqu'à 30 KeV.

Puisque le corps du spectromètre de masse est au potentiel de la terre le tube tout entier devait être isolé pour pouvoir être mis au potentiel de 30 KV. Le collecteur et les pompes furent fixés par l'intermédiaire de manchons en plexiglass.

Le réglage de la focalisation des lentilles a été effectué en utilisant un collecteur double placé au fond du cube terminal. Ce collecteur circulaire comportait deux parties : une extérieure et une centrale et l'on cherchait à obtenir le maximum de courant sur ce dernier.

A cette occasion, nous avons pu voir que la diffusion des ions de 3 KeV (c'est-à-dire sans post-accélération), sur les atomes du gaz résiduel à $10^{-6}$ mm Hg était suffisamment faible pour que le courant ionique passe sans perte appréciable dans le tube.

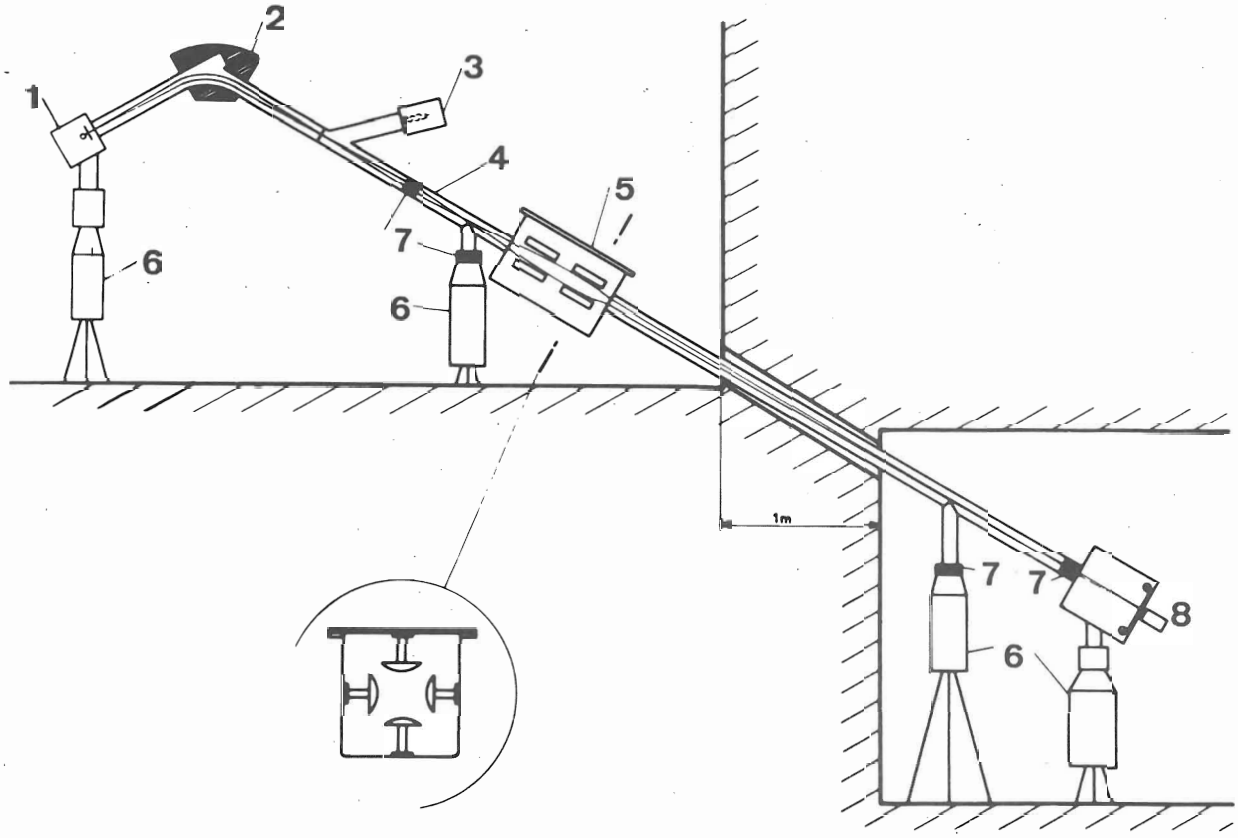


Fig. 21 - Dispositif utilisé pour les mesures en spectroscopie nucléaire. 1 - Source ; 2 - Secteur magnétique ; 3 - Multiplicateur d'électrons ; 4 - Tube isolé ; 5 - Lentilles quadrupolaires ; 6 - Pompes à diffusion ; 7 - Isolants ; 8 - Détecteur de rayonnements.

Dans la dispositif actuel, les lentilles quadrupolaires (5) et les lentilles (7) de la figure 21 forment le système optique. La position des lentilles quadrupolaires étant fixée par la disposition des lieux nous sommes obligés de post-accélérer les ions pour les focaliser en une petite tache.

L'influence de la tension d'accélération appliquée au tube et l'effet des lentilles sont résumés dans le tableau suivant :

| Potentiel du tube KV | Energie des ions dans le tube KeV | Potentiel des lentilles par rapport au tube Volt | Diamètre de l'image.* |
|---|---|---|---|
| Masse | 3 | ± 700 | 30% sur 30mm<br>70% sur latéral (Ø 70 mm) |
| 5,8 | 8,8 | + 500 ; - 200 | < 20 mm |
| 6,8 | 9,8 | + 850 ; - 750 | < 10 mm |
| 7,1 | 10,1 | + 900 ; - 750 | < 8 mm |

L'objet du système optique est la fente de collection du spectromètre (0,5 mm x 15 mm). Avec les lentilles quadrupolaires nous cherchons à réduire, au collecteur, la grande dimension au détriment de l'autre de façon à avoir ainsi une tache inscrite dans un cercle de diamètre aussi petit que possible.

* Nous n'avons pas observé de pertes d'ions lors de la traversée du tube.

4) Le système de détection des rayons β et méthode de mesure.

Dans notre toute première expérience de mesure de rayonnement β, nous avons utilisé un détecteur plastique de 30 mm de diamètre et 40 mm de longueur avec un photomultiplicateur E. M. I. et un système électronique Ortec.

A cause de l'activité résiduelle de la salle après le passage du faisceau de protons, le bruit de fond β pouvait être supérieur à l'effet produit par l'isotope étudié, ainsi sur un bruit de fond de 3 000 coups/s., le $^{95}$Rb ne correspondait qu'à environ 1 000 coups/s.

A la suggestion de Mme MARTY nous avons alors réalisé un système de télescope (fig. 22) en plaçant un scintillateur plastique mince devant notre détecteur et en conduisant l'impulsion lumineuse du plastique mince à l'aide d'un guide de lumière (5 fig. 22) vers le photomultiplicateur (9 fig. 22). Ce système de télescope nous a permis en ne comptant que les évènements en coïncidence d'améliorer le rapport signal sur bruit d'un facteur 30 à 50 suivant l'énergie β.

