

# Réactions (n,) et (n,p) du fer avec les neutrons lents

Autor(en): **Hänni, H. / Rossel, J.**

Objektyp: **Article**

Zeitschrift: **Helvetica Physica Acta**

Band (Jahr): **25 (1952)**

Heft V

PDF erstellt am: **21.07.2024**

Persistenter Link: <https://doi.org/10.5169/seals-112321>

## **Nutzungsbedingungen**

Die ETH-Bibliothek ist Anbieterin der digitalisierten Zeitschriften. Sie besitzt keine Urheberrechte an den Inhalten der Zeitschriften. Die Rechte liegen in der Regel bei den Herausgebern.

Die auf der Plattform e-periodica veröffentlichten Dokumente stehen für nicht-kommerzielle Zwecke in Lehre und Forschung sowie für die private Nutzung frei zur Verfügung. Einzelne Dateien oder Ausdrucke aus diesem Angebot können zusammen mit diesen Nutzungsbedingungen und den korrekten Herkunftsbezeichnungen weitergegeben werden.

Das Veröffentlichen von Bildern in Print- und Online-Publikationen ist nur mit vorheriger Genehmigung der Rechteinhaber erlaubt. Die systematische Speicherung von Teilen des elektronischen Angebots auf anderen Servern bedarf ebenfalls des schriftlichen Einverständnisses der Rechteinhaber.

## **Haftungsausschluss**

Alle Angaben erfolgen ohne Gewähr für Vollständigkeit oder Richtigkeit. Es wird keine Haftung übernommen für Schäden durch die Verwendung von Informationen aus diesem Online-Angebot oder durch das Fehlen von Informationen. Dies gilt auch für Inhalte Dritter, die über dieses Angebot zugänglich sind.

# Réactions (n, $\alpha$ ) et (n, p) du fer avec les neutrons lents

par H. Hänni et J. Rossel, Neuchâtel.

(24. III. 1952.)

*Summary.* The nuclear emulsion technique has been applied to the investigation of reactions with slow neutrons in Fe, one of several elements of middle mass which seem to have positive  $Q$ -values for (n,  $\alpha$ )- and (n, p)-processes. The irradiated plates, loaded with Fe-saccharosate or citrate, or in contact with layers of pure iron and imbedded in a paraffin block, show a (n,  $\alpha$ ) and presumably also a (n, p)-effect.  $\alpha$  and proton tracks have been discriminated by grain counting. The range distribution of  $\alpha$ -tracks exhibits two groups at  $(16 \pm 2,5) \mu$  and  $(24 \pm 2,0) \mu$  with the corresponding  $Q$ -values  $Q_1 = (4,5 \pm 0,5) \text{ MeV}$  and  $Q_2 = (5,7 \pm 0,3) \text{ MeV}$ . The slow neutron flux, measured with plates loaded with Li and B, could be determined with an accuracy of a few points percent. The cross-section for the total (n,  $\alpha$ )-effect has been found to be  $(5,4 \pm 0,8) \cdot 10^{-27} \text{ cm}^2$ , that is  $\sim 100$  times greater than the semi-theoretical expectation. The comparison of the measured efficiencies with the predicted relative probabilities and isotopic abundances, suggests Fe<sup>56</sup> for the first and Fe<sup>57</sup> for the second  $\alpha$ -group. These results seem then only compatible with mass values of Ogata<sup>6</sup>).

## I. Introduction.

*Possibilité de réactions (n,  $\alpha$ ) et (n, p) pour les noyaux de masse moyenne.*

Théoriquement une réaction (n,  $\alpha$ ) ou (n, p) est possible avec les neutrons thermiques si le bilan des masses  $Q$  est positif.

$$Q = (A_1 + n) - (A_2 + a) > 0.$$

où  $A_{1,2}$  = masse du noyau initial (1) et final (2).  
 $n$  = masse du neutron.  
 $a$  = masse de la particule chargée émise,  $\alpha$  ou p.

Pour les noyaux de numéro atomique  $Z$  compris approximativement entre 20 et 30, les données de masses indiquent un certain nombre de bilans positifs. On peut donc s'attendre à observer des processus (n,  $\alpha$ ) et (n, p) par l'irradiation des neutrons thermiques. Cependant il faut noter que la barrière de potentiel, augmentant proportionnellement à  $Z$ , atteint des valeurs voisines de 10 MeV et par conséquent les sections efficaces doivent être très faibles.

\*

Jusqu'ici aucune réaction de ce genre n'a été mise directement en évidence pour ces noyaux.

Les sept réactions (n,  $\alpha$ ) et (n, p) par neutrons lents trouvées jusqu'ici sont données dans le tableau 1.

Tableau 1.

Noyau initial	abond. %	noyau final	proc.	valeur $Q$ expérim. (1,4) MeV	calculée (2,3) MeV	section eff. expér. $\sigma \cdot 10^{24}$ p. isotope (1,5)
${}^2_2\text{He}^3$	$1,3 \cdot 10^{-4}$	${}^1_1\text{H}^{3*}$	(n, p)	$0,736 \pm 0,025$	0,73	$5040 \pm 200$
${}^3_3\text{Li}^6$	7,43	${}^1_1\text{H}^{3*}$	(n, $\alpha$ )	$4,77 \pm 0,15$	4,63	$920 \pm 50^+$
${}^5_5\text{B}^{10}$	18,83	${}^3_3\text{Li}^7$	(n, $\alpha$ )	$2,83 \pm 0,15$	2,78	$3840 \pm 55^+$
${}^5_5\text{B}^{10}$	18,83	${}^4_4\text{Be}^{10*}$	(n, p)	—	0,19	$< 0,2$
${}^7_7\text{N}^{14}$	99,62	${}^6_6\text{C}^{14*}$	(n, p)	$0,62 \pm 0,05$	0,60	$1,76 \pm 0,05$
${}^8_8\text{O}^{17}$	$3,92 \cdot 10^{-2}$	${}^6_6\text{C}^{14*}$	(n, $\alpha$ )	1,4	1,73	0,38
${}^{17}_{17}\text{Cl}^{35}$	75,4	${}^{16}_{16}\text{S}^{35}$	(n, p)	$0,52 \pm 0,04$	0,63	0,30

<sup>+</sup>)  $E_n = 0,025$  eV, les autres  $\sigma$  sans indication de l'énergie thermique.

<sup>\*</sup>) Noyaux magiques.

