

**1. LOW ENERGY NUCLEAR PHYSICS WITH
GASEOUS DETECTORS:
1950–1959**

This page is intentionally left blank

1. LOW ENERGY NUCLEAR PHYSICS WITH GASEOUS DETECTORS: 1950-1959

| | | |
|-----|------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------|----|
| 1.1 | “Différence de comportement par diffusion des électrons et du rayonnement β ”, (with F. Suzor), <i>Séance du 12 février 1951, Comptes rendus Académie des Sciences</i> 231 , 1950, p. 1471; 282 , 1951, p. 322 | 4 |
| 1.2 | “Sur l’absorption et la diffusion en arrière des électrons et du rayonnement β ”, (with F. Suzor), <i>Séance du 15 janvier 1951, Comptes rendus</i> 231 , 1950, p. 1471 | 7 |
| 1.3 | “Sur la diffusion en arrière des électrons”, (with F. Suzor), <i>Séance du 15 janvier 1951, Comptes rendus</i> 231 , 1950, p. 1471; 232 , 1951, p. 322 et 720 | 10 |
| 1.4 | “Méthode simple de préparation de sources radioactives uniformes”, (with M. Chemla), <i>J. Phys. Radium</i> 15 (1954) 490-491 | 12 |
| 1.5 | “Étude de la capture électronique dans la désintégration du nucléide ^{22}Na ”, <i>J. Phys. Radium</i> 16 (1955) 62 | 14 |
| 1.6 | “Spectrométrie nucléaire par compteurs proportionnels en coïncidence”, (with F. Suzor), <i>J. Phys. Radium</i> 19 (1958) 167-170 | 18 |
| 1.7 | “I. Étude du rayonnement de freinage interne, de l’autoionisation et des électrons émis simultanément avec le rayonnement β du phosphore ^{32}P ”, (with F. Suzor), <i>J. Phys. Radium</i> 20 (1959) 25-30 | 22 |

PHYSIQUE NUCLÉAIRE. — *Différence de comportement par diffusion des électrons et du rayonnement β* . Note (*) de MM. FRANCIS SUZOR et GEORGES CHARPAK, présentée par M. Frédéric Joliot.

Nous avons déjà exposé dans deux Notes (1) le dispositif expérimental (*fig. 1*) nous permettant de mesurer la proportion de rayonnement diffusé dans tout l'espace situé d'un côté d'une feuille plane d'aluminium en fonction de l'épaisseur h de cette feuille (courbe A); la source sans matière est placée sur la feuille elle-même du côté où le rayonnement est mesuré. Pour un radioélément donné, nous pouvons en particulier tirer de la courbe A la proportion P de rayonnement diffusé en arrière dans l'angle solide 2π par une feuille plane de 1 mg/cm^2 d'aluminium. La figure 2 représente P en fonction de l'énergie pour deux éléments émettant des électrons de conversion et trois éléments radioactifs β ; pour les radioéléments β l'énergie portée en abscisse est le tiers de l'énergie limite du spectre correspondant environ au maximum d'intensité de ce spectre. Nous obtenons dans les deux cas (électrons, rayonnement β), deux courbes nettement différentes. Il serait nécessaire pour faire coïncider ces deux courbes de porter en abscisse pour les radioéléments β environ le $1/12$ de l'énergie maximum du spectre. Autrement dit il faudrait que la montée

(*) *Phys. Rev.*, 76, 1949, p. 933.

(*) Séance du 12 février 1951.

(1) *Comptes rendus*, 231, 1950, p. 1471, et 232, 1951, p. 322.

rapide de A à son début pour les radioéléments β soit due de façon prépondérante à la partie très peu énergétique du spectre. Afin d'élucider ce point nous avons disposé contre la feuille plane d'aluminium d'épaisseur variable h une autre feuille d'aluminium d'épaisseur constante $11,3 \text{ mg/cm}^2$, la source se

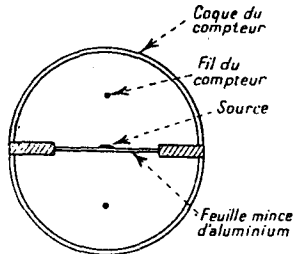


Fig. 1.

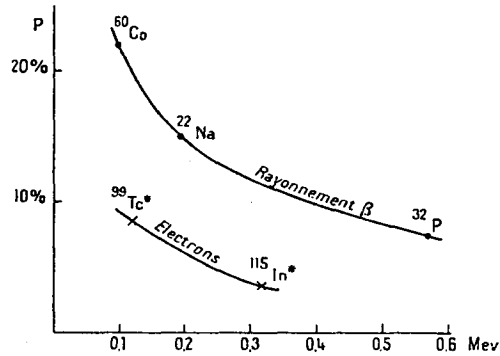


Fig. 2.

trouvant en sandwich entre ces deux feuilles; nous obtenons ainsi la courbe A' représentant, pour le rayonnement ayant traversé la feuille de $11,3 \text{ mg/cm}^2$, la proportion de celui-ci diffusée par la feuille d'épaisseur variable h . Un écran de $11,3 \text{ mg/cm}^2$ arrête tous les électrons d'énergie inférieure à 80 keV ; nous avons de plus constaté que la proportion de rayonnement diffusé en arrière par une épaisseur saturante à travers une feuille de $11,3 \text{ mg/cm}^2$ était de $0 \pm 1\%$ dans le cas des électrons de 120 keV du $^{99}\text{Tc}^*$. La courbe A' pour le ^{60}Co est représentée sur la figure 3, elle donne pour 1 mg/cm^2 $P' = 10\%$.

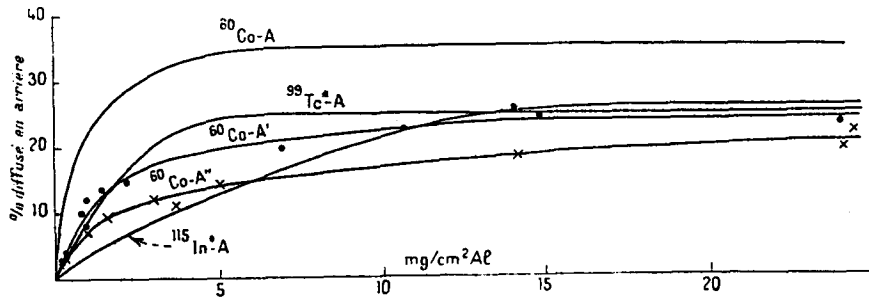


Fig. 3.

Ainsi la courbe « électrons » de la figure 2 est tout entière située nettement au-dessous de cette valeur 10% obtenue avec la partie du spectre de ^{60}Co , située, d'après ce que nous venons de dire entre 120 et 308 keV , énergie limite

du spectre. Il en résulte qu'il n'est pas possible de faire appel aux électrons peu énergiques des spectres β pour faire coïncider les deux courbes de la figure 2, et que celles-ci représentent un argument en faveur de la non-identité des électrons et du rayonnement β que nous avons indiquée dans nos précédentes Notes (1). Ce raisonnement est vrai *a fortiori* si l'on remarque qu'il aurait fallu en réalité comparer la valeur $P' = 10\%$ pour le ^{60}Co non pas aux valeurs de P' portées sur la figure 2 pour les deux raies électroniques mais aux valeurs P' forcément inférieures ($P' = 0$) pour le rayonnement de 120 keV du $^{99}\text{Tc}^*$ que l'on aurait à travers 11,3 mg/cm² d'aluminium. Indiquons encore que la courbe A'' (fig. 3) à travers une feuille de 28,3 mg/cm² d'aluminium qui arrête les électrons jusqu'à 150 keV a donné pour le ^{60}Co , $P'' = 7,5\%$ (proportion de diffusion en arrière donnée par 1 mg/cm² d'aluminium).

(*) Séance du 18 décembre 1950.

(1) *Comptes rendus*, 230, 1950, p. 2279-2280.

(2) *Comptes rendus*, 228, 1949, p. 1583-1584.

(3) *La recherche du nuage radioactif*, Mémoire publié au S. D. I. T. de l'Aéronautique, Paris, n° 228, 1949.

(4) *Comptes rendus*, 230, 1950, p. 1272-1274.

PHYSIQUE NUCLÉAIRE. — *Sur l'absorption et la diffusion en arrière des électrons et du rayonnement β* . Note (*) de MM. GEORGES CHARPAK et FRANCIS SUZOR, présentée par M. Frédéric Joliot.

Dans une première Note (1) nous avons exposé les faits expérimentaux qui nous ont amené à émettre l'hypothèse que le rayonnement pourrait être constitué de particules distinctes des électrons et se transformant en électrons dans des chocs inélastiques en traversant quelques milligrammes par centimètre carré de matière. Ces particules seraient instables et pourraient se désintégrer en électrons avec l'émission d'un ou plusieurs photons suivant une loi exponentielle en fonction du temps. L'énergie ainsi libérée en vol dans le vide sous forme de photons doit être suffisamment faible pour ne pas modifier sensiblement la direction de la vitesse, ce qui explique la possibilité de la focalisation des rayons dans les spectrographes de petite et grande dimension. Ces particules en traversant la matière auraient une grande probabilité lors des chocs atomiques de se transformer en électrons. Une telle hypothèse, qui nous permet en grande partie d'interpréter nos expériences à l'avantage d'expliquer des observations faites par d'autres auteurs.

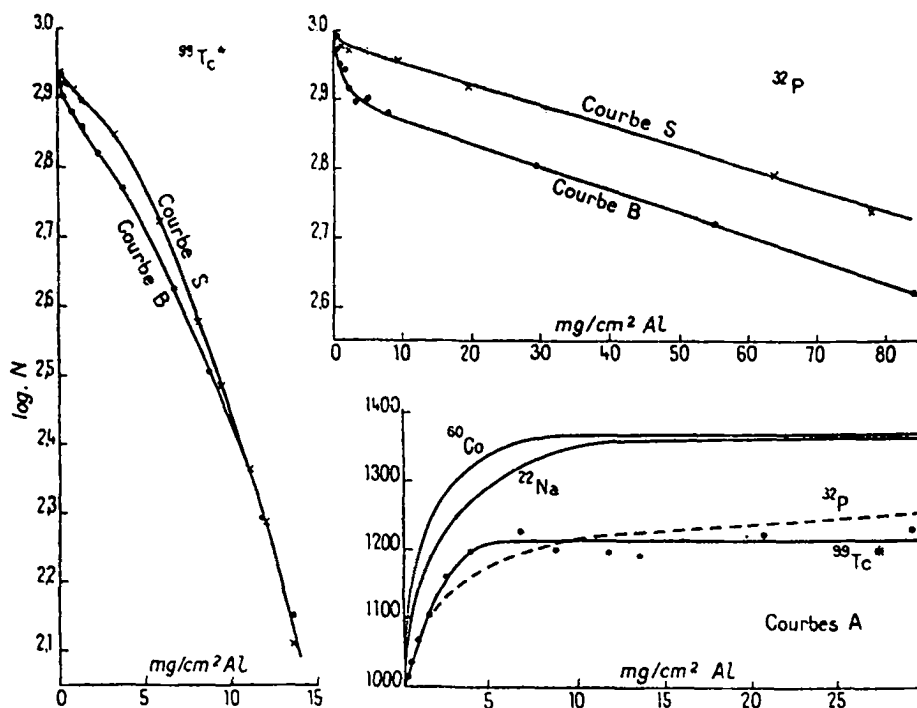
En particulier notre hypothèse explique la différence de la valeur de l'énergie moyenne des rayons du RaE mesurée par calorimétrie et calculée à l'aide des histogrammes obtenus à la chambre de Wilson. En effet l'énergie moyenne calorimétrique est environ (2) 15 % supérieure à celle déduite de l'histogramme. Dans le calorimètre la particule s'est transformée en électron avec émission de un ou de plusieurs photons de faible énergie qui sont absorbés. Dans l'appareil Wilson, après un parcours de l'ordre du centimètre, la majeure partie des β s'est transformée en électrons; l'histogramme donnerait la valeur moyenne de l'énergie des électrons et non celle des β . Le même dispositif expérimental nous a permis de préciser certains faits. Nous avons refait avec une source beaucoup plus intense les expériences sur ^{99}Tc donnant des électrons obtenus par conversion des γ de 141 keV. La courbe A ne présente pas l'aspect indiqué dans notre précédente Note, mais ceci ne modifie pas nos conclusions; les premiers points relatifs à sa montée ont été très probablement faussés dans notre première expérience par la présence d'une impureté à vie courte. Les courbes B et S distinctes (17 % maximum) pour de faibles épaisseurs d'aluminium sont confondues pour des épaisseurs plus grandes.