La méthode utilisée pour l'étude des périodes de décroissance β est tout à fait semblable à celle que nous avons employée pour la mesure des temps de diffusion à la seule différence qu'après avoir interrompu le faisceau de protons, nous défléchissons également le faisceau d'ions avec une tension relativement faible ( ~ 300 V) pour que l'accumulation des ions cesse brusquement.

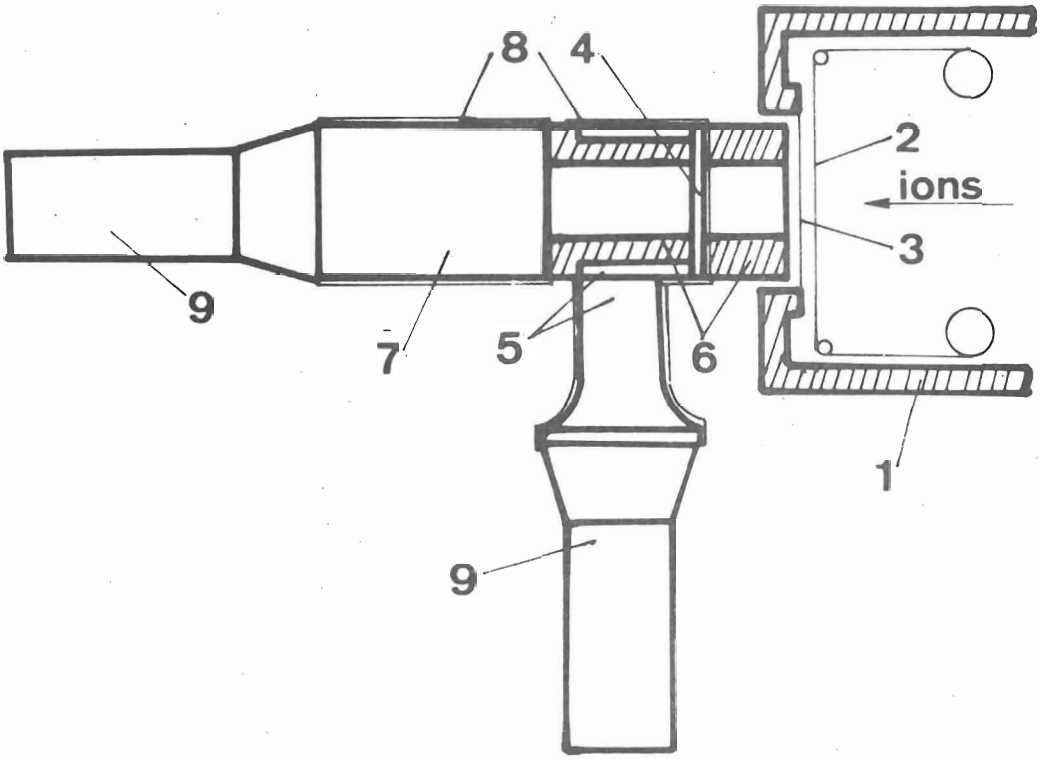


Fig. 22 - Télescope utilisé pour la détection des rayonnements β.
1 - Enceinte du collecteur ; 2 - Ruban en acier inoxydable ;
3 - Fenêtre mince ; 4 - Scintillateur en plastique mince
(0,5 mm) ; 5 - Guide de lumière ; 6 - Collimateurs ;
7 - Scintillateur plastique principal ; 8 - Ecrans ;
9 - Photo-multiplicateurs.

Lors de ces études nous irradions pendant environ deux périodes et suivons la décroissance pendant 5 à 6 périodes après avoir coupé le faisceau de protons. Cela nous permet souvent d'apprécier l'ordre de grandeur de la période du descendant si elle n'est pas trop longue.

La gamme de périodes variant entre quelques minutes et quelques centaines de millisecondes, nous avons été obligés d'utiliser les différents modes de coupure du faisceau de protons qui sont résumés dans le tableau ci-dessous :

| Périodes | Modes |
|---|---|
| $\tau_{1/2} >$ 15 minutes | Manuel |
| 30 sec $< \tau_{1/2} <$ 15 min. | Minuterie électro-mécanique |
| 0,3 sec $< \tau_{1/2} <$ 30 sec. | Electronique et relais |
| 10 msec $< \tau_{1/2} <$ 0,3 sec. | Electronique |

Les mesures sont effectuées en sélectionnant les énergies β de façon à favoriser un domaine d'énergies, cela nous permet de détecter plus facilement l'existence de niveaux isomères éventuels ou de défavoriser les descendants ayant un $Q_\beta$ inférieur à celui de l'isotope étudié.

Par un dispositif approprié, nous avons pu enregistrer simultanément le spectre β et la période de l'isotope étudié en optimisant le rapport signal sur bruit.

Le bruit de fond détecté par le télescope β est assez important dans la salle du faisceau ; il est donc nécessaire de le soustraire du taux de comptage avec faisceau. Par contre, dans la cave le bruit de fond est beaucoup plus bas et nous pouvons effectuer des mesures de rayonnement β sans couper le faisceau de protons.

## B - RESULTATS.

### 1) Périodes de désintégration β.

Les résultats des mesures des périodes de désintégration β effectués avec le télescope sont analysés, après soustraction du bruit de fond, à l'aide du programme Frantic (25), de la même façon que les enregistrements de diffusion dans la source. Tout comme pour la diffusion, il nous a fallu faire plusieurs enregistrements de façon à optimiser l'analyse d'une des périodes (de l'isotope ou d'un descendant ) et cela jusqu'à un descendant dont la période est connue avec précision.

Une analyse libre, c'est-à-dire une analyse dans laquelle seuls les points enregistrés et le nombre de périodes prévues sont analysés par l'ordinateur, donne des résultats assez imprécis. Le fait de spécifier les périodes d'une partie des décroissances prévues augmente la précision et la fiabilité des résultats.

Le tableau II résume les résultats concernant les périodes β des isotopes du Rubidium et du Cesium et de leurs descendants, Strontium, Barium et Lantane (fig. 23 et 24).