Les seules indications concernant les éléments de  $Z > 17$  sont très incomplètes et ne concernent que le  $\text{Fe}^{58}$  et le  $\text{Zn}^{64}$ .

$$\text{Fe}^{58}(\text{n}, \alpha) \text{Cr}^{55}: \sigma \leq 1,5 \cdot 10^{-27} \text{ cm}^2 \text{ par isotope}^5)$$

$$\text{Zn}^{64}(\text{n}, \text{p}) \text{Cu}^{64}: \sigma < 1,0 \cdot 10^{-29} \text{ cm}^2 \text{ (par isotope)}^5)$$

Le tableau 1 montre nettement que les valeurs de  $Q$  trouvées expérimentalement sont pour la plupart en bon accord avec celles calculables à partir des masses. Pour les noyaux du groupe qui nous intéresse, les masses ne sont pas encore connues de façon suffisamment certaine pour permettre une sûre estimation de l'énergie de réaction. Les valeurs calculées présentent des fluctuations très considérables.

A partir des données actuelles les plus récentes proposées par BETHE<sup>2)</sup> (table de Cornell University), ROSENFELD<sup>3)</sup>, OGATA<sup>6)</sup>, DUCKWORTH et coll.<sup>7)</sup> on peut dresser un tableau des effets (n,  $\alpha$ ) et (n, p) comportant un  $Q$  positif et possibles en principe par les neutrons lents. Pour les faibles valeurs de  $Q$  la possibilité théorique du processus n'implique pas nécessairement la mise en évidence expérimentale, par suite des sections efficaces prohibitivement faibles. On essayera de donner des indications sur les possibilités expérimentales de détection en faisant une estimation semi-théorique des sections efficaces.

Le tableau 2 contient la liste des éléments intéressants de notre point de vue.

Tableau 2.

Noyau initial	abond. %	Noyau final	Réaction	Valeur $Q$ MeV
$^{14}\text{Si}^{29}$	4,67	$^{12}\text{Mg}^{26*}$	(n, $\alpha$ )	1,70
$^{16}\text{S}^{32}$	95,06	$^{14}\text{Si}^{29*}$	(n, $\alpha$ )	1,18 (expér. $1,16 \pm 0,15$ ) <sup>+</sup>
$^{16}\text{S}^{33}$	0,74	$^{14}\text{Si}^{30*}$	(n, $\alpha$ )	1,70
$^{17}\text{Cl}^{35}$	75,4	$^{15}\text{P}^{32}$	(n, $\alpha$ )	0,93 (expér. $0,44 \pm 0,20$ ) <sup>+</sup>
$^{18}\text{A}^{36}$	0,35	$^{16}\text{S}^{33}$	(n, $\alpha$ )	2,82
$^{19}\text{K}^{39}$	93,38	$^{17}\text{Cl}^{36}$	(n, $\alpha$ )	0,87
$^{19}\text{K}^{40}$	0,011	$^{17}\text{Cl}^{37*}$	(n, $\alpha$ )	3,29
$^{19}\text{K}^{40}$	0,011	$^{18}\text{A}^{40}$	(n, p)	1,13
$^{20}\text{Ca}^{40}$	96,96	$^{18}\text{A}^{37}$	(n, $\alpha$ )	2,44
$^{20}\text{Ca}^{43}$	0,129	$^{18}\text{A}^{40}$	(n, $\alpha$ )	1,61
$^{22}\text{Ti}^{48}$	73,45	$^{20}\text{Ca}^{45*}$	(n, $\alpha$ )	0,96
$^{24}\text{Cr}^{50}$	4,31	$^{22}\text{Ti}^{47}$	(n, $\alpha$ )	3,71
$^{26}\text{Fe}^{54}$	5,81	$^{24}\text{Cr}^{51}$	(n, $\alpha$ )	$\left\{ \begin{array}{l} 3,75 \quad {}^2)_3) \\ 0,86 \pm 0,70^7) \\ 2,05 \pm 0,90^6) \end{array} \right.$
$^{26}\text{Fe}^{56}$	91,64	$^{24}\text{Cr}^{53}$	(n, $\alpha$ )	$\left\{ \begin{array}{l} 5,42 \quad {}^2)_3) \\ -0,04 \pm 0,37^7) \\ 2,95 \pm 0,66^6) \end{array} \right.$
$^{26}\text{Fe}^{57}$	2,21	$^{24}\text{Cr}^{54}$	(n, $\alpha$ )	$\left\{ \begin{array}{l} 2,63 \pm 0,43^7) \\ 5,23 \pm 0,93^6) \end{array} \right.$
$^{26}\text{Fe}^{54}$	5,81	$^{25}\text{Mn}^{54}$	(n, p)	$\left\{ \begin{array}{l} -0,12 \pm 0,49^7) \\ 1,05 \pm 0,74^6)_7) \\ 3,17 \pm 0,84^6) \text{ **) } \\ 0,58 \pm 0,30^6)_7) \text{ **) } \end{array} \right.$
$^{26}\text{Fe}^{56}$	91,64	$^{25}\text{Mn}^{56}$	(n, p)	$\left\{ \begin{array}{l} -2,93 \pm 0,37^7) \\ -2,30 \pm 0,55^6)_7) \\ -2,92 \quad \text{**) } \end{array} \right.$

\*) Noyaux magiques.

+ ) Valeurs expérimentales trouvées par neutrons rapides.

\*\*) Valeurs calculées à partir de  $\text{Cr}^{54}$  (réf. 6 et 7) et des données sur la capture  $K$  de  $\text{Mn}^{54}$  resp. spectre  $\beta^-$  de  $\text{Mn}^{56}$  (réf. 5).

A partir des données de DUCKWORTH et coll.<sup>7)</sup>, de MATTAUCH-FLAMMERSFELD (table des doublets spectrographiques)<sup>1)</sup> il semble que des processus (n,  $\alpha$ ) soient également possibles pour le Ni et Zn; ceci ressort en particulier de la courbe des « packing fractions » publiée<sup>8)</sup> et qui présente des discontinuités caractéristiques pour

certaines isotopes à nombre de nucléons doublement magique. Les effets (n,  $\alpha$ ) suivants seraient possibles :

Réaction	Valeur $Q$ MeV <sup>7)</sup>	MeV <sup>1)</sup>
Ni <sup>58</sup> (n, $\alpha$ ) Fe <sup>55</sup> . . . .	2,7	—
Ni <sup>60</sup> (n, $\alpha$ ) Fe <sup>57</sup> . . . .	0,3	-0,1
Ni <sup>61</sup> (n, $\alpha$ ) Fe <sup>58</sup> . . . .	2,3	7,5
Zn <sup>64</sup> (n, $\alpha$ ) Ni <sup>61*</sup> . . . .	9,2	4,5
Zn <sup>66</sup> (n, $\alpha$ ) Ni <sup>63*</sup> . . . .	3,2	—
Zn <sup>67</sup> (n, $\alpha$ ) Ni <sup>64*</sup> . . . .	4,2	5,6
Zn <sup>68</sup> (n, $\alpha$ ) Ni <sup>65*</sup> . . . .	4,9	—
Zn <sup>70</sup> (n, $\alpha$ ) Ni <sup>67*</sup> . . . .	1,9	—

\*) Noyaux magiques, valeurs de masses de Zn de OGATA<sup>6)</sup>.