(*) Séance du 15 janvier 1951.

(1) *Comptes rendus*, 231, 1950, p. 1471.

(2) C. D. ELLIS, W. A. WOOSTER, *Proc. Roy. Soc., A*, 117, 1928, p. 109; L. MEITNER, W. ORTHMANN, *Zeits. Phys.*, 60, 1930, p. 1943; M. LECOIN, *Comptes rendus*, 224, 1947 p. 912.

Raisonnons sans tenir compte de notre hypothèse en assimilant le rayonnement β à des électrons. La théorie indique que pour des électrons la probabilité d'un choc avec déviation d'un angle donné est d'autant plus faible, que la vitesse de l'électron est plus grande; par conséquent le pourcentage p des électrons renvoyés en arrière par une feuille de $0,17 \text{ mg/cm}^2$ d'aluminium, par exemple, ne pourra être qu'une fonction décroissante de l'énergie de ces



électrons. Nos expériences indiquent que $p = 2\%$ pour la raie électronique du $^{99}\text{Tc}^*$ (120 keV), $p = 10\%$ pour le spectre du ^{60}Co dont l'énergie maximum est 308 keV et $p = 2\%$ pour le spectre du ^{32}P dont l'énergie maximum est 1,71 MeV. Ceci impose que p soit nettement supérieur à 10% pour des énergies inférieures à 120 keV afin de trouver 10% en moyenne pour le spectre du ^{60}Co , et que p se maintienne à 2% pour des énergies allant de 120 keV jusqu'à 1,71 MeV afin d'obtenir 2% pour le spectre du ^{32}P . Nos expériences permettent un raisonnement analogue pour une feuille d'aluminium de $0,6 \text{ mg/cm}^2$. Ceci impose que le rayonnement du ^{60}Co renvoyé en arrière par une épaisseur saturante d'aluminium soit en très grande majorité formé d'électrons ayant une énergie inférieure à 120 keV, toute la partie du spectre comprise entre 120 et 308 keV étant relativement peu renvoyée en arrière. Nous sommes alors en présence d'une contradiction

due à l'aspect des courbes B et S qui prouve que, après traversée d'une feuille de 12 mg/cm^2 d'aluminium, il passe dans le cas du $^{99}\text{Tc}^*$ 20 % du rayonnement direct et 0 ± 1 % du rayonnement réfléchi et dans le cas du ^{60}Co , 15 % du rayonnement direct et 15 ± 4 % du rayonnement réfléchi.

PHYSIQUE NUCLÉAIRE. — *Sur la diffusion en arrière des électrons.*
Note de MM. GEORGES CHARPAK et FRANCIS SUZOR, présentée par
M. Frédéric Joliot.

Nous avons décrit dans plusieurs Notes (1) nos expériences relatives à la diffusion en arrière du rayonnement β , dans un angle solide 2π , par la feuille d'aluminium servant de support à la source radioactive. Nous avons étudié la montée rapide à ses débuts de la courbe donnant la proportion de rayonnement diffusé en arrière en fonction de l'épaisseur du support pour les radioéléments β , ^{60}Co , ^{22}Na et ^{32}P ; ayant obtenu ces mêmes courbes pour les émetteurs électroniques ^{99}Tc et ^{113}In nous avons trouvé qu'elles étaient incompatibles avec celles des radioéléments β en tenant compte de la forme connue de leurs spectres énergétiques; c'est pourquoi nous avons dans ces Notes (1) émis l'hypothèse que la particule β pourrait être un électron excité, dont la perte de l'énergie d'excitation par chocs entraînerait une diffusion différente de celle des électrons. Afin d'éliminer les erreurs qui peuvent s'introduire en calculant l'influence des électrons très peu énergiques des spectres β ou ceux des électrons Auger dans le cas des isomères, nous avons repris les expériences (2) de la façon suivante.

La source était déposée sur une feuille d'aluminium d'épaisseur x et mise en sandwich entre celle-ci et une feuille d'aluminium d'épaisseur h variable; le rayonnement compté à travers x permettait d'obtenir la proportion diffusée en arrière dans un angle solide 2π par la feuille d'épaisseur h en fonction de h . Les électrons dont le parcours est inférieur à x n'interviennent pas et de plus la mesure effective pour $h = 0$ est possible, ce qui évite l'extrapolation qui était nécessaire dans les premières expériences. Nous appelons $P(x)$ l'ordonnée de la courbe ainsi obtenue pour la valeur $h = 1 \text{ mg} \cdot \text{cm}^2$ d'aluminium; $P'(x)$ est

(1) *Comptes rendus*, 231, 1950, p. 1471; 232, 1951, p. 322 et 720.

(2) *Journal de Physique* (sous presse).

donc la proportion (exprimée en pour-cent) de rayonnement diffusé en arrière par $1 \text{ mg} \cdot \text{cm}^2$ à travers $x \text{ mg} \cdot \text{cm}^2$. Nous appelons de même $\sigma(x)$ la proportion de rayonnement diffusé en arrière à travers $x \text{ mg} \cdot \text{cm}^2$ par une épaisseur saturante d'aluminium. L'étude en fonction de x des nuclides ^{35}S , ^{60}Co et ^{32}P ainsi que la connaissance des spectres de ces nuclides et de l'absorption par $x \text{ mg} \cdot \text{cm}^2$ d'aluminium nous a permis d'obtenir sans grande ambiguïté les fonctions $P(x)$ pour des raies β monocinétiques. Nous avons trouvé par exemple pour une raie β de 120 keV :

$$P(1) = 21,5 \pm 2 \%, \quad P(6) = 18 \pm 2 \%, \quad P(10) = 11 \pm 2 \%.$$

Les premières expériences publiées que nous avons faites avec le $^{99}\text{Tc}^*$ donnaient $P(1) = 10 \pm 2 \%$ et $\sigma(6) = 15 \%$ (les erreurs indiquées sont de caractère statistique). Utilisant une source de $^{99}\text{Tc}^*$ dont la préparation avait été améliorée, nous avons obtenu les courbes de diffusion en arrière pour la raie électronique de 120 keV à travers $x = 1$ et $x = 6 \text{ mg} \cdot \text{cm}^2$ d'aluminium; ces nouvelles expériences nous ont donné

$$P(1) = 23 \pm 1 \%, \quad P(6) = 20,5 \pm 1 \% \quad \text{et} \quad \sigma(6) = 29 \%.$$

Un accord entre rayonnement β et électrons du même ordre que celui ainsi obtenu pour une énergie de 120 keV a été trouvé pour l'énergie de 320 keV en utilisant les électrons émis par le nuclide $^{113}\text{In}^*$; il en résulte que l'hypothèse que nous avons avancée ne trouve aucune justification dans l'étude de la diffusion en arrière des électrons. L'écart de 13 à 14 % entre les deux expériences sur le $^{99}\text{Tc}^*$ pour $P(1)$ et $\sigma(6)$ s'explique par le fait que la première source n'était pas absolument sans matière et qu'une diffusion très importante se produisait dans la matière elle-même de la source faussant ainsi considérablement les résultats. Nous n'avons pas tenu compte dans les valeurs numériques précédemment indiquées du gaz se trouvant derrière la source (8 cm argon + 1 cm alcool); il faudrait le faire pour obtenir une valeur absolue de la proportion de rayonnement diffusé en arrière dans un angle solide 2π .

(¹) J. E. MOYAL, *Phil. Mag.*, octobre 1950, p. 1058-1077.

LETTRES A LA RÉDACTION

MÉTHODE SIMPLE DE PRÉPARATION DE SOURCES RADIOACTIVES UNIFORMES

Par G. CHARPAK et M. CHEMLA,
Laboratoire de Chimie Nucléaire,
Collège de France, Paris.

Les sources radioactives préparées par évaporation directe d'une solution sur un support sont constituées par un ensemble de cristaux isolés; de ce fait, la densité superficielle réelle est plusieurs centaines de fois plus élevée que celle calculée en supposant le dépôt uniforme [1]. Cet inconvénient peut être évité lorsque le radioélément est déposé par projection thermique dans le vide [2]. Cette méthode nécessite une installation importante et les rendements sont en général faibles.

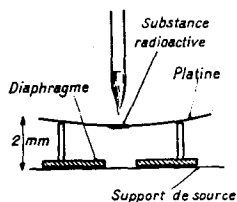


Fig. 1.

Dans ces expériences nous avons pu obtenir des sources minces et uniformes, par sublimation des radioéléments à l'air; pour cela, une goutte de solution active est évaporée à sec sur une feuille de platine de $1/20^{\circ}$ mm d'épaisseur; celle-ci est placée légèrement au-dessus du support, la face active tournée vers ce dernier (fig. 1); le platine est alors localement portée au rouge pendant une fraction de seconde par une petite flamme de chalumeau gaz-oxygène; dans ces conditions, un support de $10 \mu\text{g}/\text{cm}^2$ de LC 600 ne subit aucun dommage et le sel radioactif se trouve déposé uniformément avec un rendement de l'ordre de 50 pour 100.

Cette méthode a été utilisée pour déposer des couches minces de chlorures de Na, K, Rb, Ag, Cs, sur des faces cristallines afin d'étudier la diffusion d'ions radioactifs dans les cristaux [3]. Elle a également permis d'obtenir des sources de ^{22}Na et ^{65}Zn , dans lesquelles des électrons Auger de 0,8 keV subissaient une très faible autoabsorption [4].

