

ÉTUDE DE LA TRANSMUTATION $RaD \rightarrow RaE$
PAR SPECTROGRAPHIE MAGNÉTIQUE DU RAYONNEMENT β
DE CONVERSION INTERNE *

par CARLOS A. C. BRAGA (PÔRTO)

(Reçu le 4 Novembre 1944)

1. Cette étude a été entreprise dans le but d'éclaircir un doute soulevé par un travail de E. Amaldi et F. Rasetti, publié dans «*La Ricerca scientifica*» XVII, 111, 1939.

En effet, le spectre β de conversion interne de la transmutation $RaD \rightarrow RaE$ a été étudié par spectrographie magnétique par Danysz en 1913, Ellis et Meitner en 1914, Black en 1925 et Curtiss en 1926.

Le spectre obtenu est constitué par un nombre limité de raies (les physiciens ci-dessus mentionnés ont obtenu un total de six raies différentes) produites par groupes de rayons β isocinétiques, dont les énergies, comprises entre 30 et 47 keV, additionnées aux travaux d'extraction des électrons des couches $L_I, L_{II}, L_{III}, M_I, N_I, O$ de l'atome de nombre atomique 83, conduisent à la valeur de l'énergie d'un seul rayonnement γ .

Rasetti et Amaldi, en employant une méthode d'absorption sélective, concluent que, pendant la transmutation $RaD \rightarrow RaE$, il y a émission de, au moins, deux rayonnements γ , dont les intensités sont dans le rapport de 5:1 et dont les longueurs d'onde probables sont respectivement 265 et 290 U. X.

Ces résultats, en contradiction avec les résultats obtenus par les investigateurs déjà mentionnés, montrent l'intérêt qu'il y avait à étudier de nouveau la transformation $RaD \rightarrow RaE$ par les méthodes, plus précises que la méthode d'absorption, de la diffraction cristalline et de la spectrographie magnétique.

M.lle Lidia Salgueiro, de la Faculté des Sciences de Lisbonne, ayant repris l'étude du spectre γ par diffraction cristalline (voir *Portugaliae Physica*, vol. I, pg. 67, 1944) j'ai décidé d'étudier le même problème,

* Cet article est un abrégé de la thèse de Doctorat présentée par l'auteur à la Faculté des Sciences de Porto.

par la méthode de spectrographie magnétique, dans l'espoir d'arriver, par des voies différentes, à la même conclusion.

De la valeur du coefficient de conversion interne dépendait la possibilité d'obtenir, plus ou moins facilement, des résultats par l'application de chacune des méthodes, pour ainsi dire, complémentaires.

2. Dans ce paragraphe je présente un résumé des sujets traités dans les différents chapitres de la thèse.

Dans le premier chapitre—Étude du rayonnement β —j'ai commencé par me référer aux premiers travaux de Henri Becquerel sur la nature et les propriétés des rayons β et à la découverte due à von Baeyer, Hahn et Meitner des groupes homogènes de rayons β émis dans certaines transformations radioactives et je cite, à propos, la phrase suivante de Danysz :

«Le succès de ces expériences est dû très certainement à la constitution de la source radioactive qui, dans toutes les expériences de ces physiciens, est ou bien un fil très fin activé par la radioactivité induite, ou bien une très légère et très fine gouttière que l'on remplit de la substance active ; de cette manière fut évitée la cause des insuccès qui arrêtaient leurs prédécesseurs».

Je donne ensuite une idée de la méthode d'absorption, des méthodes de déviation magnétique, directe et de focalisation, et les notations, formules et valeurs fondamentales adoptées pour arriver aux expressions analytiques de l'énergie W et de la longueur d'onde λ en fonction du produit $H\rho$; dans les trois derniers paragraphes de ce chapitre je mentionne les études de Wooster, Li et Arnoult sur la structure des raies du spectre magnétique, la correction de Hartree due à la non-uniformité du champ, et la précision des mesures.