L'ensemble du tableau 2 montre clairement le manque d'homogénéité et les contradictions qui existent encore entre les valeurs de masses des différents auteurs, incohérences que seul un contrôle expérimental peut éliminer.

En dépit des discrédances il semble que le fer présente de bonnes possibilités de réactions (n,  $\alpha$ ) et éventuellement (n, p). C'est pourquoi nous avons entrepris une étude de cet élément en premier lieu, nous proposant d'étendre nos recherches ultérieurement à Ca, Cr, Ni et Zn.

On peut s'attendre à des réactions (n,  $\alpha$ ) décelables pour les trois isotopes Fe<sup>54</sup>, Fe<sup>56</sup>, Fe<sup>57</sup> et éventuellement à une réaction (n, p) pour Fe<sup>54</sup>. Les barrières de potentiel

$$B = \frac{z \cdot Z \cdot e^2}{r_0 \cdot A^{1/3}}$$

sont très considérables. En choisissant pour  $r_0$  la valeur  $1,48 \cdot 10^{-13}$  cm, on obtient les hauteurs suivantes :

$$\begin{aligned} \text{Fe}^{54}(\text{n}, \alpha) \text{Cr}^{51}: & B_{\alpha} = 12,5 \text{ MeV} \\ \text{Fe}^{56}(\text{n}, \alpha) \text{Cr}^{53}: & B_{\alpha} = 12,4 \text{ MeV} \\ \text{Fe}^{57}(\text{n}, \alpha) \text{Cr}^{54}: & B_{\alpha} = 12,3 \text{ MeV} \\ \text{Fe}^{54}(\text{n}, \text{p}) \text{Mn}^{54}: & B_p = 6,4 \text{ MeV} \end{aligned}$$

Avec de telles valeurs, on doit s'attendre a priori à des sections efficaces  $\sigma$  faibles.

Dans le tableau 3 suivant nous donnons une vue d'ensemble des valeurs de masses indiquées par les différents auteurs et qui nous ont servi au calcul des différentes énergies de réactions  $Q$  pour le Fe. On voit à partir de ce tableau que les valeurs de masses de

OGATA<sup>6</sup>) et de DUCKWORTH<sup>7</sup>) à l'exception de Fe<sup>58</sup> sont nettement différentes et ne se recouvrent pas à l'intérieur des limites d'erreurs.

Tableau 3.

Noyau initial	abond. %	Auteur <sup>2</sup> )	Auteur <sup>3</sup> )	Auteur <sup>6</sup> )	Auteur <sup>7</sup> )
Fe <sup>58</sup>	0,34	—	—	57,95091 $\pm$ 49 $\cdot$ 10 <sup>-5</sup>	57,95071 $\pm$ 36 $\cdot$ 10 <sup>-5</sup>
Fe <sup>57</sup>	2,21	56,957	56,9570	56,95485 $\pm$ 52	56,95353 $\pm$ 17
Fe <sup>56</sup>	91,64	55,9568	55,9571	55,95340 $\pm$ 27	55,95274 $\pm$ 17
Fe <sup>54</sup>	5,81	53,957	53,9600	53,95774 $\pm$ 48	53,95645 $\pm$ 22
Cr <sup>55</sup>	—	—	—	—	—
Cr <sup>54</sup>	2,38	—	53,9603	53,95427 $\pm$ 48	53,95576 $\pm$ 26
Cr <sup>53</sup>	9,55	52,956	52,9560	52,95527 $\pm$ 44	52,95784 $\pm$ 20
Cr <sup>51</sup>	—	50,958	50,9580	—	50,96058 $\pm$ 50
Mn <sup>58</sup>	—	—	—	—	—
Mn <sup>57</sup>	—	—	—	—	—
Mn <sup>56</sup>	—	—	55,9612	—	55,95669 $\pm$ 22
Mn <sup>54</sup>	—	—	—	—	53,95742 $\pm$ 31

En particulier les déviations systématiques des masses de Cr ont pour résultat que les valeurs de  $Q$  pour les processus (n,  $\alpha$ ) d'après DUCKWORTH sont faiblement positives ou même négatives.

L'étude des réactions (n,  $\alpha$ ) et (n, p) avec les éléments dont les masses sont encore mal connues pourra également permettre d'établir s'il existe un rapport certain entre les masses et les nombres magiques de nucléons admis actuellement comme étant

$$Z = 2, 6, 8, 14, 20, 28, 40, 50, 70, 82 \text{ et}$$

$$N = 2, 6?, 8, 14, 20, 28, 32 \text{ ou } 34, 40, 50, 70, 82, 112, 126.$$

On peut penser en effet que les valeurs positives de  $Q$  correspondent aux transitions entre noyaux voisins des nombres magiques.

## II. Estimation des sections efficaces.

On peut estimer les sections efficaces des processus (n,  $\alpha$ ) et (n, p) de façon semi-théorique en remarquant que  $\sigma_{n,\alpha}$  ou  $\sigma_{n,p}$  est en relation avec la section de capture  $\sigma_{n,\gamma}$ .

$$\sigma_{n;\alpha,p} \approx \sigma_{n,\gamma} \cdot \frac{\Gamma_{\alpha,p}}{\Gamma_{\gamma}} = \sigma_{n,\gamma} \cdot \frac{G_{\alpha,p}}{\Gamma_{\gamma}} \cdot P_{\alpha,p}$$

$G_{\alpha,p}$  = largeur de niveau pour l'émission d'une particule  $\alpha$  resp. d'un proton dans le cas d'une barrière de potentiel nulle.

$P_{\alpha,p}$  = pénétrabilité de la barrière de potentiel pour un  $\alpha$  resp. un proton et se calcule par exemple d'après BETHE<sup>9</sup>). Nous admettons dans l'expression du rayon nucléaire  $R = r_0 \cdot A^{1/3}$  pour  $r_0$  la valeur  $1,48 \cdot 10^{-13}$  cm.