Cependant, lorsque la source déposée sur le platine est insuffisamment séchée, des crépitements avec projection d'amas de matières peuvent se produire. Pour illustrer ces résultats, nous avons reproduit sur la figure 2 des autoradiographies de sources de ^{22}Na de même activité préparées respectivement par :

a. évaporation directe d'une goutte de solution sur aluminium;

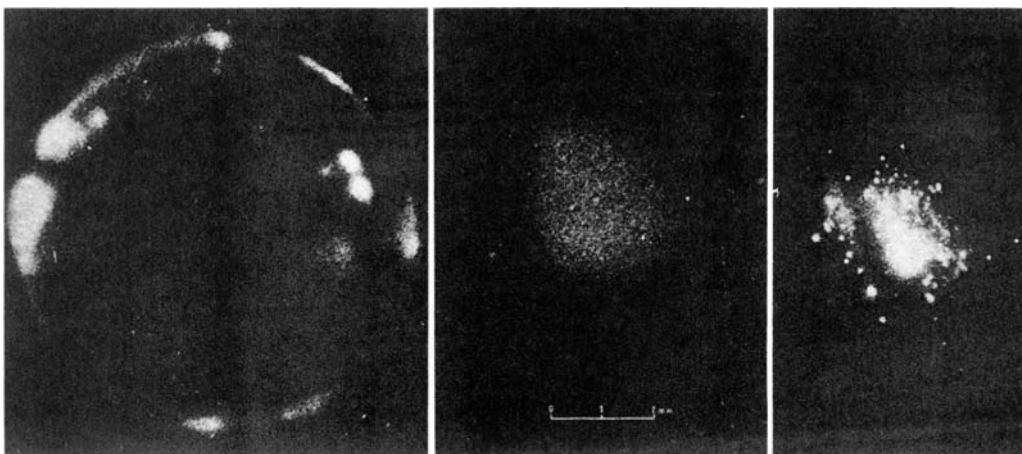


Fig. 2.

b. sublimation convenable par la méthode que nous décrivons;
c. sublimation d'une goutte insuffisamment séché.

Cette méthode, très simple, n'est cependant pas générale; elle s'applique seulement aux sels volatils à l'air sans décomposition, c'est-à-dire la série des

halogénures alcalins et les chlorures d'Ag, Tl, Pb, Bi, Hg; elle est encore applicable aux éléments dont les oxydes sont volatils, c'est le cas de Zn, Cd, As, Sb, etc. Enfin, dans les cas où le chauffage à l'air du chlorure conduit à un oxyde réfractaire (Fe, Sr, terres rares, etc.), cette méthode peut encore être utilisée à condition de travailler en atmosphère contrôlée (gaz inerte contenant de préférence de petites quantités de HCl ou Cl₂); La figure 3 représente un petit appareil de verre qui a été utilisé à cet effet.

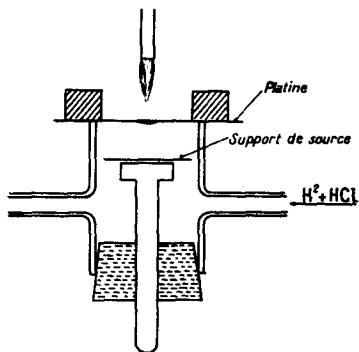


Fig. 3.

En résumé, le procédé de préparation de sources radioactives minces et uniformes que nous décrivons est simple; il nécessite l'emploi de composés chimiques convenables, en général halogénures; sa rapidité le rend applicable aux radioéléments de période courte.

Manuscrit reçu le 12 avril 1954.

- [1] CHARPAK G. et SUZOR F. — *J. Physique Rad.*, 1954, 15.
- [2] FRAUENFELDER H. — *Helv. Phys. Acta*, 1950, 23, 347.
- [3] CHEMLA M. — *C. R. Acad. Sc.*, 1954, 238, 82.
- [4] CHARPAK G. — *J. Physique Rad.* (sous presse).

ÉTUDE DE LA CAPTURE ÉLECTRONIQUE DANS LA DÉSINTÉGRATION DU NUCLIDE ²²Na

Par G. CHARPAK,

Laboratoire de Physique et Chimie nucléaires, Collège de France, Paris.

Sommaire. — L'étude de ²²Na est faite avec un compteur Geiger 4π. On met en évidence l'émission d'un rayonnement de très basse énergie, indépendant des rayons β⁺, complètement absorbé dans un film de quelques microgrammes par centimètre carré d'aluminium ou de matière plastique LC 600 et attribué aux électrons Auger d'énergie maximum 0,85 keV, qui suivent la capture électronique. En raison du très faible parcours de ces électrons, nous sommes amené à discuter particulièrement une méthode simple de préparation de sources radioactives minces et uniformes. Nous obtenons la valeur du rapport

$$\frac{\text{Capture } A}{\text{Emission } \beta^+} = (6,5 \pm 0,9) \text{ pour } 100.$$

Introduction. — Le nuclide ²²Na se désintègre suivant le schéma de la figure 1.

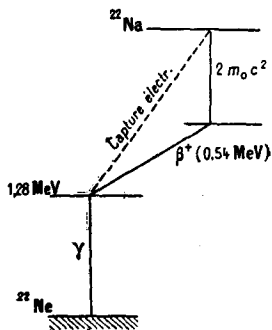


Fig. 1. — Schéma de désintégration du ²²Na.

Divers auteurs ont tenté de mesurer le rapport

$$\frac{P_e}{P_{\beta^+}} = \frac{\text{Capture électronique}}{\text{émission } \beta^+}.$$

Ce problème, outre son intérêt théorique a une certaine importance pratique, car ²²Na est souvent utilisé pour calibrer l'efficacité des compteurs à scintillations et il est important de savoir si le nombre des positons est égal à celui des quanta de 1,28 MeV.

Le tableau I donne le résultat de diverses mesures.

La nature de la transition du ²²Na au ²²Ne n'est pas connue avec certitude. En admettant que la transition soit permise (ΔJ = 1 ou 0, non), le calcul théorique donne $\frac{P_e}{P_{\beta^+}} = 0,11$ en excellent accord avec la mesure la plus précise de Miller et Sherr [5].

TABLEAU I.

| $\frac{P_e}{P_{\beta^+}}$ | Auteurs. |
|---------------------------|----------------------------------|
| 0..... | Bothe (1945) |
| 0 ± 0,05.... | Good W. M. et coll. (1946) |
| 0,10 ± 0,05.... | Bouchez R. (1950) |
| 0,04 ± 0,03.... | Major J. K. (1951) |
| 0,07 ± 0,02.... | Hornayak W. F. et Coor T. (1953) |
| 0,110 ± 0,006... | Miller R. H. et Sherr R. (1954) |

La méthode de ces auteurs repose sur la comparaison du nombre absolu de positons et de rayons γ de 1,28 MeV émis par une source de ²²Na. Notre travail, entrepris avant la publication des résultats de Miller et Sherr, ne nous permet pas d'atteindre une aussi grande précision dans le cas particulier du ²²Na. Cependant la méthode utilisée offre des possibilités d'emploi plus général.

Principe de la méthode. — La capture électronique dans le ²²Na se traduit essentiellement, en raison du rendement de fluorescence voisin de zéro, par l'émission d'électrons Auger du néon dont l'énergie maximum est de 0,85 keV.

Le spectre β⁺ comporte certainement un nombre infime de positons de cette énergie à cause de la répulsion coulombienne avec le noyau.

Une méthode d'absorption peut donc en principe permettre la mise en évidence de la capture. La difficulté essentielle réside dans la détection des électrons et dans la préparation de sources suffisamment minces par rapport au parcours des électrons de 0,85 keV. Celui-ci est au maximum de quelques microgrammes par centimètre carré, soit quelques centaines de couches atomiques.

Mesures. — La source est préparée à partir d'une solution de chlorure de sodium dont l'activité

spécifique est de 1 mC de ²²Na par milligramme de matière. Elle est déposée par la méthode de sublimation à l'air, décrite avec M. Chemla dans une Note récente [7], sur un support de source de LC 600, aluminisé de chaque côté et dont la masse superficielle totale est de 20 μg/cm².

Le support de source, tendu sur un trou de diamètre 1 cm constitue la surface de séparation de deux compteurs 2π. Le diamètre de la source est de 5 mm. Nous pouvons mesurer le nombre d'impulsions N₁ et N₂ dans chaque compteur, ainsi que les coïncidences N_c.

Les fils des deux compteurs peuvent également être connectés en parallèle. Le nombre d'impulsions alors compté, N_{2π} est égal à N₁ + N₂ - N_c.

Afin d'obtenir une grande stabilité et une précision suffisante dans la mesure de N_{2π} les impulsions du compteur sont envoyées dans un préamplificateur à temps mort T qui élimine pratiquement

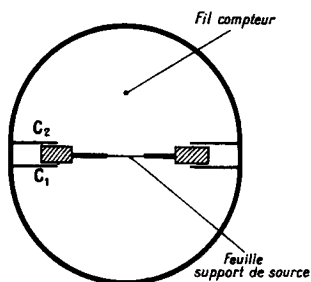


Fig. 2. — Coupe schématique du double compteur 2π. Le dispositif exact est décrit en détail par ailleurs [6].

tous les coups multiples. Avec T = 5 ms, la pente du compteur est inférieure à 0,5 pour 100 pour 100 V. Chaque mesure est affectée de la correction des pertes au moyen de la formule

$$N_{\text{réel}} = \frac{N_{\text{compté}}}{1 - T \times N_{\text{compté}}}$$

T est connu avec une précision de 1 pour 100.

Nous appelons A₁ et A₂ les écrans situés entre la source et chaque compteur. Le tableau II résume les résultats obtenus dans diverses conditions :

TABLEAU II (²²Na.)

| A ₁ (μg/cm ²) | A ₂ (μg/cm ²) | N _{2π} (c/m) |
|-----------------------------------------|-----------------------------------------|--------------------------|
| 20 LC 600 | 0..... | 3030 ± 15 |
| 20 » | } 0..... | 3035 ± 12 |
| + 170 Al | | |
| 20 LC 600 | 170 Al..... | 2910 ± 5 |

On voit qu'il y a émission par la source d'un rayonnement peu pénétrant, ne pouvant pas tra-

verser le support LC 600 de 20 μg/cm² alors que les positons sont absorbés de façon négligeable par une feuille de 170 μg/cm² d'aluminium.

La source étudiée émet 120 rayons très peu pénétrants dans un des compteurs 2π.

Lorsque nous déposons sur la source, par projection thermique dans le vide une couche d'aluminium de 20 μg/cm², ce rayonnement est également totalement absorbé. Il est important de noter qu'il n'est pas associé au rayonnement β⁺. En effet, l'absorption d'un rayon émis simultanément avec un positon qui n'est pas absorbé n'affecte pas N_{2π}.

Il est normal d'attribuer le rayonnement très « mou » émis par le ²²Na, indépendamment des positons, aux électrons Auger qui suivent la capture électronique. Notons que les rayons γ de 1,28 MeV, ne jouent qu'un rôle peu important en raison de leur faible efficacité (< 1 pour 100). Nous les négligerons dans la suite de la discussion.

Nos résultats expérimentaux conduisent à :

$$\frac{P_e}{P_{\beta^+}} = \frac{1}{\lambda_K} \frac{120}{2910} = \frac{1}{\lambda_K} (4,1 \pm 0,05) \text{ pour } 100,$$

λ_K est la probabilité pour qu'une désintégration par capture électronique produise une impulsion dans le compteur 2π situé du côté de la source. Théoriquement, λ_K peut être supérieur à 1/2, soit en raison de la rétrodiffusion des électrons Auger, soit en raison des électrons secondaires produits dans le support de source par les électrons qui y pénètrent. Étant donné que λ_K < 1, nous pouvons affirmer que :

$$\frac{P_e}{P_{\beta^+}} > (4,1 \pm 0,5) \text{ pour } 100.$$

Étude de la source. Mesure de λ_K. — Nous avons essayé de mesurer λ_K et de vérifier du même coup la qualité de la source utilisée.