Dans le deuxième chapitre—Notions fondamentales de photographie—je m'occupe des problèmes concernant l'émulsion photographique, la formation de l'image latente selon les travaux récents de Gurney et de Mott, l'action du révélateur et du fixateur, le noircissement, les lois de Bunsen et Roscoe et Schwarzschild, les courbes de Hurter et Driffield et la façon de mesurer le noircissement avec les microphotomètres enregistreurs ; les deux derniers paragraphes se réfèrent spécialement à l'action photographique des électrons, en profitant des travaux de Ellis, Aston et Arnoult pour tracer la courbe d'activité des électrons en fonction de $H\rho$, et au rendement photochimique donné par les réseaux de courbes tracées par Borries et Knoll.

La deuxième partie de la thèse traite de la «Réalisation pratique du travail. Chapitre III—Sources radioactives. Chapitre IV—Appareil-

lage spectrographique. Chapitre V—Champ magnétique. Chapitre VI—Spectrographie magnétique.

Finalement dans un dernier chapitre j'aborde le problème de la conversion interne et je donne un résumé des résultats expérimentaux, sur le nombre de particules β et γ qui accompagnent la transmutation Ra D → Ra E, obtenus par Kikuchi, Gray et O'Leary, Bramson, Stahel et Sizoo, Richardson et Leigh-Smith, Lee et Libby. Je montre l'impossibilité de concilier ces résultats entre eux et avec les calculs théoriques de Hulme, Taylor et Mott, et Fisk.

Le fait que Frilley a trouvé, dans le spectre diffracté du Ra D, au moins 4 raies γ , donne peut-être une possibilité d'explication de certains de ces résultats.

Je montre ensuite l'avantage de poursuivre cette étude de façon à déterminer l'intensité relative des différents rayonnements et la valeur de la chute énergétique entre les niveaux stables du Ra D et du Ra E.

3. Sources radioactives. J'ai préparé des sources de Ra D soit par activation soit par dépôt électrolytique.

a) *Sources linéaires.* Ces sources étaient formées par l'arête d'une lame de nickel, de 0,2 mm d'épaisseur, serrée entre deux lames de verre, carrées, de 2 cm de côté; le dispositif d'activation a été analogue à celui mentionné par Valadares (*Portugaliae Physica*, vol. I, pg. 73, fig. 1).

On disposait de 35 mg de radium et on a activé une source pendant 55 jours et une autre pendant une année; on a mesuré le dépôt actif de Ra D sur l'arête de nickel, avec un compteur Geiger-Muller, par comparaison avec une vieille aiguille de radon étalon.

b) *Sources planes.* Ces sources étaient formées par des lames d'or, de 2 cm × 2 cm, activées électrolytiquement.

En collaboration avec L. Salgueiro, nous avons procédé à l'extraction et la purification du radium D de vieilles aiguilles de radon; la technique suivie fut, sauf légères différences de détail, celle préconisée et suivie par Irène Curie (*Journal de Chimie Physique*, 22, 471, 1925); nous avons accompagné les différentes phases de l'extraction en mesurant avec un compteur Geiger-Muller l'activité soit des produits purifiés, soit des résidus.

Pour faire l'électrolyse nous avons employé une solution azotique à 7% et une densité de courant de $3 \cdot 10^{-4}$ A/cm².

Le Ra D et le plomb, sous la forme de peroxide, vont se déposer sur la lame anodique pendant que le Ra F (polonium) se dépose à la cathode.