$G_{\alpha, p}/\Gamma_{\gamma}$  est probablement de l'ordre de  $\Gamma_n/\Gamma_{\gamma}$ , soit sensiblement égal à 1. Cependant d'après B. L. COHEN<sup>10)</sup> il semble préférable d'admettre  $\Gamma_n/G_{\alpha} \approx 0,1$ . Nous choisirons pour ces raisons  $G_{\alpha, p}/\Gamma_{\gamma} \sim 10$ .

Les valeurs calculées par cette méthode n'auront qu'un caractère approximatif. Elles ne devraient pourtant pas être en erreur de plus d'un facteur 10\*).

Si on applique ce procédé par exemple au processus  $\text{Cl}^{35}(n, p)\text{S}^{35}$ , dont le  $Q$  a été déterminé comme étant  $Q = 0,52$  MeV et la section efficace  $\sigma_{n, p} \approx 0,30 \cdot 10^{-24}$  cm<sup>2</sup>, on trouve  $P_p = 3,1 \cdot 10^{-6}$ . En prenant pour section efficace de capture du noyau  $\text{Cl}^{35}$   $\sigma_{n, \gamma} = 43 \cdot 10^{-24}$  cm<sup>2</sup> la valeur calculée est  $\sigma_{n, p} = 1,34 \cdot 10^{-27}$  cm<sup>2</sup>, soit d'un facteur 225 plus faible que la valeur expérimentale.

Il est possible qu'il s'agisse d'un effet particulier au Cl. Cependant on peut s'attendre à obtenir par estimation semi-théorique des valeurs plutôt trop faibles.

Pour juger des possibilités expérimentales de détection des effets  $(n, \alpha)$  de Fe et obtenir une indication des probabilités respectives des quatre isotopes  $\text{Fe}^{54}$ ,  $\text{Fe}^{56}$ ,  $\text{Fe}^{57}$  et  $\text{Fe}^{58}$ , nous appliquons la même méthode.

a)  $(n, \alpha)$ .

Nous choisissons pour énergie des  $\alpha$  une moyenne des valeurs que nous obtenons expérimentalement soit 4,5 MeV. (Voir partie V). Pour les sections efficaces  $\sigma_{n, \gamma}$  nous prenons respectivement

Isotope	$\sigma_{n, \gamma}$
$\text{Fe}^{54}$	2,1 barns <sup>11)</sup>
$\text{Fe}^{56}$	3,1 barns
$\text{Fe}^{57}$	0,5 barns
$\text{Fe}^{58}$	0,36 barns

Les valeurs obtenues ainsi pour  $\sigma_{n, \alpha}$  sont dans l'ordre

$$7,3; 7,1; 2,4; 2,0 \cdot 10^{-29} \text{ cm}^2.$$

Dans ces conditions et en tenant compte de l'abondance relative des isotopes, les fréquences  $\alpha$  relatives sont dans le rapport

$$62:967:8:1.$$

On peut voir que dans ce calcul on a tendance à favoriser  $\text{Fe}^{54}$  par rapport à  $\text{Fe}^{56}$  et  $\text{Fe}^{57}$  si l'on examine les valeurs de  $Q$  déduites des masses (tableau 2). (D'après DUCKWORTH et OGATA c'est plutôt  $\text{Fe}^{57}$  qui devrait être favorisé par rapport à  $\text{Fe}^{54}$  et  $\text{Fe}^{56}$ ).

\*) Remarquons que le choix de la valeur plus faible  $r_0 = 1,3 \cdot 10^{-13}$  cm conduirait, dans le cas de  $\text{Fe}^{56}$ , à une augmentation de  $P_{\alpha}$  de 30% seulement.

## b) (n, p).

Nous nous bornons à l'isotope  $\text{Fe}^{54}$  et prenons une valeur moyenne pour l'énergie éventuelle du proton de 2 MeV (voir partie V).

On obtient ainsi la section efficace  $\sigma_{n,p} \simeq 7 \cdot 10^{-26} \text{ cm}^2$ .

**III. Méthode de mise en évidence des processus (n,  $\alpha$ ) et (n, p).**

En principe les méthodes usuelles basées sur la ionisation des particules chargées émises sont applicables aux réactions (n,  $\alpha$ ) et (n, p) du fer, à savoir chambre de Wilson, chambre de ionisation et compteur proportionnel. Cependant les sources de neutrons relativement peu intenses dont nous disposons et les sections efficaces très faibles rendent dans notre cas prohibitives ces méthodes de détection à faible rendement. De plus, chambre de ionisation et compteur proportionnel permettent difficilement de séparer les particules  $\alpha$  et les protons, ce qui est une nécessité dans notre cas pour les processus compétitifs (n,  $\alpha$ ) et (n, p) intervenant probablement pour le fer.

La seule méthode susceptible de fournir des résultats satisfaisants est l'emploi de l'émulsion photographique dont les propriétés intégrantes sont particulièrement intéressantes. Ce sera l'occasion d'éprouver la méthode pour l'étude des réactions de sections efficaces aussi faibles que  $10^{-28} \text{ cm}^2$ , ce qui à notre connaissance n'a pas encore été fait jusqu'ici, surtout pour des réactions conduisant à des noyaux stables. (Voir la note préliminaire déjà publiée<sup>12</sup>).

*Méthode photographique.*

Pour l'étude des réactions (n,  $\alpha$ ) et (n, p) du fer, nous avons utilisé les deux procédés possibles :

a) élément sensible aux neutrons situé à l'extérieur de l'émulsion et en contact avec elle ;

b) élément sensible introduit sous forme de solution imprégnant l'émulsion.

a) Une couche mince de fer pur est déposée par vaporisation sur une lame de mica. Ce support a été choisi du fait qu'il ne contient pas de substances susceptibles de réagir avec les neutrons lents. La couche de fer est appliquée intimement contre la surface de l'émulsion qui enregistre les particules  $\alpha$  émergeant du fer. Cette méthode présente le désavantage de la self-absorption des particules  $\alpha$  ou protons dans la couche. Comme l'épaisseur du fer ne doit pas tomber au-dessous d'une dizaine de  $\mu$  pour que le rende-



ment reste suffisant, cet effet perturbe la distribution des parcours de telle sorte qu'une mesure acceptable de l'énergie est rendue impossible. Nous l'avons par conséquent utilisée uniquement pour la détection du processus et pour la mesure de la section efficace.

Si l'on veut enregistrer les traces  $\alpha$  sans perte sur le nombre, l'épaisseur  $d$  de la couche doit être beaucoup plus petite que le parcours des  $\alpha$  dans le fer.