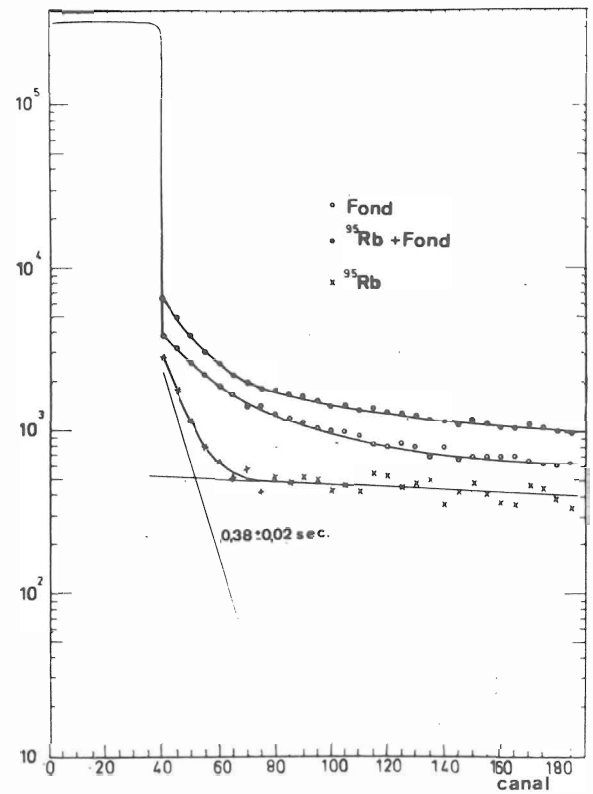


Fig 23 -
Enregistrement et décomposition de la décroissance radioactive de la chaine
$^{95}Rb \longrightarrow {}^{95}Sr$

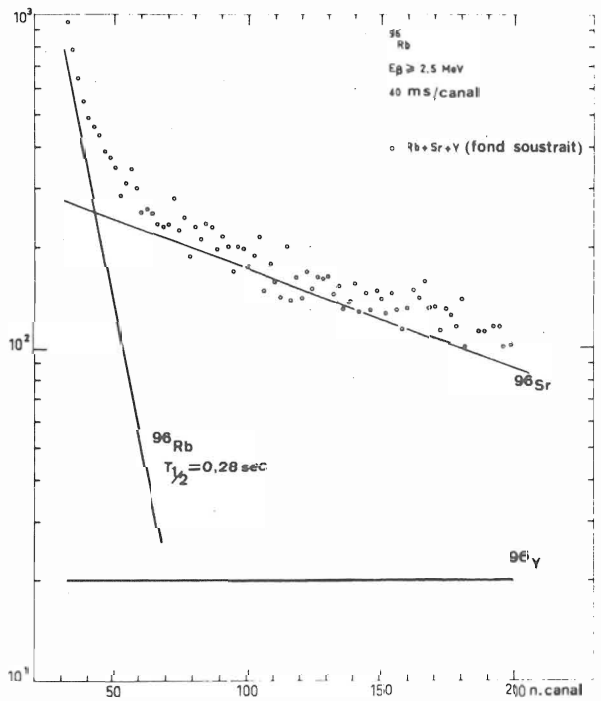


Fig. 24 -
Enregistrement et décomposition de la décroissance radioactive de la chaine
$^{96}Rb \longrightarrow {}^{96}Sr \longrightarrow {}^{96}Y$

En ce qui concerne les mesures effectuées avec des seuils d'énergies différents (0,5 et 2.5 MeV), nous avons donné les résultats séparément. On voit que sauf pour le cas du $^{91}$Rb les périodes obtenues s'accordent, ce qui élimine a posteriori la présence d'états isomériques discernables, par la seule énergie de rayonnement β.

Par contre, l'existence de deux périodes pour le $^{91}$Rb, (59,6 sec pour $E_\beta > 0,5$ MeV, 57,4 sec pour $E_\beta > 2,5$ MeV) pourrait être due à un état isomère de période voisine de la période du niveau fondamental.

En effet, la méthode d'analyse numérique des résultats que nous utilisons ne nous permet pas de distinguer, dans une courbe complexe, la présence de périodes dont les rapports des constantes de désintégration soient inférieures à 1,5. Dans ces conditions, la différence entre nos résultats et ceux de WAHL et al (48) pourrait être expliquée.

Pour le $^{90}$Rb aucun doute ne subsiste quant à l'existence d'un nouvel état isomère produit lors de la fission. JOHNSON et al (47) n'ont vu qu'une seule période de 2,7 minutes, étant donné que leurs niveaux étaient peuplés par décroissance de la chaîne radioactive Kr→Rb→Sr, et non par une réaction, comme la fission, qui avantage la production d'états isomères.

Nous n'avons pas pu déterminer les périodes des $^{97}Rb$ et $^{98}Rb$ à cause du faible taux de comptage. Toutefois, l'extrapolation de la courbe des sections efficaces (fig. 14) et l'observation des intensités relatives des raies des $^{96}Rb$, $^{97}Rb$, $^{98}Rb$ dans le spectre de masses (fig. 12) nous permet de dire que la correction de diffusion pour les $^{97}Rb$ et $^{98}Rb$ est du même ordre de grandeur que celle du $^{96}Rb$. Il en résulte que les périodes des $^{97}Rb$ et $^{98}Rb$ sont comparables à celles du $^{96}Rb$ (quelques dixièmes de seconde). Ce résultat a été confirmé pour le $^{97}Rb$ en mesurant la période par les neutrons différés (environ 0,14 sec).

Ainsi nos résultats nont permis de déterminer les périodes β de plusieurs isotopes nouveaux et de rectifier les périodes d'autres isotopes qui avaient été étudié par radiochimie.

## TABLEAU II

Périodes des isotopes du Rb, Sr, Cs, Ba, La obtenues par détection de rayonnements β et de neutrons.