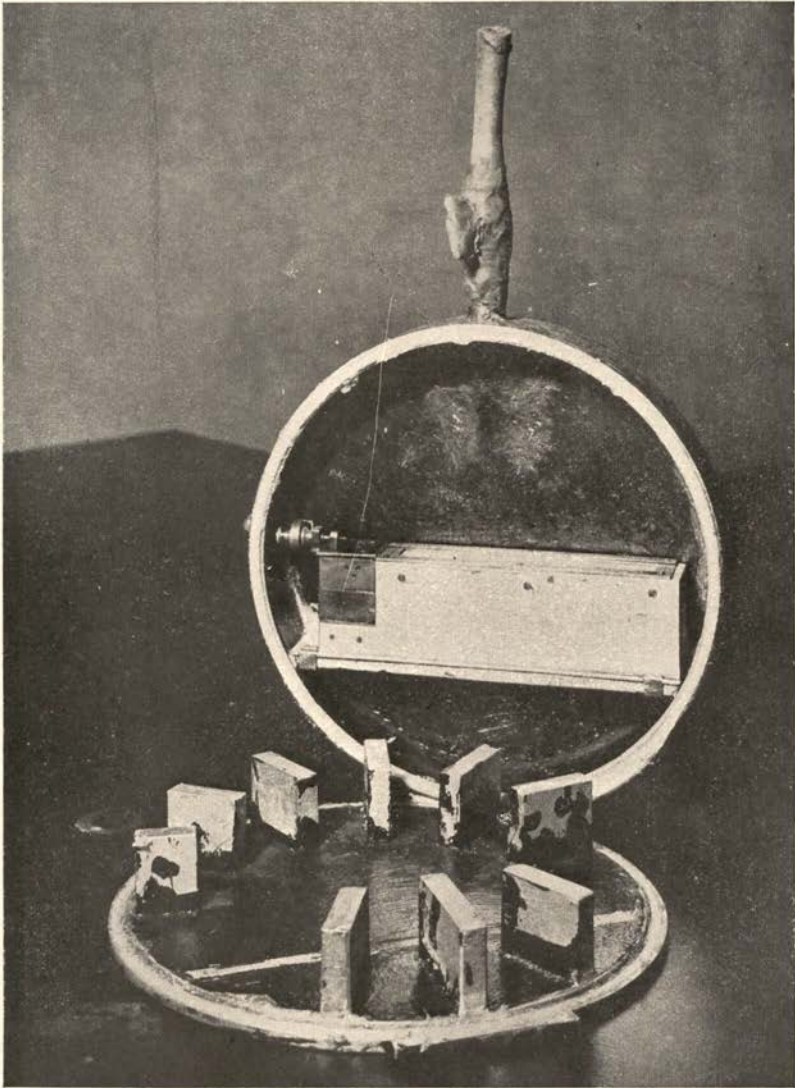
La source plane plus intense avait une activité mesurée de 300 à 400 μC alors que l'activité de la source linéaire la plus forte était seulement de 45 μC .

4. Appareillage spectrographique. J'ai commencé mon travail par l'adaptation d'un électro-aimant destiné originairement à des expériences d'électro-optique. Cet électro-aimant était constitué par deux bobines magnétisantes, d'axe horizontal, montées sur des noyaux, en fer doux, de 78 mm de diamètre extérieur et 180 mm de longueur; les bobines, de diamètres extérieur et intérieur, respectivement, 152 et 79 mm et de 171 mm de longueur, étaient constituées, chacune, par 570 spires de fil de cuivre de 3 mm de diamètre; la résistance des deux bobines, en série, est d'à-peu-près 0,9 ohm.

Le circuit magnétique se ferme à travers une barre de section rectangulaire de 88,5 mm \times 25 mm, appuyée sur des supports, sur laquelle peuvent se déplacer les bobines avec leurs noyaux, ce qui permet une variation de l'entrefer d'à-peu près 100 mm: un jeu de pièces polaires, de formes et dimensions variées, accompagnent l'appareil, mais sont inutiles dans ce cas, à cause de leurs faibles dimensions, les pièces les plus grandes ayant seulement 98 mm de diamètre. Dans ces conditions nous avons commencé par la construction de deux pièces polaires de 300 mm de diamètre et de deux bobines supplémentaires, s'adaptant à celles-là, ayant un nombre de spires croissant régulièrement du centre jusqu'à la périphérie, de façon à créer, dans l'entrefer, un champ uniforme; cette disposition est analogue à celle adoptée par Jean Thibaud (*Annales de Physique*, 5, 73, 1926), qui a ainsi réussi à réduire la variation du champ magnétique de 1,5 \div 2 % jusqu'à 1 \div 2 ‰.

Les deux bobines supplémentaires ont, chacune, 268 spires de fil de cuivre de 3 mm de diamètre; la longueur du fil est à-peu près la même que dans les bobines primitives de façon que la résistance totale des 4 bobines, en série, est de 1,8 ohm.