Sur la base des résultats obtenus dans l'émulsion imprégnée desquels nous déduisons pour l'énergie des  $\alpha$  une valeur moyenne de 4,5 MeV et pour les protons de 2 MeV approximativement, nous pouvons déterminer les parcours dans le fer:

$$R_{\text{Fe}} = R_0 \cdot n_0/s(E) \cdot n_{\text{Fe}}$$

où  $R_0$  = parcours dans l'air.

$s$  = pouvoir d'arrêt atomique du Fe relatif à l'air et  $n_0/n_{\text{Fe}}$  = rapport du nombre d'atomes par  $\text{cm}^3$  dans l'air et dans le fer.

En interpolant les valeurs des pouvoirs d'arrêt données par BETHE<sup>13)</sup> on obtient pour le fer et les particules  $\alpha$  d'énergie voisine de 5 MeV,  $s = 2,3$  et pour les protons d'énergie voisine de 2 MeV,  $s = 2,45$ . On trouve ainsi pour les  $\alpha$  de 4,5 MeV,  $R_{\text{Fe}} = 7,8 \mu$  et pour les protons de 2 MeV,  $R_{\text{Fe}} = 17,5 \mu$ .

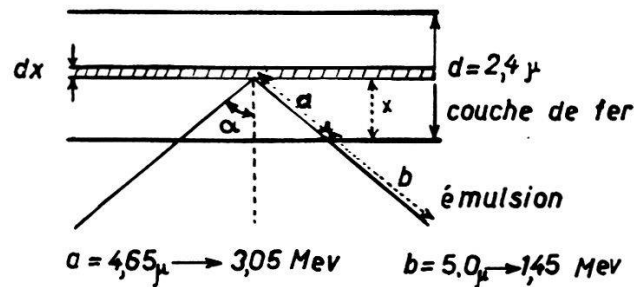


Fig. 1.

$$dN = \frac{N_0 \cdot dx \cdot \Omega(x)}{2\pi} = (1 - x/L) dx N_0 \quad N = N_0 \int_0^d (1 - x/L) dx = N_0 d(1 - d/2L)$$

$$\text{Perte relative} = \frac{N_0 d - N}{N_0 d} = d/2L = d/2(a+b)$$

$$\text{Valeur numérique: perte relative} = 2,4/9,3 \sim 25 \%$$

L'épaisseur de la couche vaporisée a été déterminée par pesée et trouvée égale à  $(2,43 \pm 0,25) \mu$  ce qui correspond à  $(2,05 \pm 0,20) \cdot 10^{19}$  atomes  $\text{Fe}/\text{cm}^2$ . Pour distinguer une trace dans l'émulsion, nous avons trouvé qu'une longueur de trajectoire de  $5 \mu$  au minimum est nécessaire pour une discrimination satisfaisante des pro-

tons. (Comme seules les traces pénétrant dans l'émulsion sont comptées, les protons du processus  $N(n, p)C$  peuvent facilement s'éliminer). Dans ces conditions la fraction des particules  $\alpha$  perdue pour l'observation dans le demi-espace de l'émulsion est de  $(25 \pm 5) \%$ .

Cette correction semble élevée, mais représente un compromis nécessaire avec le rendement qui pour l'épaisseur de  $2,4 \mu$  est comparable avec celui fourni par l'émulsion imprégnée. Les résultats obtenus par cette méthode seront forcément moins précis que ceux obtenus par la méthode d'imprégnation.

Dans le cas des protons de 2 MeV la fraction perdue ne serait que de 11%. Cependant cette méthode n'a pas fourni de résultats satisfaisants par suite des très grandes fluctuations statistiques du nombre de protons mesurés, dues à la présence du fond de protons de recul.

b) La méthode d'imprégnation de l'émulsion par une solution de fer permet à la fois la mesure du nombre des traces et la distribution des parcours, c'est-à-dire la distribution d'énergie, une fois connue la relation énergie-parcours de l'émulsion employée. Après quelques essais avec différents sels de fer en solution aqueuse de concentration en fer de l'ordre de 3% (ferricyanure de potassium, chlorure de fer, acétate de fer) sans résultats satisfaisants par suite de l'altération importante de l'émulsion, nous avons retenu deux substances: 1<sup>o</sup> le *saccharosate de fer*, facilement soluble et dont l'action sur l'émulsion s'est avérée légèrement sensibilisatrice avec un pH de 9,8. Une plaque  $D_1$  par exemple contient après un bain de 30 min. dans une solution à 5% de fer  $(7,60 \pm 0,07) \cdot 10^{18}$  atomes Fe/cm<sup>2</sup>, nombre déterminé par pesée différentielle. Cette valeur a été confirmée par analyse chimique quantitative de l'émulsion imprégnée\*). D'après les indications du producteur, le saccharosate contient des proportions inférieures au pourcent d'éléments (Na, Al, Si, P, S, Ca et Cu) qui sont pratiquement insensibles aux neutrons thermiques. 2<sup>o</sup> Le *citrate de fer*, chimiquement pur d'un pH de 6 environ a permis une concentration  $n_{Fe} = (4,60 \pm 0,05) \cdot 10^{18}$  atomes Fe/cm<sup>2</sup> sans modification appréciable de la sensibilité de l'émulsion photographique. (Comme toutes les mesures se sont faites par différence entre les indications des plaques enveloppées ou non dans des écrans de Cd, l'effet des neutrons rapides s'élimine). Des traces éventuelles de Li ou de B ne peuvent pas apporter des perturbations puisque leurs trajectoires  $\alpha$  sont très caractéristiques

\*) Nous remercions M. CL. PORTNER de l'Institut de Chimie Physique pour cette analyse.

et peuvent être facilement distinguées, ceci d'autant plus que dans le cas du bore le parcours ( $8,7 \mu$ ) tombe au-dessous de la distribution déterminée comme appartenant au fer, dans le cas du Li ( $43 \mu$ ) au-dessus.

Le cas très improbable d'autres impuretés perturbatrices nous semble définitivement éliminé par le fait que le dénombrement des traces dans le cas de la couche de fer pur donne une valeur comparable à celle de l'émulsion imprégnée (voir partie V).