| Isotopes | T 1/2 sec - rayonnement β | | T 1/2 sec neutrons différés | T 1/2 sec valeurs adoptées | Mesures antérieures | Références |
|---|---|---|---|---|---|---|
| | $E_\beta \geqslant 0,5$ MeV | $E_\beta \geqslant 2,5$ MeV | | | | |
| $^{90}Rb$ | - | 156 ± 5 )<br>258 ± 5 ) | | 156 ± 5 )<br>258 ± 5 ) | 174 ± 6 | (47) |
| $^{91}Rb$ | 59,6 ± 0,3 | 57,4 ± 0,3 | | | 72 ± 8 | (48) |
| $^{92}Rb$ | 4,47 ± 0,09 | 4,40 ± 0,06 | aucune émission de neutrons | 4,43 ± 0,05 | 4,1 ± 0,3 | (49) |
| $^{93}Rb$ | 5,89 ± 0,04 | 5,87 ± 0,06 | 5,81 ± 0,15 | 5,86 ± 0,04 | 5,1 ± 0,3 | (49) |
| $^{94}Rb$ | | 2,63 ± 0,04 | 2,74 ± 0,06 | 2,67 ± 0,04 | 2,9 ± 0,3 | (50) |
| $^{95}Rb$ | 0,38 ± 0,02 | 0,34 ± 0,02 | 0,36 ± 0,02 | 0,36 ± 0,02 | ⩽ 2,5 | (50) |
| $^{96}Rb$ | | 0,28 ± 0,05 | 0,21 ± 0,02 | 0,23 ± 0,02 | - | |
| $^{97}Rb$ | | | 0,135 ± 0,010 | 0,135 ± 0,010 | | |
| $^{94}Sr$ | 76,5 ± 1,7 | | | 76,5 ± 1,7 | 82 ± 3 | (51) |
| $^{95}Sr$ | 26 ± 1 | | | 26 ± 1 | 33 ± 6 | (51) |
| $^{96}Sr$ | 4,0 ± 0,2 | | | 4,0 ± 0,2 | - | |
| $^{141}Cs$ | | | aucune émission de neutrons | | 25 ± 2 | (52) |
| $^{142}Cs$ | | | 2,5 ± 0,3 | 2,5 ± 0,3 | 2,3 ± 0,2 | (52) |
| $^{143}Cs$ | 1,60 ± 0,14 | | 1,69 ± 0,13 | 1,64 ± 0,10 | 2,0 ± 0,4 | (52) |
| $^{144}Cs$ | 1,06 ± 0,10 | | 1,05 ± 0,14 | 1,06 ± 0,10 | - | |
| $^{144}Ba$ | 11,4 ± 2,5 | | | 11,4 ± 2,5 | - | |
| $^{144}La$ | 41 ± 3 | | | 41 ± 3 | | |

2) Spectres β

Les conditions experimentales dans lesquelles notre appareillage nous obligeait à travailler ne convenaient pas particulièrement bien à une étude de la forme des spectres β, nous nous sommes donc limités à l'examen des énergies maxima des rayonnements β. Afin d'obtenir la meilleure forme possible, pour les spectres, nous avons éloigné le télescope du collecteur et collimaté les rayons β.

Notre étude a porté sur les $^{90}$Rb, $^{92}$Rb et $^{94}$Rb. Malgré la déformation des spectres nous avons réussi à déterminer cette énergie et nous avons obtenu les mêmes valeurs à partir du spectre lui-même ou à partir de la droite de Kurie. A la valeur observée nous avons ajouté 270 KeV qui correspond à l'absorbtion due aux fenêtres et au plastique mince.

Les résultats obtenus en supposant l'absence d'erreur systématique dans l'étalonnage sont les suivants :

- Pour le $^{90}$Rb : 6,6 ± 0,15 MeV, ce qui correspond exactement à la valeur obtenue par JOHNSON et al (47) en tant que $Q_\beta$ de la transition $^{90}Rb \longrightarrow {}^{90}Sr$. (fig. 25).

- Pour le $^{92}$Rb : 8,1 ± 0,15 MeV. Il semble que le spectre β soit pur can aucune raie γ importante n'a pu être détectée dans nos conditions expérimentales. L'énergie maximum obtenue est donc le $Q_\beta$ de la transition $^{92}Rb \longrightarrow {}^{92}Sr$. (fig. 26).

- Pour le $^{94}$Rb : 8,5 ± 0.15 MeV (le spectre β est complexe) (Fig. 27).

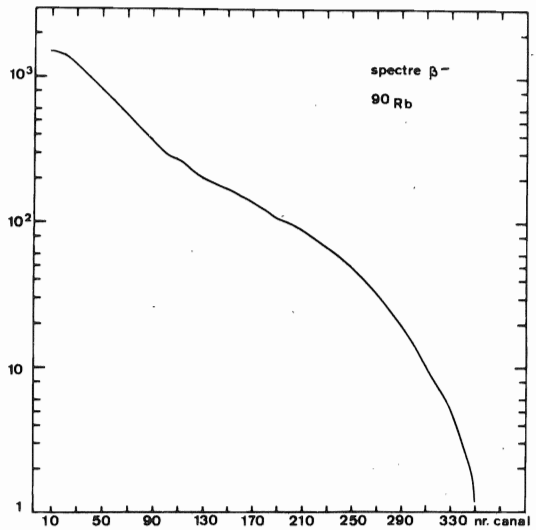


Fig. 25 -
Spectre $\beta^-$ du $^{90}Rb$
($E_{\beta\ max}$ = 6,6 ± 0,15 MeV)

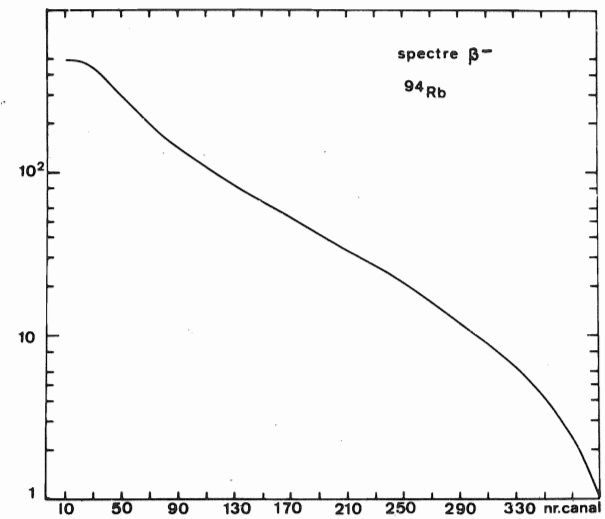


Fig. 27 -
Spectre $\beta^-$ du $^{94}Rb$
($E_{\beta\ max}$ = 8,5 ± 0,15 MeV)

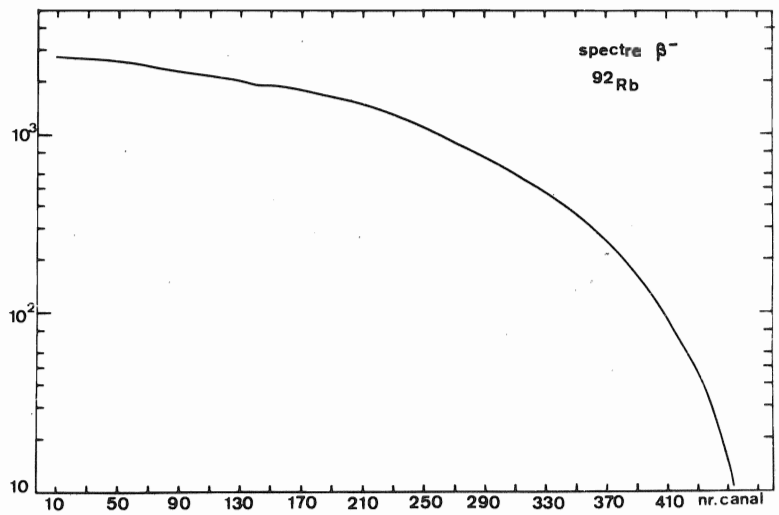


Fig. 26 -
Spectre $\beta^-$ du $^{92}Rb$
($E_{\beta\ max}$ = 8,1 ± 0,15 MeV)

Ces expériences préliminaires nous ont montré que les émetteurs β de grande énergie pourraient n'émettre que très peu ~~ou pas du tout~~ de rayons γ ($^{91}$Rb et $^{92}$Rb). L'étude du Q de réaction exige alors l'utilisation de détecteurs de grandes dimensions. Les détecteurs solides en Silicium ne conviennent pas car ceux que l'on sait fabriquer actuellement sont trop minces.