J'ai aussi construit deux spectrographes, un, pour sources linéaires, visible, sur la planche I, et l'autre pour sources planes, différant du premier seulement par la position du porte-pellicule; les parois de la boîte porte-fente sont 4 pièces de plomb avec une épaisseur minimum de 8 mm, taillées de façon à absorber le rayonnement secondaire et s'adaptant parfaitement à la base de la boîte; sur ces 4 pièces s'adapte le couvercle porte-fente; la largeur de la fente est réglée par une vis micrométrique avec un tambour divisé en centièmes de millimètre. Aux extrémités des porte-pellicules, on a mis des fentes permettant d'impressionner, au préalable, les pellicules par un coup de lumière, produisant



deux repères que facilitent les mesures de distance entre la fente et les différentes raies.

La distance entre les deux repères est à-peu-près la même dans les deux spectrographes, environ 17,5 cm, tandis que la largeur utile de la pellicule est de 2 cm.

Nous avons eu, également, besoin de construire deux chambres à vide. La première, en tôle d'aluminium de 2,2 mm d'épaisseur, a une hauteur de 242 mm et 61 mm de largeur. L'entrée du spectrographe se fait par une porte rectangulaire de 45 mm × 84 mm.

La deuxième, parfaitement visible sur la planche I, est une boîte d'aluminium fondu de 30 cm de diamètre. Le corps de la boîte a, dans son tiers inférieure, une plateforme, venue de fonte, sur laquelle s'adapte l'un ou l'autre des spectrographes. Le couvercle, de 30 cm de diamètre et 9 mm d'épaisseur, a des nervures dont le but est non seulement de renforcer contre la déformation produite par le vide à l'intérieur de la boîte mais aussi de servir de piège aux électrons insuffisamment déviés par le champ magnétique. Un joint en cordon de caoutchouc de 5 mm, avec un diamètre de 290 mm, assure l'étanchéité; bien que le périmètre de ce joint soit beaucoup plus grand que celui du couvercle de l'ouverture rectangulaire de l'autre spectrographe, le vide se maintient beaucoup mieux dans ce deuxième spectrographe.

L'étanchéité des deux chambres s'améliora considérablement en les vernissant au «Glyptal» de la «Central Scientific Company».

Pour produire le vide nous avons utilisé un groupe Metropolitan Vickers avec moteur, pompe à vide préliminaire et pompe à vide élevé, à huile d'Apiezon. Pour mesurer le vide nous avons employé des «Pirani» construits et étalonnés avec un manomètre Mc-Leod.

5. Champ magnétique. Pour créer le courant destiné à maintenir le champ magnétique j'ai utilisé deux batteries de 130 ampère-heures.

L'étude du champ fut faite en déterminant sa variation avec l'entrefer et l'intensité du courant et, pour des valeurs déterminées de ces deux grandeurs, avec le point considéré, de façon à connaître ce qu'on appelle habituellement la «topographie» du champ; on a vérifié aussi la non-influence, sur la valeur du champ, du matériel soit de la chambre à vide soit du spectrographe. Cet étude fut faite presque exclusivement avec un fluxmètre système Grassot, bien que nous ayons aussi utilisé une balance de Cotton pour vérifier certaines mesures faites avec le fluxmètre.

La sensibilité de la bobine d'exploitation qui accompagnait le fluxmètre étant insuffisante, j'ai construit deux bobines avec des sensibilités respectivement 10 et 100 fois plus grandes.

6. Spectrographie magnétique. Bien que nous ayons essayé d'autres pellicules, la plupart des expériences furent réalisées avec pellicule Ilford, X-Ray Film.

Nous avons fait 75 spectrographies avec un total de 3600 heures de pose; nous avons rencontré de grosses difficultés, au début, à cause du mauvais vide et, toujours, à cause de la faiblesse des sources obligeant à des poses trop longues.

Les premières expériences donnant des résultats positifs furent réalisées avec la source plane; on a obtenu les 3 raies principales du spectre de conversion interne du rayonnement γ d'à-peu près 47 keV. Des expériences faites ensuite avec la source linéaire, nous reproduisons ici seulement les valeurs relatifs à la pellicule reproduite dans la planche I qui a été microphotométrée.