#### IV. Différents dispositifs expérimentaux utilisés.

##### a) Source Ra—Be. Détection des neutrons.

Pour un certain nombre d'essais préliminaires et en particulier l'étude des possibilités de mesure absolue du nombre de neutrons lents par émulsion au Li ou au B, nous avons utilisé une source de 15 mC de Ra—Be, placée dans un écran de Pb au centre d'un bloc de paraffine contenant différentes plaques photographiques dans la disposition suivante:

#### Coupe horizontale.

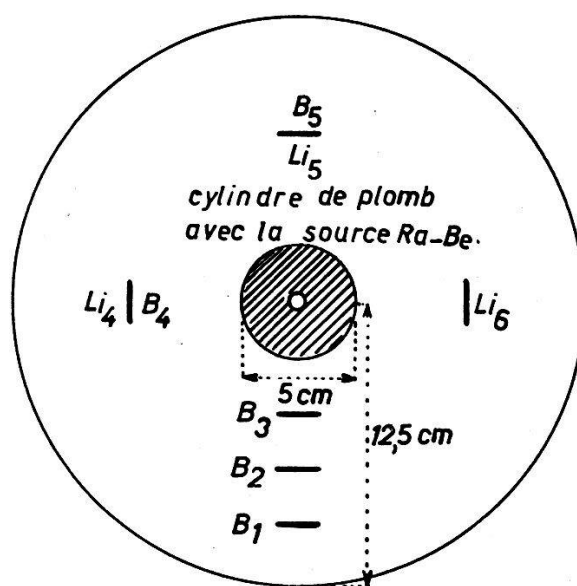


Fig. 2.

Les plaques au Li et au B utilisées étaient soit des plaques Ilford spéciales, soit des émulsions que nous avons chargées par le citrate de lithium ou le borax.

B<sub>5</sub> et Li<sub>5</sub> sont des plaques Ilford E<sub>1</sub> au B et au Li appliquées l'une contre l'autre dans un même paquet, et de même pour Li<sub>4</sub>

et B<sub>4</sub>, tandis que les autres plaques se trouvent isolément aux distances indiquées. Cette disposition permet d'étudier la distribution des neutrons dans la paraffine et l'absorption des neutrons par les plaques elles-mêmes, effet qui s'est révélé négligeable pour la répartition utilisée. Cependant quand les plaques se trouvent dans une boîte de Cd, nous avons trouvé nécessaire d'intercaler entre elles au moins 3 cm de paraffine pour compenser l'absorption dans le Cd. Les résultats obtenus pour une irradiation totale de 19 h sont indiqués dans le tableau 4.

Tableau 4.

Plaque	Evénements /cm <sup>2</sup>	Distance de la source (incl. 2,5 cm de plomb)	Nombre de neutrons lents cm <sup>2</sup> sec
B <sub>5</sub>	6,13 · 10 <sup>3</sup>	7,5 cm	235
Li <sub>5</sub>	7,04 · 10 <sup>3</sup>	7,5 cm	233
Li <sub>4</sub>	6,55 · 10 <sup>3</sup>	7,5 cm	216
B <sub>4</sub>	5,88 · 10 <sup>4</sup>	7,5 cm	225
B <sub>3</sub>	3,63 · 10 <sup>4</sup>	5 cm	139
B <sub>2</sub>	5,69 · 10 <sup>4</sup>	7,5 cm	214
B <sub>1</sub>	3,64 · 10 <sup>4</sup>	10 cm	139
Li <sub>6</sub>	6,58 · 10 <sup>3</sup>	7,5 cm	217

La valeur moyenne du nombre des neutrons lents pour la distance de 7,5 cm du centre (5 cm de paraffine) est de 222/cm<sup>2</sup> sec mesuré par les plaques au Li et de 225/cm<sup>2</sup> sec mesuré par les plaques au B, ce qui donne un nombre absolu de  $(223 \pm 4)$ /cm<sup>2</sup> sec. On en conclut qu'un flux des neutrons lents peut être déterminé par l'émulsion photographique avec une erreur ne dépassant guère 2%.

La diminution de la densité près de la source et du bord extérieur du bloc de paraffine est très nette, la distance 7,5 cm (incl. 2,5 cm de plomb) correspondant sensiblement au maximum.

Deux mesures effectuées avec des plaques au B dans une enveloppe de Cd de 1 mm d'épaisseur ont donné une fraction enregistrée de neutrons d'énergie supérieur à 0,2 eV (énergie de coupure de Cd) de 1,5% seulement. On peut donc considérer le nombre de neutrons donné par les émulsions après correction de 1,5% comme égal dans les limites d'erreur au nombre véritable de neutrons lents du domaine 0—0,2 eV.

*Essais préliminaires avec Fe.*

Pour les longues irradiations nécessaires à l'étude du fer le rayon du cylindre central de plomb a été porté à 5 cm, afin de diminuer l'action des  $\gamma$  sur l'émulsion. Dans ces conditions on obtient à 8,5 cm de distance de la source (3,5 cm de paraffine) ( $290 \pm 7$ ) neutrons lents/cm<sup>2</sup> sec et à 10 cm soit à 2 cm du bord du bloc ( $158 \pm 4$ ) neutrons lents/cm<sup>2</sup> sec. Les plaques chargées de fer ainsi que les plaques détectrices ont été disposées à 8,5 cm du centre suivant la fig. 3.

L'irradiation d'une durée de 280 hr. correspondait à un flux total de neutrons de  $(2,9 \pm 0,1) \cdot 10^8$ /cm<sup>2</sup>. Cette durée nous a fourni

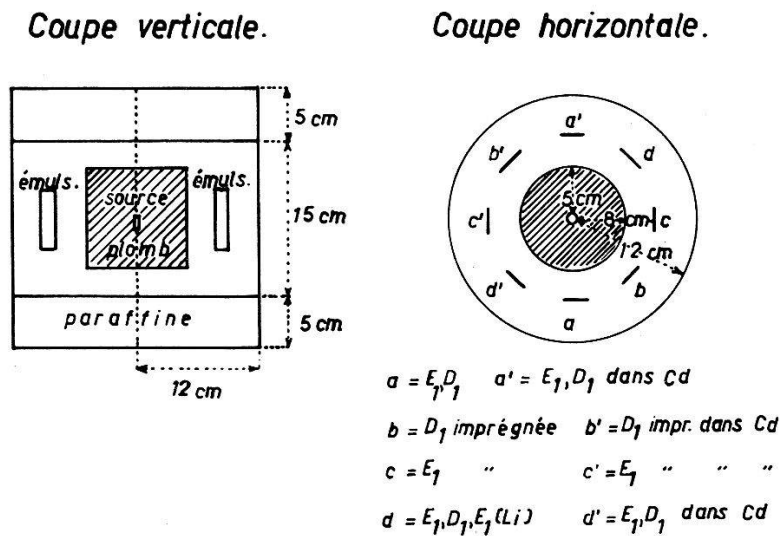


Fig. 3.

une première statistique grossière tout en maintenant le voile dû au  $\gamma$  à une valeur acceptable. Pour éviter dans la mesure du possible l'effet de fading de l'image latente, l'ensemble était disposé à l'intérieur d'une cloche étanche évacuée à quelques mm Hg ou remplie d'une atmosphère d'azote.