3) Spectres γ

$^{90}$Sr

Le spectre γ direct a été obtenu (46) en plaçant un cristal de NaI (Tl) de dimensions 7,5 x 7,5 cm à 4 cm du point de collection des ions et ceci pour divers temps d'irradiations et de comptage (2 min. - 2 min. ; 5 min. - 5 min. etc...) afin d'essayer de favoriser l'un ou l'autre des deux états du $^{90}$Rb. Il apparait que l'état de 4,3 minutes est peuplé préférentiellement (à 85 %) et on retrouve cette période si l'on suit la décroissance de rayons γ principaux (fig. 28).

Les énergies et les intensités relatives telles qu'elles apparaissent dans le spectre sont données dans le tableau III.

On retrouve de nombreuses raies trouvées dans la désintégration du $^{90}$Kr $\rightarrow$ $^{90}$Rb 2,9 min. $\rightarrow$ $^{90}$Sr (47) avec des intensitées relatives plus ou moins différentes. La partie basse énergie du spectre a été obtenue avec une jonction Ge (Li) de 7 cm$^3$ aimablement prêtée par M. HENCK du laboratoire de M. COCHE à STRASBOURG. Les énergies des raies γ sont les suivantes :

(Eγ en MeV) 0,550 ; 0,829 ; 0,837 ; 1,065 ; 1,25 ; 1,38 ; 1,67 ; 1,735.

Ainsi le rayonnement de 860 MeV n'apparait pas, dans nos conditions expérimentales ; ce qui permet encore une fois de fixer à 15 % ou moins la proportion de désintégrations issues du niveau $2^-$ de 2,6 minutes. Par contre la raie de 830 KeV est un doublet 829 et 837 KeV.

De ces mesures préliminaires on peut déjà tirer quelques conclusions : les niveaux d'énergie supérieurs à 3 MeV sont très peuplés dans les deux désintégrations avec des intensités du même ordre de grandeur. Ceci est une indication que l'état de 4,3 minutes a un spin voisin de 5 puisque l'état de 2,6 minutes a un spin 2. Un spin plus voisin de 2 permettait des transitions $\gamma$ rapides vers l'état de 2, 6 minutes ce qui n'est pas le cas. Un spin voisin de 0 conduirait à une population préférentielle de l'état fondamental du $^{90}Sr$. Cette conclusion est en accord avec la systématique de la population des états d'un noyau obtenu par fission (40). Ces renseignements sont encore trop partiels pour déterminer la position relative des deux niveaux du $^{90}Rb$.

## $^{91}Sr$

Le spectre $\gamma$ de cet isotope a été étudié avec la jonction de 7 $cm^3$ et nous n'avons observé que deux raies principales dont les énergies sont 94 $\pm$ 1 KeV et 347 $\pm$ 1 KeV et dont les intensités sont dans le rapport 100 : 30. Ces résultats sont en accord avec ceux de M. A. WAHLGREN et W. N. MEINKE (59). La mesure avec un détecteur en NaI (Tl) nous a permis de distinguer toute une série de raies plus énergétiques.

$^{92}Sr$

La recherche des rayons γ suivant l'émission β du $^{92}Rb$ nous a montré que le nombre de transitions γ par désintégration β est beaucoup plus faible que pour le $^{90}Rb$. Ceci confirme la forme du spectre β mentionné précédemment et explique peut-être l'absence, dans nos conditions expérimentales, d'émission de neutrons différés.

TABLEAU III

Raies γ du $^{90}Sr$.

| Travaux présents NaI (Tl) | | JOHNSON et al. | |
|---|---|---|---|
| Eγ (MeV) | Intensité relative | Intensité relative | Eγ (MeV) |
| 5,25 | 1,6 | 6,7 | 5,23 |
| 5,06 | 0,7 | 3,0 | 5,08 |
| 4,64 | 2,6 | 8,4 | 4,60 |
| 4,38 | 11,8 | 31,3 | ( 4,37<br>( 4,34 |
| 4,18 | 8,7 | 19,6 | 4,13 |
| 3,59 | 5,3 | 8,1 | 3,54 |
| 3,35 | 21,4 | 27,5 | 3,34 |
| 3,02 | <1 | 9,7 | 3,07 |
| 2,77 | 13,5 | 3,0 | 2,84 |
| 2,66 | 5,1 | 1,8 | 2,72 |
| 2,51 | 5,7 | 3,4 | 2,51 |
| 2,26 | 3,9 | 3,6 | 2,20 |
| 2,12 | 3,85 | | |
| 1,89 | 2,5 | 4,8 | 1,82 |
| 1,74 | 4,7 | 6,1 | 1,70 |
| 1,67 | 7,4 | | |
| 1,38 | 16,5 | 8,3 | 1,40 |
| 1,25 | 5,0 | 4,3 | 1,24 |
| 1,12 | 2,6 | 13,2 | 1,11 |
| 1,065 | 10,9 | 8,5 | 1,03 |
| 0,837 | 100 | 100 | ( 0,860<br>( 0,832 |
| 0,72 | 1,8 | 6,5 | 0,72 |
| 0,61 | 3,9 | | |
| 0,53 | 5,0 | 6,6 | 0,53 |