Nous tirerons profit du fait que l'énergie de liaison d'un électron L du cuivre (0,95 keV) est voisine de celle d'un électron K du néon (0,90 keV).

Nous préparons par la même méthode, sur un support d'aluminium de 170 μg/cm², une source de ⁶⁵Zn de même étendue que celle de ²²Na et d'activité spécifique voisine. Le support d'aluminium peut être placé contre des écrans de béryllium et d'or. Le tableau III résume nos résultats.

Les couches d'aluminium de quelques microgrammes par centimètre carré sont déposées sur la source par projection thermique dans le vide. Leur épaisseur est déterminée de deux façons :

1° On pèse la quantité d'aluminium qui a été évaporée et on admet que les atomes ont été projetés de façon isotrope;

2° On place le support de source, situé à 15 cm du filament sur une feuille d'aluminium de 100 cm² et l'on pèse avec une balance sensible au 1/100° de

milligramme l'augmentation de poids de la feuille. On en déduit aisément la densité superficielle de la matière projetée sur la source.

Les résultats des deux méthodes concordent à 50 pour 100 près.

D'après le schéma de désintégration du ^{65}Zn ,

TABLEAU III (^{65}Zn .)

| A_1 | A_2 | N_1 (c/m) | N_2 (c/m) | $(N_2/c/m)$ |
|------------------------------------------------------------------|-------------------------------------|-------------|-------------|-------------|
| 170 $\mu\text{g}/\text{cm}^2$ Al + 40 mg/cm^2 Be | 0..... | 152 | 11 500 | 100 \pm 4 |
| » | 3 $\mu\text{g}/\text{cm}^2$ Al..... | 150 | 4 700 | 18 \pm 3 |
| » | 7 » Al..... | 150 | 4 220 | 13 \pm 2 |
| » | 17 » Al..... | 150 | 3 500 | 5,4 \pm 1 |
| 170 $\mu\text{g}/\text{cm}^2$ Al + 40 mg/cm^2 Au | 0..... | 25 | 11 500 | 18 \pm 2 |

actuellement bien déterminé (fig. 3), le compteur C_1 ne détecte pratiquement, à travers l'écran de béryllium, que les photons K du cuivre et les rayons γ d'énergie 1,114 MeV.

Si l'on fait varier l'épaisseur des écrans de béryllium à partir d'une épaisseur minimum de 20 mg/cm^2 ,

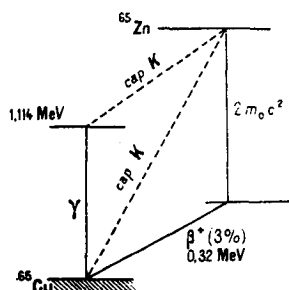


Fig. 3. — Schéma de désintégration du ^{65}Zn .

on constate que l'absorption du rayonnement, compte tenu de la géométrie particulière, a lieu suivant le coefficient d'absorption des photons K de 8 keV. Ceci montre que sur les 150 impulsions N_1 une fraction peu importante est produite par les rayons γ énergiques. On obtient une limite supérieure de celle-ci avec l'écran d'or de 40 mg/cm^2 . Celui-ci absorbe, en effet, totalement les photons K tandis que l'efficacité du compteur aux rayons γ est sans doute augmentée. Nous pouvons ainsi conclure qu'approximativement 127 photons K sont comptés dans C_1 et provoquent 82 coïncidences.

Un photon K est lié le plus souvent à une vacance dans la couche L . Soit λ_L la probabilité pour qu'une vacance dans la couche L provoque l'émission d'un rayonnement qui déclenche le compteur C_2 . On a

$$N_c = N_1 \times \lambda_L,$$

où N_c est le nombre de coïncidences entre C_1 et C_2 et N_1 le nombre de photons K comptés. Nos résultats expérimentaux nous permettent de conclure que $\lambda_L \sim 0,64$.

Or, les énergies de liaison des électrons K du néon et L du cuivre sont très voisines.

Dans les deux cas il y a émission, en majeure partie, après une vacance dans ces couches, d'électrons Auger d'énergies comparables.

Les sources ont été préparées par le même procédé et déposées sur l'aluminium.

L'activité spécifique du ^{65}Zn (3 mc/mg) est du même ordre que celle du ^{22}Na (1 mc/mg).

Si nous admettons que

$$\lambda_L(\text{zinc}) = \lambda_K(\text{sodium}),$$

ceci nous conduit à :

$$\frac{P_e}{P_+} = (6,5 \pm 0,9) \text{ pour } 100.$$

Discussion. — La chute très rapide du nombre des coïncidences, dans le cas du ^{65}Zn (tableau III), lorsque la source est couverte d'une couche de matière de quelques microgrammes par centimètre carré, prouve que la source est elle-même extrêmement mince et confirme la qualité de la méthode de préparation des sources minces uniformes par sublimation à l'air.

Nous avons, par le même procédé, recouvert la source de ^{22}Na , qui a servi aux mesures précédentes avec une nouvelle couche de ^{22}Na , trois fois plus intense. Aux erreurs statistiques près, nous observons le même nombre relatif de rayons de très basse énergie sortant de la source. Ceci montre que les électrons Auger ne subissent pas d'absorption notable dans la matière de la source.

Si nous confrontons notre résultat :

$$\frac{P_e}{P_+} = (6,5 \pm 0,9) \text{ pour } 100$$

avec celui de Miller et Sherr :

$$\frac{P_e}{P_+} = (11,0 \pm 0,6) \text{ pour } 100$$

et si nous admettons que la méthode de ces derniers ne comporte pas de cause d'erreur systématique supérieure à la précision statistique indiquée, nous voyons que nous commettons une assez grande

erreur dans l'estimation de λ_K . Tout se passe comme si l'épaisseur de la source était telle que les électrons secondaires produits dans l'aluminium et la matière de la source par les électrons Auger K, ainsi que les rayonnements liés au réarrangement de la couche L du néon ne pouvaient pas être détectés par le compteur 2π situé du côté de la source.

Notre méthode pourrait donc comporter une incertitude d'un facteur voisin de deux quant au nombre de désintégrations se produisant par capture électronique. Elle s'applique toutefois dans des cas où le schéma de désintégration ne permet pas l'emploi de la méthode des coïncidences utilisée par Miller et Sherr.

Elle peut permettre une recherche systématique des désintégrations par capture électronique dans les noyaux impairs-impairs légers pour lesquels une telle éventualité est possible, par exemple le ^{24}Cl . Elle ne nécessite que de très faibles activités, ce qui facilite la réalisation de sources très minces.

Influence de la méthode de préparation des sources. — Nous avons repris les expériences relatives à ^{24}Na avec des sources préparées par séchage d'une goutte. Nous observons 2,5 fois moins d'électrons Auger lorsque la source est déposée sur un

film de LC 600 aluminisé, et leur disparition totale lorsque la source est déposée sur une feuille d'aluminium battu de $170 \mu\text{g}/\text{cm}^2$. Ceci montre que lorsque l'on prépare des sources de ^{24}Na par l'évaporation d'une goutte, même si la solution contient une quantité infime de matière, l'auto-absorption peut jouer un rôle notable et conduire à des erreurs voisines de 5 pour 100 dans l'estimation de l'intensité absolue des sources au moyen de la technique du compteur 4π Geiger.

Cette erreur peut être également importante dans le cas d'émetteurs β peu énergiques comme ^{14}C .

La méthode de sublimation à l'air que nous avons employée est aussi rapide que le séchage d'une goutte. Elle permet dans de nombreux cas d'éliminer ces difficultés tout en donnant d'excellents rendements.

Nous devons d'intéressantes discussions relatives à ce travail à MM. F. Suzor, P. Radvanyi et M^{me} Marty.

Nous remercions particulièrement M. Joliot d'avoir bien voulu suivre ce travail.

Manuscrit reçu le 12 avril 1954.

BIBLIOGRAPHIE.

- [1] BOUCHEZ R. — *Physica*, 1952, **18**, 1171.
 [2] GOOD W. M., PEARLIE D. et DEUTSCH M. — *Phys. Rev.*, 1946, **69**, 313.
 [3] MAJOR J. K. — *Thèse*, Paris, 1951.
 [4] HORNYAK W. F. et COOR T. — *Phys. Rev.*, 1953, **92**, 676.
 [5] MILLER R. H. et SHERR R. — *Bull. Amer. Phys. Soc.*, 1953, **28**, 4; *Phys. Rev.*, 1954, **93**, 1076.
 [6] CHARPAK G. et SUZOR F. — *J. Physique Rad.*, 1952, **13**, 1.
 [7] CHARPAK G. et CHERLA M. — *J. Physique Rad.*, 1954, **15**, 490.

SPECTROMÉTRIE NUCLÉAIRE PAR COMPTEURS PROPORTIONNELS EN COINCIDENCE

Par G. CHARPAK et F. SUZOR,
Laboratoire de Synthèse Atomique, C. N. R. S.

Résumé. — Description d'un spectromètre à compteurs proportionnels spécialement adapté à l'étude des radiations de faible énergie (électrons ou photons au-dessous de 20 keV) émis par des atomes radioactifs avec une très faible probabilité. Deux compteurs proportionnels sont en contact, dans un plan qui contient le porte source. La source est en contact direct avec le gaz de l'un des compteurs. Les impulsions de ce compteur en coincidence avec celles de l'autre sont analysées par un analyseur à canaux multiples. On décrit le montage électronique associé, en insistant sur le fait que les amplificateurs ont été rendus non saturables.

Abstract. — Description of a proportional counter spectrometer specially adapted to the study of low energy radiations (electrons or photons below 20 keV) emitted by radioactive atoms with very small probability. Two proportional counters of 18 cm diameter are in contact along a plane which contains the source holder. The source is in direct contact with the gas of one of the counters. Impulses of this counter in coincidence with impulses of the other are analyzed by a multi-channel analyzer. The associated electronics in described with particular emphasis on the problems of non overloading qualities of the amplifiers.

Nous avons construit un appareil destiné à la mesure de l'énergie et de l'intensité d'un rayonnement photonique ou électronique de très basse énergie émis simultanément avec le rayonnement β afin d'étudier, par exemple, le freinage interne et l'autoionisation ainsi que certains schémas de désintégration radioactive contenant des transitions entre niveaux d'énergie très voisines.