La méthode de détermination de la statistique finale des réactions du fer et que nous avons employée pour toutes nos mesures est la suivante:

On détermine les quatre nombres

$$T_{l+r}^{Fe+E}, \quad T_r^{Fe+E}, \quad T_{l+r}^E, \quad T_r^E$$

où les indices inférieurs  $l+r$  (lents + rapides) et  $r$  (rapides) correspondent aux plaques respectivement libres et enveloppées de Cd et les indices supérieurs  $Fe+E$  et  $E$  aux plaques respectivement chargées de Fe et avec émulsion seule. On peut s'attendre à trouver

des nombres  $T_r^E$  et  $T_{l+r}^E$  faibles. Effectivement les valeurs mesurées ont montré que c'était bien toujours le cas.

On forme les différences,

$$D_l^{\text{Fe}+E} = T_{l+r}^{\text{Fe}+E} - T_r^{\text{Fe}+E} \quad \text{et} \quad D_l^E = T_{l+r}^E - T_r^E$$

qui donnent respectivement l'effet des neutrons lents sur l'émulsion chargée de fer et sur l'émulsion seule. Enfin la différence

$$D_l^{\text{Fe}} = D_l^{\text{Fe}+E} - D_l^E$$

effectuée pour chaque intervalle de longueur de traces (donc intervalle d'énergie) fournit la distribution d'énergie des réactions déclenchées par les neutrons lents dans la solution de fer seule.

Pour notre premier essai, les traces ont été observées au microscope à projection (grossissement 1200  $\times$ ) et toutes les traces des protons de  $\text{N}^{14}(\text{n}, \text{p})\text{C}^{14}$  ainsi que de ceux dus aux reculs étaient éliminés par discrimination visuelle basée sur la distance des grains au début de la trajectoire. Cette méthode conduit à une élimination justifiée dans 75 % des cas environ pour les traces de 7 à 30  $\mu^*$ ).

Le résultat donne ainsi pour les traces  $\alpha$  de toutes les énergies au-dessus de 2,1 MeV:

$$\begin{aligned} D_l^{\text{Fe}+E} &= 47 - 20; & D_l^E &= 9 - 6 \quad \text{soit} \\ D_l^{\alpha} &= 17 - 3 = 14 \text{ traces } \alpha. \end{aligned}$$

Il apparaît donc un premier effet positif pour les traces  $\alpha$ .

#### b) Dispositif pour l'irradiation par cyclotron et source à haute tension.

Les résultats des essais préliminaires étant positifs, une série d'irradiations par des sources de neutrons plus intenses a été effectuée; trois par les neutrons du cyclotron de l'Institut de physique de l'E.P.F. à Zurich (protons de 7,5 MeV sur cible Cu) et deux par la source de neutrons Be-D de l'Institut de physique de l'Université de Bâle\*\*).

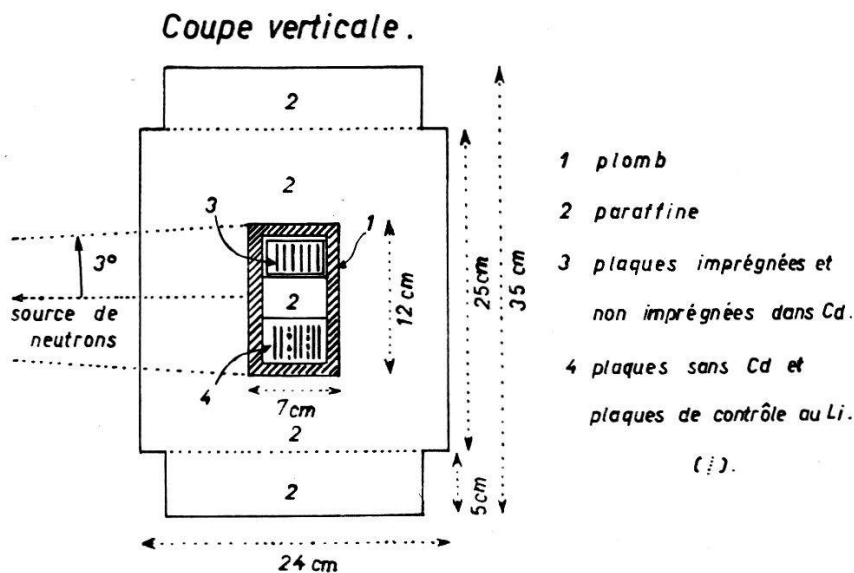
Après quelques essais le dispositif définitif a été choisi de la façon suivante.

Entre les paquets *a* et *b* était disposée une plaque Li- $E_1$  (solution de Li à 0,05 %) servant d'indicateur de neutrons lents et une même plaque entre les paquets *c* et *d*. A l'extérieur du bloc de paraffine

\*) Résultat déterminé par comparaison du procédé exact de mesure de densité des grains, appliqué ultérieurement, et de la discrimination visuelle.

\*\*\*) Nous exprimons nos sincères remerciements à MM. les professeurs P. SCHERRER et P. HUBER pour leur amabilité ainsi qu'aux équipes des deux accélérateurs.

différentes plaques étaient placées pour le contrôle du fading de l'image latente. Ces plaques  $E_1$  et  $D_1$  (imprégnées au Fe) étaient au préalable impressionnées par un faisceau de particules  $\alpha$  de ThC' à incidence rasante. Parallèlement, une plaque imprégnée de nitrate de thorium au début des irradiations (pour le cyclotron 130 h) était conservée pour être ensuite développée avec les autres plaques



et dans les mêmes conditions. Cette plaque permet une détermination précise du fading par ses traces  $\alpha$  présentant toute la gradation de densités de grains en fonction du temps. Ce contrôle est d'autant plus nécessaire que la mesure de la densité des grains près de la surface de l'émulsion n'est pas très certaine: la densité pour une trace donnée est à l'intérieur considérablement plus forte qu'au voisinage direct de la surface et ceci malgré un développement homogène par la méthode de température<sup>14</sup>).

Le rapport des densités de grains à la surface et à l'intérieur a été trouvé égal à 0,67 (fig. 5).