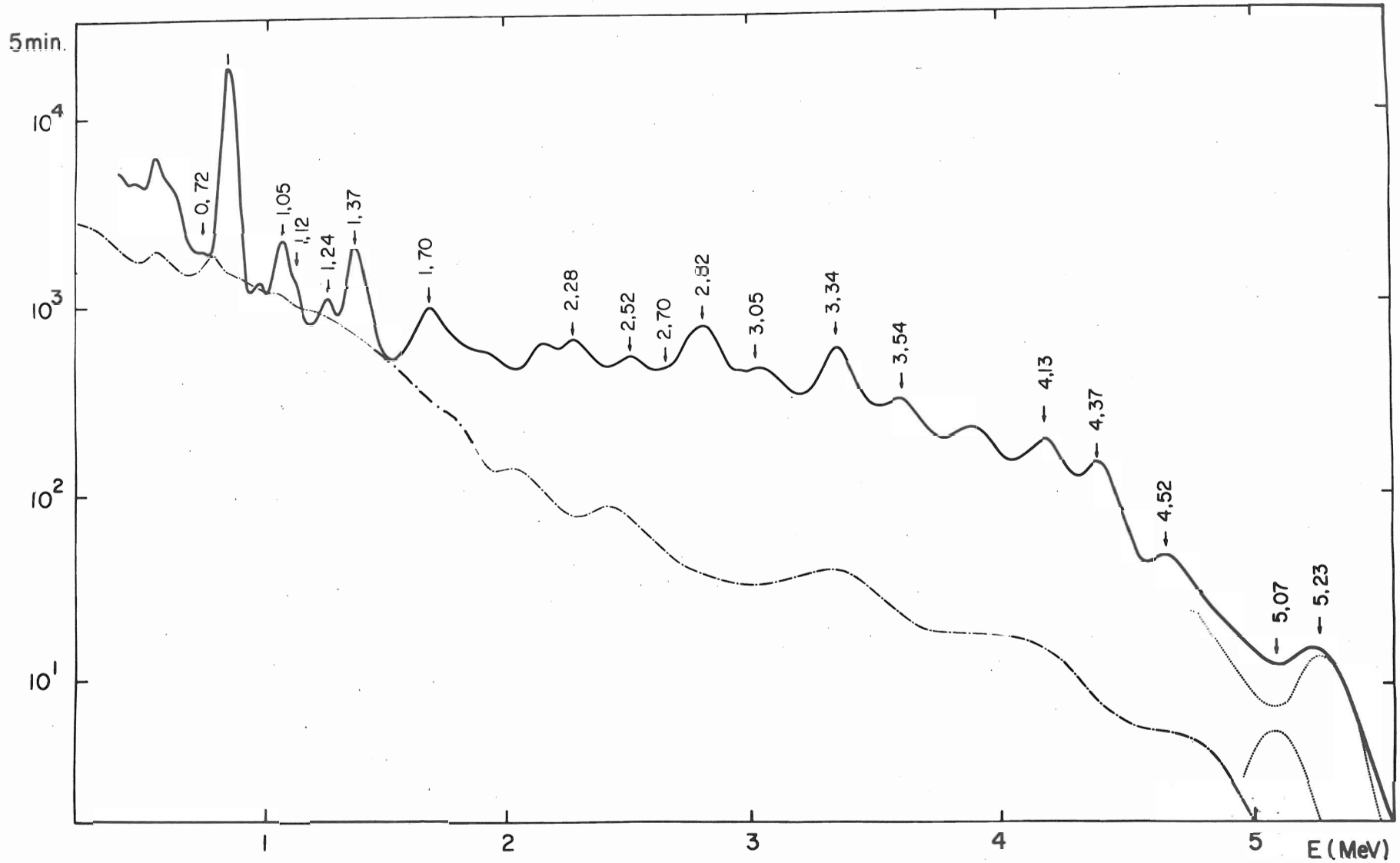


Fig. 28 - Spectre γ direct du $^{90}Sr$ obtenu avec un détecteur NaI ( Tl) de 7,5 x 7,5 cm

4) Mise en évidence de nouveaux émetteurs de neutrons différés.

Il est bien connu depuis 1939 que le processus de fission s'accompagne de l'émission de neutrons, soit pendant le processus lui-même, soit après un temps plus ou moins long. Ces neutrons "différés" sont émis promptement d'un noyau fortement excité, lui-même produit par désintégration β d'un noyau parent dénommé "précurseur". La période de désintégration β du "précurseur" contrôle le délai d'émission de ces neutrons (fig 29).

Dans le domaine du calcul des réacteurs, les émissions de neutrons différés ont été rassemblés en 6 groupes suivant la période de leurs précurseurs.

Ces groupes pour la fission a partir du $^{238}U$, correspondent à des périodes moyennes de : 54, 20, 5, 2, 0,46, et 0,16 secondes.

Huit nuclides responsables de cette émission différée ont été identifiés jusqu'ici (45) (53) (54) mais on ne connait pas encore tous ceux qui contribuent à cette émission ; particulièrement dans le groupe des courtes périodes.

Les régions susceptibles de contenir des précurseurs de neutrons différés se situent dans des zones au-delà des nombres magiques (53) (à cause de la faible énergie de liaison du dernier neutron) qui correspondent tout à fait aux deux domaines que nous venons d'étudier : $A_{Rb} > 90$ et $A_{Cs} > 140$.

Nous avons donc entrepris* la recherche de précurseurs de neutrons différés dans cette région, et comme nous le verrons plus loin elle nous a permis d'ajouter sept nouveaux précurseurs aux huit précédemment identifiés.

Pour effectuer cette étude nous avons procédé de la même façon que pour la mesure des périodes β : Nous avons pulsé le faisceau de protons, accumulé les ions sur une fenêtre et détecté les neutrons à l'aide d'un compteur à $BF_3$ (55). La détection des neutrons nous permet alors d'observer et de mesurer la décroissance du précurseur (fig. 30 et 31).

En général l'enregistrement obtenu ne fait ressortir qu'une seule période (Rb ou Cs), le descendant (Sr ou Ba) n'étant que très rarement un émetteur de neutrons.

Les mesures précédentes ont été effectuées tout d'abord dans la salle du faisceau malgré un bruit de fond, en neutrons, assez important. Puis lorsque l'extension de notre appareil a été mise en service nous avons repris une partie des mesures. Le bruit de fond au sous-sol est pratiquement nul, et nous avons pu détecter l'émission de neutrons par certains isotopes du césium, isotopes pour lesquels le taux de comptage en neutrons différés est extrêmement faible.

Nos résultats sont résumés dans le tableau II.

---

* Cette étude a été entreprise à la suggestion de M. GAUVIN.