Pellicule n.° 69. Temps de pose-187 heures. $I=0,7$ A. $H=113,5$ Oe :

$\rho_1=5,23$ cm	$H_{\rho_1}=594$	$W_1=30,11$	$L_1=16,38$	$W_1+L_1=46,49$ keV
$\rho_2=5,318$	$H_{\rho_2}=604$	$W_2=31,14$	$L_{II}=15,70$	$W_2+L_{II}=46,84$
$\rho_3=5,454$	$H_{\rho_3}=620$	$W_3=32,76$	$L_{III}=13,41$	$W_3+L_{III}=46,17$
$\rho_4=6,26$	$H_{\rho_4}=711$	$W_4=42,60$	$M_I=4,00$	$W_4+M_I=46,60$
$\rho_5=6,465$	$H_{\rho_5}=734$	$W_5=45,41$	$N_I=0,95$	$W_5+N_I=46,36$

énergie moyenne=46,49 keV

À cette énergie de la radiation γ , qui donne par conversion interne les 5 raies du spectre β , correspond une longueur d'onde

$$\lambda = \frac{12385,5}{46,49} = 266,4 \cdot 10^{-11} \text{ cm} = 266 \text{ U. X.}$$

Ces résultats sont en complet accord avec les résultats obtenus antérieurement par spectrographie magnétique comme le montrent les tableaux I et II.

TABLEAU I

Mesures de :	DANYSZ	ELLIS	MEITNER	BLACK	CURTISS	BRAGA
Année de :	1913	1922	1922	1925	1926	1943
H_{ρ_1}	602	600	602	600	594,3	594
H_{ρ_2}	607	605	—	606	600,3	604
H_{ρ_3}	—	628	—	—	—	620
H_{ρ_4}	718	717	718	714	709,1	711
H_{ρ_5}	743	742	741	738	735,2	734
H_{ρ_6}	—	—	—	—	742,5	—

TABLEAU II

Mesures de :	DANYSZ	ELLIS	MEITNER	BLACK	CURTISS	BRAGA
Longueur d'onde en U. X.	261	263	262	263	266	266

7. Le rayonnement γ de 290 U. X., trouvé par les mesures d'absorption sélective, a une énergie comprise entre les valeurs du travail d'extraction du niveau K du praséodyme et du néodyme, c'est-à-dire, entre 41,83 et 43,38 keV. Les électrons de conversion interne de ce rayonnement dans le niveau L_1 auront une énergie de 25,5 à 27 keV.

L'activité photographique de ces électrons, pour l'émulsion Ilford-X, est 91,7 % de l'activité des électrons de conversion, dans le même niveau, du rayonnement γ de 266 U. X.

Nous avons vérifié que 24 heures de pose étaient suffisantes pour obtenir, en employant notre source linéaire, les deux raies L_1 et M_1 de conversion interne du rayonnement de 266 U. X., de façon que, avec le même nombre d'électrons de conversion du rayonnement de 290 U. X., on devait obtenir ces raies, avec la même intensité, après 26,2 heures ; comme nous avons fait des poses de 330 heures, sans les trouver, nous concluons que leur nombre est inférieur à $\frac{26,2}{330} \times 100 = 8\%$ de ceux-là.

Comme la valeur du coefficient de conversion interne pour le rayonnement de 290 U. X. ne doit pas être inférieure à la valeur correspondante du rayonnement de 266 U. X. nous croyons pouvoir affirmer que l'intensité du rayonnement de 290 U. X. est inférieure à 8 % de l'intensité du rayonnement de 266 U. X. Tandis que Rasetti et Amaldi indiquaient 20 %, L. Salgueiro, dans l'article cité, a affirmé que sa valeur devrait être inférieure à 10 % ; finalement nous savons, maintenant, que Frilley a trouvé, par spectrographie cristalline, un rayonnement de 288 ± 2 U. X., mais avec une intensité inférieure à 5 % de l'intensité du rayonnement de 266 U. X. ; cela veut dire que nos résultats s'accordent assez bien avec les résultats obtenus par L. Salgueiro et Frilley pour pouvoir affirmer que l'intensité du rayonnement de 290 U. X. est plus faible que celle déterminée par Rasetti et Amaldi.

J'ai effectué ce travail au Laboratoire de Physique de la Faculté des Sciences de Lisbonne, d'Août 1942 à fin 1943, en qualité de boursier de l'*Instituto para a Alta Cultura*.