La mesure de l'énergie est obtenue par l'utilisation de deux compteurs proportionnels. La durée importante et variable de la montée des impulsions ainsi fournies impose un grand temps de résolution lors de la détection en coincidence de ces impulsions. C'est la raison pour laquelle nous avons placé les deux compteurs en contact l'un de l'autre suivant une génératrice horizontale, et la source dans le plan tangent vertical commun au milieu de cette génératrice; chaque compteur est ainsi vu de la source sous un angle solide 2π , ce qui a pour effet de réduire à une valeur relative acceptable les coincidences fortuites. Les compteurs sont de grandes dimensions pour augmenter l'efficacité lors de la détection de photons et pour que les électrons d'énergie la plus élevée possible soient totalement absorbés dans le compteur; il en résulte aussi que des électrons d'énergie plus grande et au voisinage du minimum d'ionisation perdront, dans le compteur, une énergie suffisante pour pouvoir être distingués des électrons ou des photons de basse énergie que l'on se propose d'étudier. Indiquons, à titre d'exemple, que pour le rayonnement β du phosphore 32, 95 % des électrons perdent dans le compteur une énergie supérieure à 10 keV pour un remplissage de propane sous une pression voisine de la pression atmosphérique. On obtient, dans ces conditions, un nombre de coinci-

dences fortuites relativement faible en mesurant les impulsions en coincidence obtenues dans l'un des compteurs après discrimination à une valeur supérieure à une dizaine de keV environ (presque totalité du rayonnement β) et dans l'autre compteur après sélection dans une bande étroite explorant le domaine inférieur à 10 ou 20 keV où nous voulons étudier le rayonnement émis simultanément avec le rayonnement β . On peut ainsi mesurer, dans ce domaine d'énergie, des intensités de l'ordre de quelques 10^{-4} de celle du rayonnement β . Cet exemple typique illustre le domaine d'application de notre appareil. Une autre caractéristique importante réside dans l'existence d'un sas permettant l'entrée et la sortie rapide des sources sans perturbation du gaz remplissant le compteur; il est ainsi possible de mettre la source directement en contact du gaz de l'un des compteurs et, à la condition d'employer des sources sans matière vaporisées sous vide [1], de pousser la limite inférieure de l'énergie des rayonnements étudiés jusqu'à quelques centaines d'électrons-volts.

I. Description de l'installation. — Une enceinte cylindrique étanche en fonte à axe vertical de 50 cm de diamètre, 35 cm de hauteur et 2,5 cm d'épaisseur de paroi contient les deux compteurs accolés dont les axes sont horizontaux; cette enceinte communique avec des dispositifs annexes permettant d'y faire le vide et de la remplir du gaz choisi; aucun problème d'étanchéité ne se pose ainsi pour les compteurs eux-mêmes. Sur la figure 1, on voit, au-dessus de l'enceinte et suivant son axe, une barre qui, par translation verticale, permet l'entrée et la sortie de la source. Lorsque celle-ci est enlevée l'étanchéité de l'enceinte est obtenue par un clapet

intérieur dont la commande extérieure se trouve sur la droite.

Une petite turbine actionnée de l'extérieur par

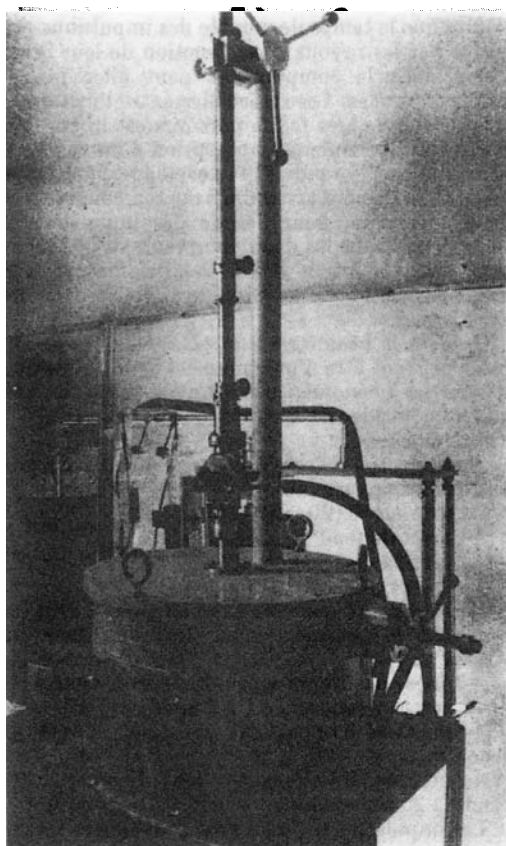


FIG. 1.

un volant magnétique établit d'une façon permanente un passage du gaz dans un four de purification contenant du calcium à une température réglable jusqu'à 400 °C.

Les fils des compteurs qui sont en molybdène de 0,08 millimètre de diamètre, sont à un potentiel nul, les coques des deux compteurs étant portées à une même haute tension négative. La figure 2 représente les deux compteurs fixés par l'intermédiaire d'une plaque isolante en plexiglas sur la base de l'enceinte cylindrique. L'isolement électrique entre les coques des compteurs et l'enceinte est obtenu par des feuilles de plexiglas tapissant la paroi intérieure de celle-ci. Les coques des compteurs sont en cuivre ; ceux-ci sont munis de tubes

de champ en nickel [2] qui, portés à un potentiel intermédiaire exactement ajusté, ont pour effet de limiter le volume effectif du compteur à des plans perpendiculaires au fil et passant par l'extrémité de ces tubes. La forme et les dimensions exactes des

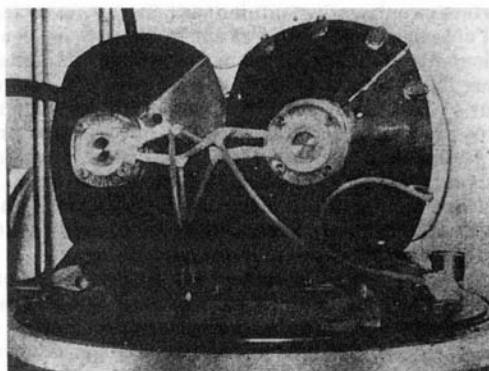


FIG. 2.

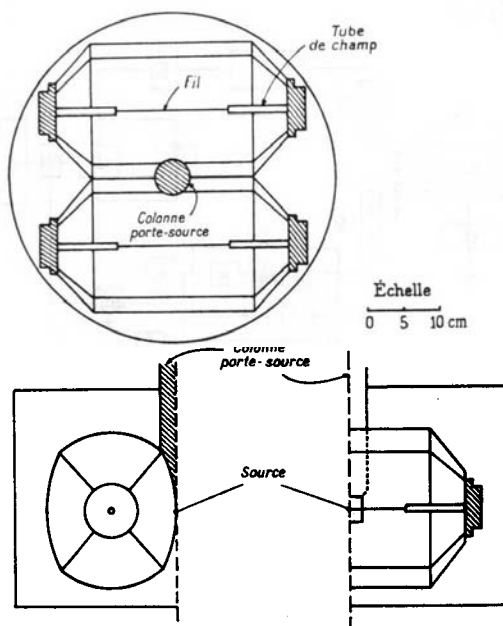


FIG. 3. — Vue en coupe des compteurs.

compteurs sont données sur la figure 3. La forme particulière et non circulaire de la section droite des coques des compteurs a été choisie pour obtenir un plus grand rayon de courbure au voisinage de la

source et augmenter ainsi l'angle solide. Cette forme non circulaire est d'ailleurs sans influence notable sur la bonne marche du compteur. La forme conique des extrémités des compteurs n'a pas d'importance étant donné l'existence des tubes de champ et permet une utilisation maximum de la surface circulaire disponible dans l'enceinte étanche. A l'aide des cotes indiquées sur la figure 3, on peut calculer la longueur moyenne des rayons rectilignes issus de la source dans le volume utile du compteur ; on trouve 12,2 cm. Parmi tous les rayons issus dans l'angle solide 2π , 90 % ont un parcours supérieur à 8 cm, et, pour ceux-ci, la longueur moyenne est de 13,0 cm. Ces données sont importantes pour calculer l'efficacité des photons d'une énergie donnée dans le gaz remplissant le compteur, connaissant la nature et la pression de ce gaz.

Le porte-source lui-même est fixé d'une façon rigide à l'extrémité d'une colonne coulissante ; il est facilement démontable, permettant de mettre à volonté devant la source des écrans d'épaisseur et nature variables.

2. Appareillage électronique. — L'appareillage électronique est destiné aux fonctions suivantes (fig. 4):

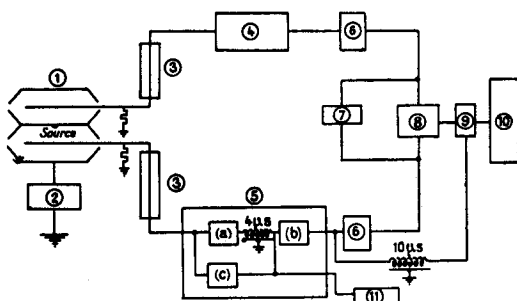


FIG. 4. — Diagramme des éléments de l'appareillage électronique.

1. Compteurs ; 2. Haute tension ; 3. Préamplificateurs ; 4. Amplificateur $\times 10\ 000$; 5. Amplificateur avec blocage des saturées. (a) Étages préamplificateurs. (b) Étages finaux. (c) Porte à transistor ; 6. Discriminateur ; 7. Echelle ; 8. Sélecteur de coïncidences ; 9. Porte débloquée par les coïncidences ; 10. Sélecteur à 50 canaux ; 11. Comptage des impulsions saturées.

— alimentation haute tension des compteurs proportionnels ;
— amplification des impulsions dans chaque voie ;

— détection des coïncidences entre 2 voies ;
— comptage des impulsions et mesure, avec un sélecteur à 50 canaux, du spectre des impulsions de chaque compteur ou des impulsions en coïncidence.

Nous ne décrirons que les éléments particuliers de notre expérience. Le temps de déplacement d'un

électron libre dans le gaz du compteur, depuis le point où il a été libéré jusqu'à la zone voisine du fil où la multiplication commence est fonction de la distance au fil, de la nature et de la pression du gaz. Il atteint 5 microsecondes dans certains cas. Il en résulte que le temps de montée des impulsions produites par les rayons β est fonction de leur orientation dans le compteur et peut aller jusqu'à 5 microsecondes. Les intervalles entre l'instant où un électron de très faible parcours est libéré dans le gaz (par exemple par absorption d'un rayon X) et l'instant où l'impulsion se développe, fluctuent et peuvent également atteindre 5 microsecondes. Il est donc nécessaire, pour l'étude des impulsions en coïncidence dans les deux compteurs, d'utiliser un temps de résolution élevé. Celui-ci mesuré avec précision est voisin de 8 microsecondes dans nos expériences.

Grâce à la géométrie $2\pi \times 2\pi$, les sources utilisées peuvent être d'une intensité assez faible pour étudier les phénomènes rares avec précision, sans que les coïncidences fortuites soient gênantes.

Amplificateurs. — Ceux-ci devaient répondre aux conditions suivantes :

- gain élevé ($20 \times 10\ 000$) ;
- bruit de fond d'entrée très bas ;
- grande stabilité ;
- insensibilité aux surcharges.

Il est fréquent, dans les expériences qui vont être décrites, de travailler dans les conditions suivantes :

- durée des impulsions : 15 microsecondes ;
- temps de montée : 1 à 5 microsecondes ;
- nombre d'impulsions saturées : 1 000 par seconde ;
- nombre d'impulsions dont le spectre est étudié : 20 par seconde.