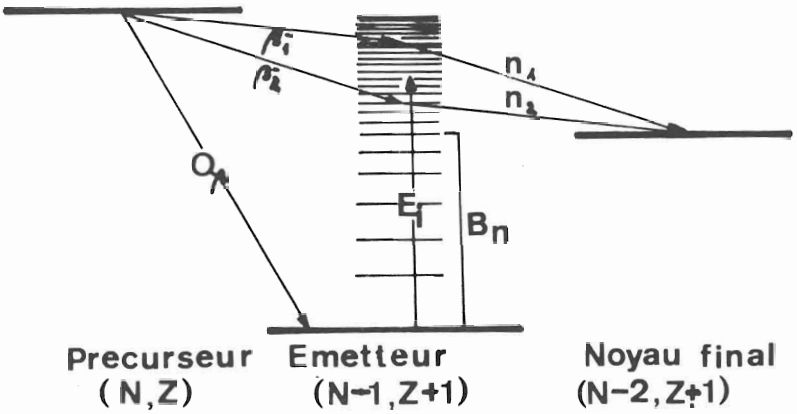


Fig. 29 - Schéma simplifié du mécanisme de la désintégration par neutron (différé)

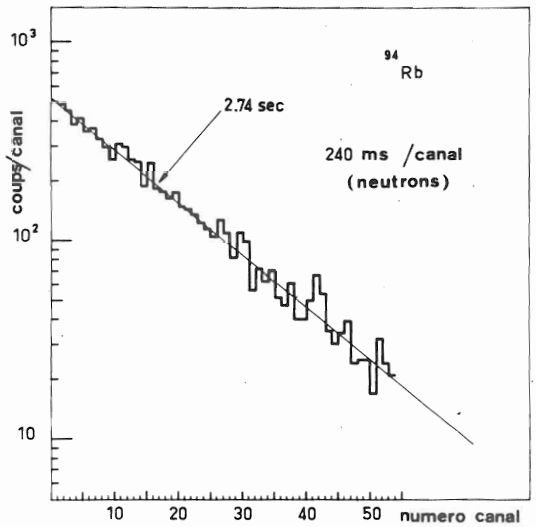


Fig. 30 - Période radioactive du $^{94}$Rb obtenue par la détection des neutrons différés.

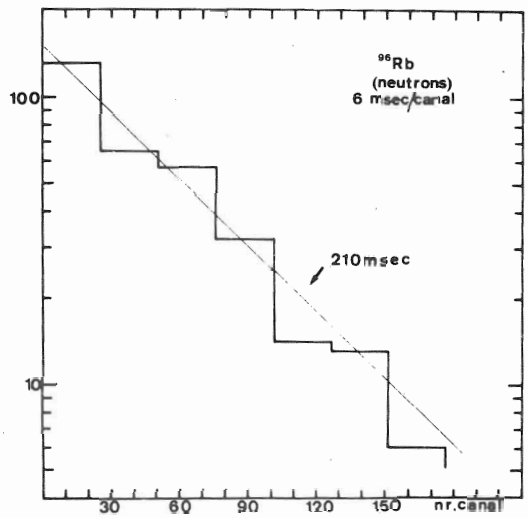


Fig. 31 - Période radioactive du $^{96}$Rb obtenue par la détection des neutrons différés.

Les rapports d'embranchement relatifs pour l'émission de neutrons ont été estimés à partir du nombre d'ions produits pour chaque isotope et du rendement de détection (1 à 2 %). Ces rapports, normalisés par rapport au $^{94}$Rb, sont : 0,1 pour le $^{93}$Rb, 0,6 pour le $^{95}$Rb et 1 pour le $^{96}$Rb.

STEHNEY et PERLOW (56) dans un travail antérieur avaient signalé qu'un isotope du rubidium (A = 92 ou 93) devait être précurseur de neutrons dans le groupe des 6 secondes, nous avons identifié cet isotope qui est le $^{93}$Rb.

Depuis la publication de nos résultats AMIEL et al (57) et DAY et al (58) ont aussi identifié le $^{93}$Rb en tant que précurseur. AMIEL a pu également décomposer une courbe complexe en y incluant la période du précurseur $^{94}$Rb que nous avons mesurée.

Les $^{95}$Rb, $^{96}$Rb et $^{97}$Rb sont les premiers précurseurs identifiés dans les groupes de 0,46 et 0,16 secondes.

L'émission de neutrons différés par des isotopes du césium est approximativement cent fois plus faible que celle des isotopes du rubidium. C'est seulement l'absence de bruit de fond en neutron, qui nous a permis d'identifier les $^{142}$Cs, $^{143}$Cs et $^{144}$Cs comme précurseurs. Les impulsions dues aux neutrons se sont accumulées dans les premiers

canaux du multi-échelle (40 impulsions dans les 50 premiers canaux en une heure d'enregistrement) tandis que le bruit de fond ne fait que 10 impulsions, en 15 minutes, distribuées dans 256 canaux.

D'après des calculs effectués récemment par AMIEL et al (57) et GAUVIN (54) la contribution des isotopes du rubidium parmi les précurseurs de neutrons différés dans la fission thermique de $^{235}U$ est bien plus grande que celle calculée par STEHNEY et PERLOW (56). En particulier, le $^{94}Rb$ est l'un des principaux précurseurs ( 30 % du nombre de neutrons émis) de son groupe (6 sec) (54).

Ainsi comme nous l'avons montré dans ce dernier chapitre l'emploi d'un spectromètre de masse en ligne permet d'effectuer des mesures, $\beta$ , $\gamma$ et neutrons, en spectrométrie nucléaire sur des isotopes à vie courte.

Les résultats que nous avons donné ne constituent que l'amorce d'une étude, par différentes techniques de spectroscopie nucléaire, de nuclides situés loin de la région de stabilité, mais ils nous semblent clairement mettre en évidence les possibilités de la méthode que nous avons employée.

# CONCLUSION

La réalisation et l'utilisation d'un spectromètre de masse opérant directement dans le faisceau externe d'un accélérateur de protons s'est avéré être un moyen d'étude très fécond de nuclides à vie courte dans les deux domaines abordés : mesure des sections efficaces de production et spectroscopie nucléaire.

Les résultats obtenus au cours de ce travail ne constituent qu'une première étape et pourront être développés dans les différentes directions dont l'étude a été abordée et une extension à des éléments autres que les alcalins peut être envisagée.

# BIBLIOGRAPHIE


1 - W. D. MYERS et W. J. SWIATECKI

Nucl. Phys. 81 (1966) 1

2 - GARVEY et KELSON

Phys. Rev. Let. 16 (1966) 197

3 - G. RUDSTAM

Proc. Conf. Isotope Separation AARHUS 1965
Nucl. Instr. and Meth. 38 (1965) 282
et Rapports Internes du C. E. R. N.

4 - G. ANDERSON et R. W. FINK

Physics Today (Mars 1967) et communications particulières.

5 - S. AMIEL

Proc. Lysekil Symp. 1966, Arkiv für Fysik (en impression)

6 - S. BORG, U. FAGERQUIST, G. HOLM et F. KROPFF.

Proc. conf. Isotope Separation AARHUS 1965
Nucl. Instr. and Meth. 38 (1965) 296

7 - H. EWALD, E. KONECNY et H. OPOWER

Proc. SALZBURG Symposium March 1965, Physics and Chemistry of Fission 1 (1965) 505 - Publication IAEA (Vienne).

8 - D. HOVESTADT et P. ARMBRUSTER

Rapport ANL 6797

9 - G. SIDENIUS, R. M. GAMMON, R. A. NAUMANN et T. D. THOMAS

Proc. Conf. Isotope Separation AARHUS 1965
Nucl. Instr. and Meth. 38 (1965) 299

10 - R. KLAPISCH et R. BERNAS

Proc. Conf. Isotope Séparation AARHUS 1965
Nucl. Instr. and Meth. 38 (1965) 291

11 - R. KLAPISCH

Thèse Faculté des Sciences, ORSAY (1966)

12 - I. AMAREL, R. BERNAS, J. CHAUMONT, R. FOUCHER, J. JASTRZEBSKI, A. JOHNSON, R. KLAPISCH et J. TEILLAC

Proc. LYSEKIL Symp. 1966, Arkiv für Fysik (en impression)

13 - R. KLAPISCH, R. BERNAS, J. CHAUMONT, C. PHILIPPE, G. SIMONOFF et J. SUCHORZEWSKA.

Présenté à la 4e Conférence de Hautes Energies RØ ROS - 28 Août 1967

14 - M. KAMINSKY

Atomic and Ionic impact phenomena on metal surfaces SPRINGER (1965) Chapitre 8

15 - R. KLAPISCH, J. CHAUMONT, C. PHILIPPE, I. AMAREL, R. FERGEAU, M. SALOME et R. BERNAS

Nucl. Instr. and Meth. 53 (1967) 216

16 - C. PHILIPPE

(Communication particulière)

17 - L. KOWALSKI

Thèse Faculté des Sciences, ORSAY (1963)

18 - E.K. HYDE

The nuclear properties of the heavy elements III Prentice-Hall (1964)

19 - J.M. ALEXANDER et M.F. GAZDIK

Phys. Rev. 120 (1966) 874

20 - Studies in penetration of charged particles in matter

Nucl. Sci. Series rapport 39 - Publication 1133 (1964) 149

21 - R. KLAPISCH

(communication particulière)

22 - M.P. KLEIN et G. BARTON Jr.

Rev. Sci. Instr. 34 (1963) 754

23 - BRISSAULT

Thèse Faculté des Sciences, ORSAY (1966)

24 - J. CHAUMONT

(Communication particulière)

25 - P. C. ROGERS

M. I. T. Laboratory for Nuclear Science
Technical Report n° 76 (NY 02303) (juin 1962)

26 - Nuclear data sheet Set 60-6-45

(ADAMS R. et FINSTON H. NNES 9 (1950) 1791)

27 - G. FRIEDLANDER, L. FRIEDMAN, B. GORDON et L. YAFFE

Phys. Rev. 129 ( 1963) 1809

28 - F. HOFFERT, J. PAULUS, et J. P. ADLOFF

Revue de Physique Appliquée 1 (1966) 43

29 - Y. ADDA et J. PHILIBERT

La diffusion dans les solides ; Presses Universitaires (1966)

30 - L. B. DOYLE

NAA - SR - 255 (1953)

31 - H. GAUVIN et L. SAUVAGE

Jl. Inorg. Nucl. Chem. (sous presse)

32 - J. PETER

(Communication particulière)

33 - H. G. THODE et R. L. GRAHAM

Can. J. Research 25A (1947) 1

34 - R. K. WANLESS et H. G. THODE

Can. J. Phys. 33 (1955) 541

35 - Mac NAMARA, COLLINS et THODE

Phys. Rev. 78 (1950) 129

36 - C. W. STANLEY et S. KATCOFF

J. Chem. Phys. 17 (1949) 653

37 - GLENDENIN, STEINBERG, INGHRAM et HESS

Phys. Rev. 84 (1959) 860

38 - FLEMING, TOMLINSON et THODE

Can. J. Phys. 32 (1954) 522

39 - M. KAPLAN et C. D. CORYELL

Phys. Rev. 124 (1961) 1949

40 - E. HAGEBØ

J. Inorg. Nucl. Chem. (en impression)

41 - WILES, SMITH, HORSLEY et THODE

Can. J. Phys. 31 (1953) 419

42 - J. GALIN

Thèse de 3e Cycle Faculté des Sciences ORSAY (1967)

43 - H. FARRAR et R. H. THOMLINSON

Can. J. Phys. 40 (1963) 943

44 - J. TERREL

Phys. Rev. 127 (1962) 880

45 - I. AMAREL, R. BERNAS, R. FOUCHER, J. JASTRZEBSKI, A. JOHNSON et J. TEILLAC et H. GAUVIN

Phys. Letters 24B (1967) 402

46 - I. AMAREL, R. BERNAS, R. FOUCHER, J. JASTRZEBSKI, A. JOHSSON, J. TEILLAC, I. MARQUES

Colloque de Physique Nucléaire BORDEAUX (Mars 1967)
J. de Phys. (sous presse)

47 - N. R. JOHSSON, G. D. O'KELLEY et E. EICHLER

Phys. Rev. 135B (1964) 36

48 - A. C. WAHL, R. L. FERGUSSON, D. R. NETHAWAY, D. E. TROUTNER et Z. K. WOLFSBERG

Phys. Rev. 126 (1962) 1112

49 - A. C. WAHL, A. E. NORRIS et R. L. FERGUSSON

Phys. Rev. 146 (1966) 931

50 - K. FRITZE, T. J. KENNET et W. V. PRESWITCH

Can. J. Chem. 39 (1961) 675

51 - A. E. NORRIS et A. C. WAHL

Phys. Rev. 146 (1966) 926

52 - K. FRITZE

Can. J. Chem. 40 (1962) 1344

53 - G. R. KEEPIN

Physics of Nuclear Kinetics, Addison-Wesley (1965)

54 - H. GAUVIN

Symposium sur les neutrons différés en fission
24-27 Avril 1967 VIENNE- publication IAEA (sous presse)

55 - L. SAUVAGE

Thèse 3e cycle Faculté des Sciences ORSAY (1966)

56 - A. F. STEHNEY et G. J. PERLOW

Bul. Am. Phys. Soc. II 6 (1961) 62

57 - S. AMIEL, J. GILAT, A. NOTEA et E. YELLIN

Symposium sur les neutrons différés en fission
24-27 Avril 1967 VIENNE publication IAEA (sous presse)

58 - M. DAY, A. B. TUCKER et W. L. TALBERT Jr

Symposium sur les neutrons différés en fission

24-27 Avril 1967 VIENNE - publication IAEA (sous presse)

59 - M. A. WAHLGREN et W. N. MEINKE

J. Inorg. Chem. 24 (1962) 1527

60 - E. A. BRYANT, G. A. COWAN, J. E. SATTIZAHN et K. WOLFSBERG

Nucl. Sci. and Eng. 15 (1963) 288

61 - E. HEIFETZ et J. PETER

(Communication particulière)