Les impulsions saturées sont provoquées surtout par les rayons β absorbés dans le même compteur que celui où sont comptés les rayonnements de basse énergie. Elles correspondent à une perte d'énergie jusqu'à 200 fois plus forte que celle produite par les phénomènes étudiés. En raison de leur grande durée elles rendraient impossible l'observation des impulsions de faible amplitude sans les précautions suivantes : l'amplification se fait au moyen d'un préamplificateur de gain 20 et d'un amplificateur 200 kHz de gain 10 000. Les rebondissements sont éliminés aux divers étages à l'aide d'une contre-réaction par diodes qui permet de ne faire agir la contre-réaction que sur l'impulsion de signe indésirable [3]. Cette mesure est cependant insuffisante dans notre cas. L'amplificateur est en plus muni d'un dispositif [4] qui élimine dès les premiers étages les impulsions qui dépassent un certain niveau. Les impulsions sont amplifiées dans une voie parallèle à la voie proportionnelle. Lorsqu'elles dépassent un niveau prédéterminé,

elles débloquent, pendant 20 microsecondes, un transistor qui est placé en parallèle sur la résistance de fuite de grille d'une lampe amplificatrice située

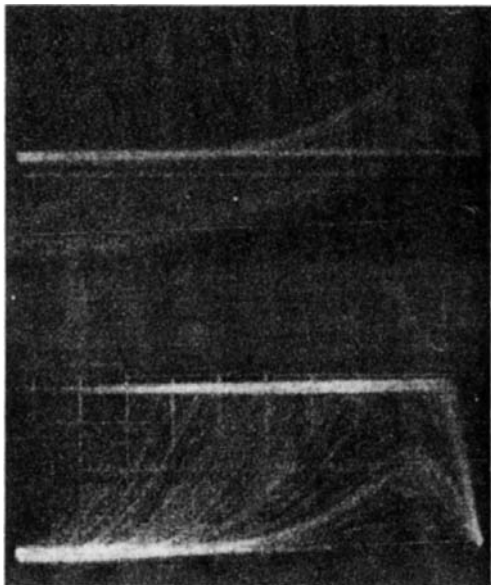


FIG. 5. — Impulsions produites dans le compteur par les rayons X du fer 55 en présence d'un grand nombre d'impulsions saturées fournies par les rayons γ du cobalt 60 (1 avec, 2 sans la porte à transistor — largeur d'un carreau = 2 micro-secondes).

dans les premiers étages de la voie proportionnelle. Les impulsions de la voie proportionnelle sont retardées de 4 microsecondes, à l'aide de ligne à

retard, avant d'arriver sur le transistor. On voit sur les clichés de la figure 5 l'effet de cette porte à transistor.

Ce dispositif limite l'effet des impulsions saturées ; il élimine celles-ci avant le sélecteur de coïncidences ce qui diminue de façon considérable les coïncidences fortuites.

Mesure du spectre. — Les impulsions sont analysées sur un sélecteur à 50 canaux du type Wilkinson, avec un temps mort de 1 milliseconde. Dans ses conditions normales de fonctionnement celui-ci permet d'analyser le spectre des impulsions de l'une ou l'autre voie. De plus il peut être bloqué en permanence ; le déblocage d'une durée de 20 microsecondes est commandé par les impulsions sortant du sélecteur de coïncidences. Ce dispositif permet l'analyse du spectre des impulsions en coïncidence. Les impulsions provenant des amplificateurs proportionnels sont retardées de 10 microsecondes avant d'entrer dans le sélecteur. On évite ainsi les pertes dues aux fluctuations du temps de montée des impulsions dans les compteurs.

Nous remercions M. Lanfrey et M^{lle} Clouet de leur collaboration dans la construction des compteurs et M. Pénège pour la mise au point de l'appareillage électronique. Nous devons une reconnaissance particulière au regretté Pr F. Joliot, Directeur du Laboratoire de Synthèse Atomique, pour l'intérêt constant qu'il a manifesté à ces expériences et pour les discussions dont il nous a fait bénéficier.

Ce travail a pu être réalisé grâce aux moyens mis à notre disposition par le Centre National de la Recherche Scientifique et à une subvention du Commissariat à l'Énergie Atomique.

Manuscrit reçu le 29 octobre 1958.

BIBLIOGRAPHIE

- [1] MERINIS (J.), *J. Physique Rad.*, 1956, **17**, 308.
- [2] COCKROFT (A. L.) et CURRAN (S. C.), *Rev. Scient. Inst.*, 1951, **22**, 37.
- [3] MAGEE (F. I.), BELL (P. R.) et JORDAN (W.), *Rev. Scient. Inst.*, 1952, **23**, 30.
- [4] PÉNÈGE (L.), *J. Physique Rad.*, 1958, **19**, 71 A.

I. ÉTUDE DU RAYONNEMENT DE FREINAGE INTERNE, DE L'AUTOIONISATION ET DES ÉLECTRONS ÉMIS SIMULTANÉMENT AVEC LE RAYONNEMENT β DU PHOSPHORE 32

Par F. SUZOR et G. CHARPAK,

Laboratoire de Synthèse Atomique, C. N. R. S.

Résumé. — On étudie, par analyse des impulsions en coïncidences de deux compteurs proportionnels, les spectres de photons et d'électrons de basse énergie (1 à 25 keV) émis en même temps que les rayons β , par ^{32}P .

Le spectre de photons comprend la raie K de 2,3 keV provenant de l'autoionisation de l'atome résiduel d'intensité $5,5 \cdot 10^{-4}$ par désintégration, et le spectre continu du rayonnement de freinage interne. Ce dernier concorde parfaitement avec les prévisions théoriques de 1 à 6 keV puis monte fortement au-dessus.

Le spectre électronique comprend la raie Auger de 2 keV et un spectre continu important, d'intensité supérieure à celle prévue par la théorie de l'auto-ionisation. Le désaccord devient considérable de 5 à 25 keV, où l'on trouve $6,6 \cdot 10^{-3}$ électrons associés par désintégration.

Abstract. — By analysis of the coincident impulses in two proportional counters study is made of the low energy photon and electron spectrum (1 keV to 25 keV) emitted, simultaneously with beta rays, by ^{32}P .

The Photon spectrum comprises 2,3 keV K-line following autoionisation of the residual atom, of intensity $5,5 \cdot 10^{-4}$ per disintegration, and the internal bremsstrahlung continuous spectrum; the latter agrees perfectly with the theoretical prediction from 1 keV to 6 keV and then it rises strongly above the theoretical values.

The electron spectrum comprises the 2 keV Auger line and an important continuous spectrum. The intensity of the latter is higher than predicted by autoionisation theory. The discrepancy becomes considerable from 5 keV to 25 keV where $6,6 \cdot 10^{-3}$ associated electrons are found per disintegration.

I. Introduction. — Le spectrographe à double compteur proportionnel que nous avons construit [1] a été utilisé pour l'étude des photons et des électrons de basse énergie émis lors de la désintégration du phosphore 32 simultanément avec le rayonnement β . L'exposé de ces expériences montrera qu'il est possible d'éliminer les phénomènes parasites, et que l'on obtient entre 1 et 12 keV le spectre des photons et entre 1 et 25 keV celui des électrons avec une bonne précision, et seulement un ordre de grandeur du phénomène pour des énergies supérieures. Les résultats seront comparés avec les théories du freinage interne et de l'auto-ionisation, faisant apparaître, surtout dans le cas des électrons, un désaccord important.

La grande proximité des 2 compteurs est responsable de l'existence de phénomènes parasites qu'il est nécessaire d'éliminer ou tout au moins de réduire et d'évaluer avec précision. Les impulsions en coïncidence ainsi obtenues sont de deux sortes :

a) un rayon β enregistré dans un compteur projeté dans le support de source, les écrans ou le gaz environnant un électron qui est enregistré dans l'autre compteur ;

b) un rayon β après un très court parcours de l'ordre de un ou plusieurs millimètres est rétrodiffusé par le gaz du compteur ou le bord de la rondelle sur laquelle est fixée la membrane supportant la source ou toute manière environnante et est ensuite enregistré dans l'autre compteur.

Le premier de ces phénomènes parasites a été systématiquement étudié [2] par l'addition d'écrans d'épaisseur variable à des distances variables de la source. Les résultats en accord avec les prévisions théoriques montrent que l'effet peut être considérablement diminué et rendu souvent négligeable à la condition d'employer des sources radioactives obtenues par vaporisation sur un support très mince en matière plastique et de ne pas employer des écrans en contact immédiat de la source mais à des distances d'au moins un demi-millimètre environ.

Le deuxième phénomène parasite dû à la rétrodiffusion du rayonnement β est beaucoup plus facilement contrôlable. On peut modifier la disposition géométrique de la matière entourant la source ; c'est ainsi qu'il est toujours préférable de disposer la membrane porte-source sur un support métallique percé d'un trou de petit diamètre. Nous avons choisi, dans la plupart des cas, comme support de source une membrane en matière plastique aluminisée d'une épaisseur de 40 microgrammes environ par centimètre carré, tendue sur une rondelle en cuivre ou en béryllium de 0,1 à 0,2 millimètre d'épaisseur avec un trou circulaire de 3 millimètres de diamètre. Le meilleur moyen pour contrôler et mesurer les coïncidences parasites de ce type consiste à diminuer la pression du gaz recouvrant les compteurs. Pour toute rétrodiffusion sur une matière autre que le gaz, les conditions

géométriques restant les mêmes, la grandeur de l'impulsion correspondant au parcours dans le premier compteur avant rétrodiffusion diminue proportionnellement à la pression du gaz ; pour la rétrodiffusion sur les molécules du gaz, il s'ajoute à cette même raison de diminution celle due à la diminution de la probabilité de diffusion.

II. Spectre des photons. — Le domaine d'énergie des photons émis simultanément avec le rayonnement β que nous puissions étudier avec notre spectrographe est limité du côté des grandes énergies par l'efficacité du compteur et du côté des basses énergies par l'écran qu'il est nécessaire de mettre devant la source pour arrêter les électrons et diminuer les effets parasites. Cette limite inférieure est de 1 keV. Pour descendre plus bas, il faudrait laisser la source nue, sans écran, et on est alors considérablement gêné par les électrons émis simultanément avec le rayonnement β et les effets parasites précédemment décrits. Par contre pour l'étude d'une désintégration par capture K , ces raisons n'existent plus et rien ne s'oppose, la source étant nue dans l'un des compteurs, à la mesure de photons d'énergie inférieure à 1 keV en coïncidence avec des rayons X ou des électrons Auger.

La figure 1 représente la disposition des divers supports et écrans autour de la source dans les 2 cas choisis pour l'étude du spectre des photons. Ces 2 dispositifs ont l'avantage de rendre pratiquement nulles, dans le domaine d'énergie étudié, les coïncidences parasites par rétrodiffusion. Ils fournissent par contre des impulsions en coïnci-

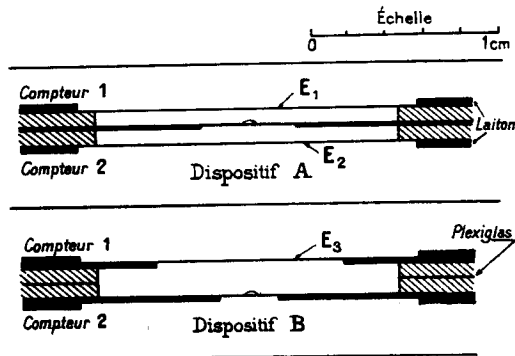


FIG. 1.

Dispositif A : Les écrans E_1 et E_2 sont en béryllium de $3,3 \text{ mg/cm}^2$. La membrane mince supportant la source est tendue sur une plaque de béryllium de $0,2 \text{ mm}$ d'épaisseur percée d'un trou de 5 mm de diamètre.

Dispositif B : L'écran E_3 est constitué par une membrane de matière plastique aluminisée de l'ordre de $40 \text{ microgrammes/cm}^2$ tendue sur une plaque de cuivre de $0,2 \text{ mm}$ d'épaisseur percée d'un trou de 10 mm de diamètre. La membrane mince supportant la source est tendue sur une plaque de cuivre de $0,2 \text{ mm}$ d'épaisseur percée d'un trou de 3 mm de diamètre.

dence dues à des électrons émis simultanément avec le rayonnement β et franchissant les écrans, ainsi que des coïncidences parasites dues à des électrons projetés. Nous ne tenterons pas de distinguer ces impulsions dues à des électrons de deux provenances différentes ; il nous suffira de remarquer qu'un changement de la nature ou de la pression du gaz remplissant les compteurs fournira toujours le même spectre d'impulsions dues aux électrons. En fait, nous obtiendrons le spectre des photons en comparant les résultats obtenus avec les trois remplissages suivants des compteurs :

- a) argon : 60 cm de mercure + propagane 6 cm ;
- b) propane : 57 cm de mercure ;
- c) propane : 8 cm de mercure.

En négligeant l'efficacité des compteurs par effet paroi, il est facile de calculer l'efficacité en fonction de l'énergie pour chacun de ces remplissages, compte tenu des dispositifs A et B représentés sur la figure 1 et de la forme connue des compteurs ; ces courbes sont représentées sur la figure 2.

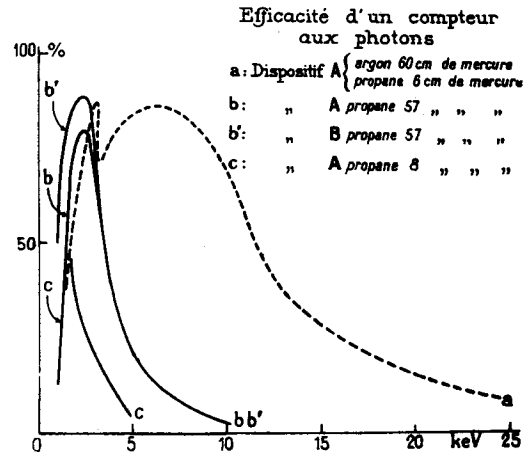


FIG. 2.

L'étalonnage en énergie des compteurs est obtenu à l'aide des rayonnements X ($K-L$) de l'aluminium = $1,5 \text{ keV}$, ($K-L$) de l'argon = $2,9 \text{ keV}$, ($K-L$) du manganèse = $5,9 \text{ keV}$, un mélange ($K-L$) et ($K-M$) du cuivre = $8,5 \text{ keV}$, ($L-M$) du bismuth = 13 keV , ($L-N$) du bismuth = 16 keV et la raie de 47 keV du RaD .

La figure 3 donne les résultats bruts en coïncidence après soustraction du mouvement propre et des coïncidences fortuites ; ils sont obtenus dans le sélecteur à 50 canaux avec le dispositif B et le remplissage b (propane : 57 cm de mercure) pour des gains de l'amplificateur de la voie 1 ayant les valeurs 2 500 et 5 000, et pour la voie 2 un gain de 580 et une discrimination ne laissant passer que

les impulsions correspondant à une énergie supérieure à 14 keV.

La figure 4 représente les résultats complets dans les mêmes conditions, les abscisses étant gradués

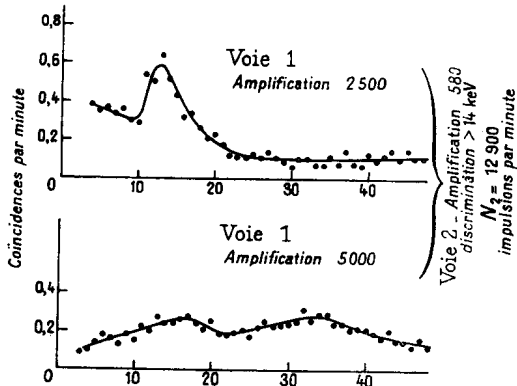


FIG. 3.

en keV et les ordonnées représentant le nombre d'impulsions comptées dans un intervalle de 1 keV. De plus, les courbes ont été ramenées à un taux de comptage de 10^4 dans le compteur 2 ($N_2 = 10\ 000$ par unité de temps, pour une énergie supérieure à 14 keV). Ce qui nous intéresse est de connaître le spectre des impulsions dues au rayonnement enregistré dans le compteur 1 et associé aux 10 000 rayons β du compteur 2 ; il faut donc soustraire de la courbe de la figure 4 les coïncidences dues aux rayons β enregistrés dans le compteur 1 et associés au rayonnement d'énergie supérieure à 14 keV du compteur 2. Ces coïncidences représentées en pointillé sur la figure 4 sont calculées moyennant certaines hypothèses : on suppose que le rayonnement émis simultanément au rayonnement β est indépendant de l'énergie de ce dernier, ce qui donne pour la courbe pointillée le même spectre à une multiplication près des ordonnées ($n/10^4 \cdot N_1$) que le spectre N_1 du rayonnement β enregistré dans le compteur 1 ; n est le nombre total d'impulsions d'énergie supérieure à 14 keV dans le compteur 2

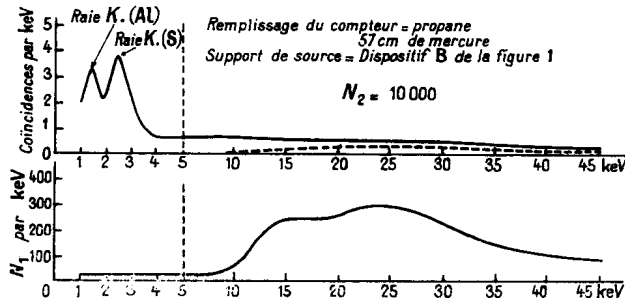


FIG. 4.

émis simultanément avec 10^4 rayons β enregistrés dans le compteur 1. Tenant compte des spectres intégrés de N_1 et des coïncidences pour des énergies supérieures à 14 keV, et connaissant les angles solides sous lesquels sont vus, de la source, chacun des compteurs, on en déduit pour n la valeur 9,2. On voit que la courbe pointillée ainsi obtenue et venant en déduction des coïncidences, représente une correction très faible pour des énergies inférieures à une dizaine de keV. Ce résultat est obtenu grâce aux grandes dimensions des compteurs rendant les valeurs de N_1 très petites pour des énergies inférieures à une dizaine de keV environ.

A côté des résultats représentés sur la figure 4, d'autres résultats semblables ont été obtenus avec chacun des remplissages a, b, et c du compteur ou avec chacun des dispositifs A et B (fig. 1). Les impulsions en coïncidence dues aux électrons étant indépendantes du remplissage, il est facile de les éliminer par différences entre les courbes obtenues

pour deux remplissages différents. Tenant compte des efficacités aux photons du compteur (fig. 2) nous avons obtenu le spectre des photons qui est représenté sur la figure 5. La courbe en trait plein représente le spectre des photons venant de la source, à l'exception de la bosse située autour de 9 keV qui est due à des photons d'énergie supérieure enregistrés dans le compteur par effet paroi (raie K du cuivre). Cette partie de la courbe a d'ailleurs été obtenue avec le dispositif A (fig. 1) où la plaque supportant la membrane porte-source est en béryllium. Avec le dispositif B où cette même plaque est en cuivre les résultats obtenus sont les mêmes, sauf autour de 9 keV où la bosse est considérablement augmentée, ce qui est dû à la diffusion des rayons β par les bords du trou et excitation de la couche K du cuivre. La comparaison de ces résultats avec plaque de cuivre et plaque de béryllium, ainsi que la prévision théorique permettent d'affirmer que la contribution due au frei-

nage externe du rayonnement β est absolument négligeable. La courbe pointillée de la figure 5 se confond avec la courbe en trait plein à l'exception de 2 raies, l'une à 1,5 keV et l'autre à 2,9 keV. La première a été obtenue lorsque la membrane en matière plastique supportant la source est recouverte par vaporisation sous vide d'une couche d'aluminium d'une dizaine de microgrammes par centimètre carré pour la rendre conductrice. L'excitation de la couche K de l'aluminium par le rayonnement β est alors responsable de cette raie (celle-ci est visible sur les figures 3 et 4). La deuxième raie est obtenue avec le remplissage du compteur par de l'argon et est due à l'excitation par le rayonnement β de la couche K de ce gaz. Dans ces bandes d'énergie, la courbe en trait plein provient de mesures faites avec une source sans aluminium et un remplissage de propane.

En résumé, à l'exception de cette légère bosse autour de 9 keV, la courbe en trait plein de la

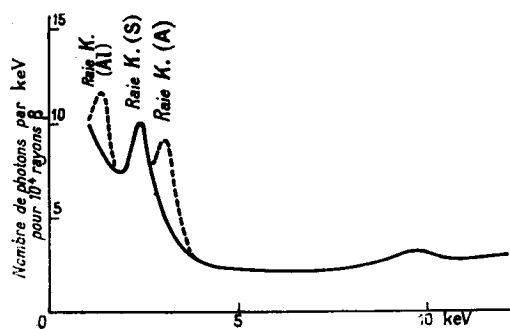


FIG. 5.

figure 5 fournit le spectre des photons émis simultanément dans un angle solide 4π avec 10 000 rayons β . Ce spectre se compose d'un fond continu d'intensité décroissante en fonction de l'énergie dû au rayonnement de freinage interne et d'une raie de 2,3 keV qui est la raie K de l'atome résiduel de soufre et qui est due au phénomène d'autoionisation. La séparation du fond continu et de la raie présente un certain arbitraire qui est considérablement réduit par l'obligation d'obtenir après séparation une raie symétrique ayant la largeur convenable imposée par le pouvoir de résolution connu du compteur. Le résultat, après séparation, est donné sur la figure 6 ; la surface de la raie correspond pour le phénomène d'autoionisation à l'émission de 5,5 photons K pour 10 000 rayons β . La figure 6 reproduit aussi en trait pointillé le résultat prévu pour le rayonnement de freinage interne par la théorie de Knipp et Uhlenbeck [3] dans notre dispositif expérimental. Cette courbe a

été calculée en tenant compte de l'intensité prévue par la théorie en fonction de l'énergie et aussi de la corrélation angulaire prévue par cette même théorie entre rayon β et photon de freinage. Cette corrélation angulaire présentant un maximum vers l'avant, il en résulte que, avec notre dispositif A

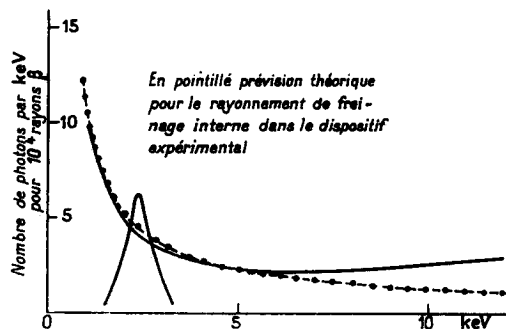


FIG. 6.

(fig. 1), le nombre de photons enregistrés en coïncidence ne représente que 41 % de l'intensité que l'on obtiendrait avec le rayonnement isotrope. Avec le dispositif B, cette proportion est de 37 %. (Ces valeurs ont été obtenues par intégration graphique.)

On voit sur la figure 6 qu'il existe un accord excellent entre la théorie de freinage interne et notre résultat expérimental entre 1 et 5 keV. De 5 à 12 keV la courbe expérimentale s'élève progressivement et rapidement au-dessus de la courbe déduite de la théorie. Ce fait est à rapprocher des résultats obtenus par certains auteurs [4]. H. Langevin-Joliot étudiant le spectre des photons de freinage interne du phosphore 32 jusqu'à 15 keV a trouvé pour cette énergie un excès de 50 % par rapport à ce que prévoit la théorie. Nos expériences indiquent à 12 keV l'existence d'un nombre de photons presque 3 fois supérieur à la prévision théorique. Si l'on veut chercher un accord entre nos résultats et ceux de H. Langevin-Joliot, il faudrait admettre que l'excès de photons constatés dans les deux cas ne suit pas la même loi de corrélation angulaire que celle prévue par la théorie de freinage interne, mais est émis d'une façon pratiquement isotrope par rapport à la direction d'émission de la particule β . Indiquons pour terminer que nos résultats ne sont pas en accord avec les expériences de G. A. Renard [5] sur l'autoionisation et le rayonnement de freinage interne entre 1 et 5 keV du phosphore 32. Sauf erreur systématique dans une des expériences, le désaccord pourrait provenir d'une loi de corrélation angulaire photon-rayon β différente de la prévision théorique.

II. **Spectre des électrons.** — L'étude du spectre des électrons émis simultanément avec le rayonnement β lors de la désintégration du phosphore ^{32}P a été effectuée avec le dispositif C comme porte-source (fig. 7) dans lequel aucun écran n'est inter-

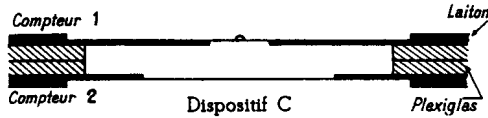


Fig. 7. — La membrane mince d'environ 40 microgrammes par cm^2 supportant la source est tendue sur une plaque de cuivre de 0,2 mm d'épaisseur percée d'un trou de 3 mm de diamètre.

posé entre la source et le gaz du compteur 1. Le dispositif C' est celui dans lequel un écran est placé directement contre la source du côté du compteur 1. Avec le dispositif C, nous enregistrons dans le compteur 1 des photons, des électrons et les coïncidences parasites précédemment mentionnées. Les résultats que nous donnons dans la suite de cet article ont été obtenus après soustraction des coïncidences dues aux photons ; ces coïncidences ont été calculées en partant du spectre représenté sur la figure 6 et de l'efficacité connue du compteur (fig. 2).

Il existe pour des énergies faibles un spectre rapidement décroissant de coïncidences parasites dues à la rétrodiffusion du rayonnement β . L'importance de ce spectre avec un remplissage du compteur en argon rend impossible l'étude des électrons par ce procédé. Nous avons utilisé les remplissages b (propane : 57 cm de mercure) et c (propane : 8 cm de mercure). Avec le remplissage b ce spectre parasite est nul pour des énergies supérieures à 2 keV ; avec le remplissage c, il disparaît complètement pour des énergies supérieures à 1 keV, qui représente la limite inférieure de nos résultats. L'emploi du dispositif C' supprime également ce spectre parasite, avec le remplissage b, montrant ainsi qu'il est dû à la rétrodiffusion du rayonnement β sur les bords de la rondelle supportant la membrane sur laquelle est déposée la source, et non pas à une rétrodiffusion sur les molécules du gaz.

Le spectre d'électrons que reproduit la figure 9 se rapporte à 10 000 rayons β . Les coïncidences, d'ailleurs en petit nombre, dues aux rayons β enregistrés dans le compteur 1 ont été soustraites après calcul par une méthode analogue à celle décrite précédemment. Comme nous l'avons dit, les coïncidences dues aux photons, d'un ordre de grandeur inférieur à celles dues aux électrons, ont été également soustraites. Les coïncidences parasites dues à la rétrodiffusion n'apparaissent pas car le spectre a été obtenu avec le remplissage b pour une énergie supérieure à 2 keV et avec le remplissage c pour une

énergie supérieure à 1 keV. (Au-dessus de 2 keV, les deux résultats sont identiques, aux erreurs d'expérience près.) La figure 9 donne le spectre des électrons dans le dispositif C' après traversés d'un écran de 0,04 mg/cm^2 ou de 0,2 mg/cm^2 montrant que l'absorption est conforme à ce que l'on peut attendre.

S'il existe des coïncidences parasites dues à la projection d'électrons par le rayonnement β , ce phénomène ne peut se produire que dans la matière environnant la source (fig. 7). Cette matière est constituée par environ 2 à 3 millimètres d'épaisseur de gaz, par la membrane support de source et par la membrane faisant écran à la partie inférieure du dispositif C au contact du gaz du compteur 2. Ces deux membranes sont en matière plastique aluminisée d'une épaisseur totale de 0,04 mg/cm^2 . Un calcul basé sur la probabilité de projection d'un électron et sur l'absorption de cet électron projeté nous a donné une valeur négligeable devant l'intensité du spectre de la figure 8. Ce point de vue est

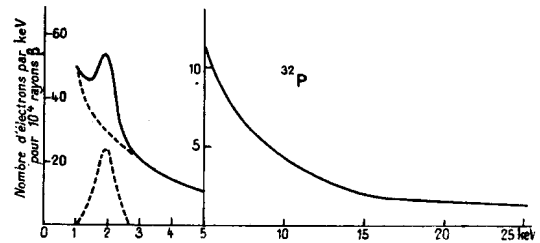


FIG. 8.

confirmé expérimentalement par l'étude analogue faite sur le soufre ^{35}S , que nous développons dans un autre article de ce même journal.

Sur la figure 8, nous avons reproduit en pointillé une décomposition du spectre des électrons donnant d'une part une raie de 2,0 keV et d'autre part, un fond continu décroissant avec l'énergie. Cette raie

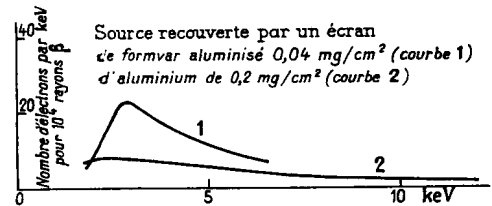


FIG. 9.

est due aux électrons Auger consécutifs au réarrangement du cortège électronique de l'atome de soufre. Lorsqu'il y a autoionisation de l'atome, l'électron Auger est émis simultanément avec l'élec-

tron éjecté de la couche K , et cet électron Auger apparaît dans la raie de 2,0 keV seulement dans le cas où la direction d'émission de l'électron éjecté ne permet pas qu'il soit enregistré dans le même compteur. Par contre lorsqu'il y a autoexcitation de l'atome et que l'électron éjecté de la couche K est lié, l'électron Auger est toujours compté dans un cas sur deux, le compteur 1 étant vu de la source sous un angle solide 2π . La proportion inconnue des phénomènes d'autoionisation et d'autoexcitation ne permet pas de déduire de la surface de la raie d'électrons de 2,0 keV le nombre d'électrons Auger effectivement émis par la source. Il est important de remarquer que les électrons enregistrés dans notre expérience sont non seulement ceux émis dans un angle solide 2π , mais également ceux rétrodiffusés par la membrane supportant la source. Cette rétrodiffusion s'accompagne d'une dégradation de l'énergie ; il est pratiquement impossible de séparer la partie relativement faible du spectre qui correspond aux électrons rétrodiffusés ; indiquons seulement que la fraction d'électrons rétrodiffusés dans ce domaine d'énergie par une épaisseur saturante d'aluminium est de 15 % [7].

En résumé, nous trouvons des électrons monochromatiques de 2,0 keV et des électrons d'énergie variable dont le spectre est représenté approximativement par une loi en fonction inverse de l'énergie avec une intensité égale à $156 \cdot 10^{-4}$ entre 1 et 25 keV.

La théorie de l'autoionisation [8] prévoit pour le phosphore ^{32}P l'émission d'un spectre continu d'électrons que nous avons représenté en pointillé

sur la figure 10, notre spectre expérimental, qui est le même que celui de la figure 8, y étant représenté en trait plein. On constate vers 1 et 2 keV environ

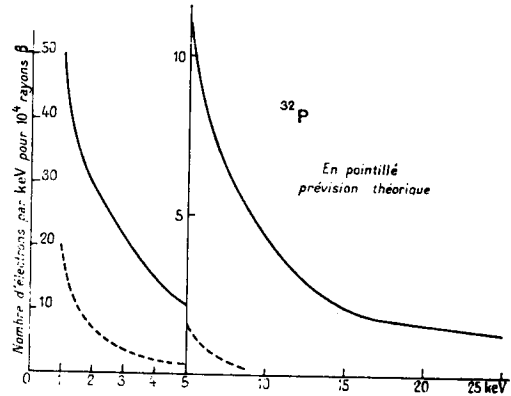


FIG. 10.

3 fois plus d'électrons que n'en prévoit la théorie ; à partir de 4 à 5 keV, le désaccord devient plus considérable, puisque l'intensité du spectre théorique pour des énergies supérieures à 5 keV est de $2 \cdot 10^{-4}$ et que notre valeur expérimentale est de $66 \cdot 10^{-4}$ entre 5 et 25 keV. Ce fait confirme et précise des expériences plus anciennes effectuées à l'aide de 2 compteurs Geiger-Muller fonctionnant en coïncidence [9].

Manuscrit reçu le 29 octobre 1958.

BIBLIOGRAPHIE

- [1] CHARPAK (G.) et SUZOR (F.), *J. Physique Rad.*, 1958, **19**, 167 A.
- [2] CHARPAK (G.), *Thèse*, Paris, 1955.
- [3] β and γ ray spectroscopy, Siegbahn, Amsterdam, 1955, 649.
- [4] LIDEN (K.) et STARFELT (N.), *Phys. Rev.*, 1955, **97**, 419. LANGEVIN-JOLIOU (H.), *Thèse*, Paris, 1956 : *Ann. Physique*, 1957, **2**, 16.
- [5] RENARD (G. A.), *J. Physique Rad.*, 1957, **18**, 681.
- [6] MERINIS (J.), *J. Physique Rad.*, 1956, **17**, 308.
- [7] STERNGLASS (E. J.), *Research Report*, 1953, R. 94416-3-J Westinghouse.
- [8] MIGDAL (A.), *J. Physique*, U. R. S. S., 1941, **4**, 449. FEINBERG (E. L.), *J. Physique*, U. R. S. S., 1941, **4**, 424. LEVINGER (J. S.), *Phys. Rev.*, 1953, **90**, 11. GRARD (F.), *Thèse*, Université libre de Bruxelles, 1958.
- [9] SUZOR (F.) et CHARPAK (G.), *J. Physique Rad.*, 1954, **15**, 378. DUQUESNE (M.), *C. R. Acad. Sc.*, 1955, **241**, 195 et *Thèse*, Paris.