## V. Mesures et résultats.

### a) Méthode de séparation de traces $\alpha$ et protons par estimation visuelle.

Les plaques irradiées ont été développées par le procédé suivant, choisi pour une bonne discrimination des différentes traces: 1<sup>o</sup> Lavage en eau courante, 15 min. 2<sup>o</sup> 10 min. dans un bain révélateur Ilford ID<sub>19</sub> dilué 3 ×, resp. dans bain d'amidol<sup>15</sup>) maintenus à 5<sup>o</sup> C. 3<sup>o</sup> 10 min. dans le même révélateur dilué 20 × et maintenu à 17<sup>o</sup> C, resp. chauffage lent à 17<sup>o</sup> C par contact de la plaque photo-

graphique pendant 5 à 10 min. avec surface métallique chaude.  
 4° Rinçage rapide. 5° 10 min. dans bain d'arrêt à 2% acide acétique.  
 6° Rinçage rapide et nettoyage de la surface à la peau de daim.  
 7° Fixage dans bain à 40% hyposulfite avec brassage permanent.  
 8° Rinçage prolongé à l'eau courante et séchage à l'air.

Une série de plaques Ilford  $E_1$ , 100  $\mu$ , soumises à une première irradiation par le cyclotron ont été explorées. Pour toutes les traces de projection  $L_p$  comprises entre 7 et 13  $\mu$ , la mesure a été faite sans essai de distinction (domaine défavorable) tandis que pour toutes celles de  $L_p \geq 13 \mu$  une discrimination visuelle entre traces  $\alpha$  et protons a été effectuée (domaine favorable).

Les traces de protons dans l'émulsion (protons de recul des neutrons rapides) sont relativement nombreuses et rendent très difficile la mise en évidence d'un effet Fe(n, p)Mn éventuel qui n'a pas été tentée par la méthode visuelle.

Pour l'étude de la distribution d'énergie, seules les traces d'inclinaison  $< 60^\circ$  resp.  $< 45^\circ$  ont été retenues pour les quatre plaques.

La mesure de l'angle d'inclinaison et de la longueur véritable de la trace dépend du facteur de contraction  $s$  dont la détermination doit être faite très soigneusement. La vraie longueur est liée à la projection horizontale  $L_p$  et verticale  $h$  de la trajectoire par la relation suivante:

$$L = \sqrt{L_p^2 + (s \cdot h)^2}$$

Pour les objectifs à immersion,  $h$  peut être pris sans erreur sensible ( $n_{\text{émuls.}} \approx n_{\text{huile}}$ ) comme distance verticale entre les positions de mise au point de l'origine et de l'extrémité de la trajectoire et se mesure sur la vis micrométrique du microscope. Le facteur de contraction  $s$  se détermine comme rapport de l'épaisseur initiale à l'épaisseur après développement de l'émulsion sèche, au moyen d'un comparateur micrométrique. Un contrôle a été fait par la méthode des traces  $\alpha$  de parcours connu (ThC') et normales à la surface.

Voici un exemple des valeurs déterminées pour  $s$  dans les conditions standard de développement indiquées:

Ilford $D_1$	: 2,00 $\pm$ 0,05 non imprégnée
Ilford $E_1$	: 2,10 $\pm$ 0,10 non imprégnée
Ilford $D_1$	: 2,50 $\pm$ 0,05 imprégnée de saccharosate de fer
Ilford $E_1$	: 2,60 $\pm$ 0,10 imprégnée de saccharosate de fer
Kodak NT <sub>4</sub>	: 2,71 $\pm$ 0,05 non imprégnée
Kodak NT2a	: 2,42 $\pm$ 0,05 non imprégnée
Kodak NTB <sub>3</sub>	: 2,47 $\pm$ 0,10 non imprégnée



On peut voir que l'erreur sur le parcours véritable dépend presque uniquement de la précision de la mesure de  $h$ . L'étude de cet effet dans notre cas montre que la précision de  $0,5 \mu$  de nos mesures de  $h$  conduit pour des traces de  $16 \mu$  de longueur vraie à une erreur moyenne de  $\pm 0,15$  MeV sur l'énergie des  $\alpha$ .

D'autre part, aux très fortes concentrations de Fe employées, nous avons remarqué une nette dilatation de l'émulsion (25 % env. pour  $1,05 \text{ mg Fe/cm}^2$ ); le facteur de contraction  $s$  est naturellement augmenté. Cependant un contrôle effectué avec les  $\alpha$  du  $Po$  n'indique aucune modification mesurable de la relation énergie—parcours.

Les résultats de la mesure des traces  $\alpha$  sont indiqués fig. 5 bis (a, b), déjà présentée dans une communication préliminaire<sup>12</sup>). Il faut noter que les fluctuations statistiques sont considérables par suite du fait inévitable que le nombre final s'obtient comme double différence de quatre nombres mesurés; la fluctuation est par conséquent

$$T = \sqrt{T_1 + T_2 + T_3 + T_4}$$

$T_i$  = nombre des événements par intervalle de longueur.

Pour le saccharosate de Fe, on remarque une différence assez grande dans le nombre de traces pour les plaques enveloppées de Cd, avec et sans imprégnation, ce qui n'est pas le cas pour le citrate. L'augmentation du nombre de traces de protons dans l'émulsion imprégnée s'explique en partie par la présence des atomes d'hydrogènes supplémentaires du saccharosate (5 fois plus que pour le citrate) et qui représente une augmentation de 7% environ pour une solution de 4% de fer. L'effet observé cependant est plus considérable et peut s'interpréter comme réactions produites par les neutrons rapides sur les impuretés du saccharosate.

b) *Méthode de discrimination des traces  $\alpha$  et des protons par mesure de la densité des grains.*

Pour obtenir une meilleure séparation des traces  $\alpha$  et p une irradiation a été effectuée avec une série de plaques Ilford  $D_1$  ( $100 \mu$ ) pour lesquelles toutes les traces de projection  $L_p > 7 \mu$  ont été mesurées et le nombre de grains par trace déterminé. Pour la mesure de la longueur, un grossissement de  $600 \times$  a été utilisé, tandis que pour le dénombrement des grains il était de  $1000 \times$ . Les courbes de densités, obtenues pour les traces  $\alpha$  de Th et les traces p de reculs, sont données dans la fig. 5. Par suite des fluc-

tuations, on voit qu'une discrimination nette est difficile au-dessous de  $16 \mu$ . Nous avons choisi comme densité moyenne limite de discrimination entre protons et  $\alpha$ ,  $1,00 \text{ grains}/\mu$ .

c) Effet (n,  $\alpha$ ).

Les résultats obtenus pour les plaques  $E_1$  par estimation visuelle sont donnés dans les histogrammes fig. 5 bis.

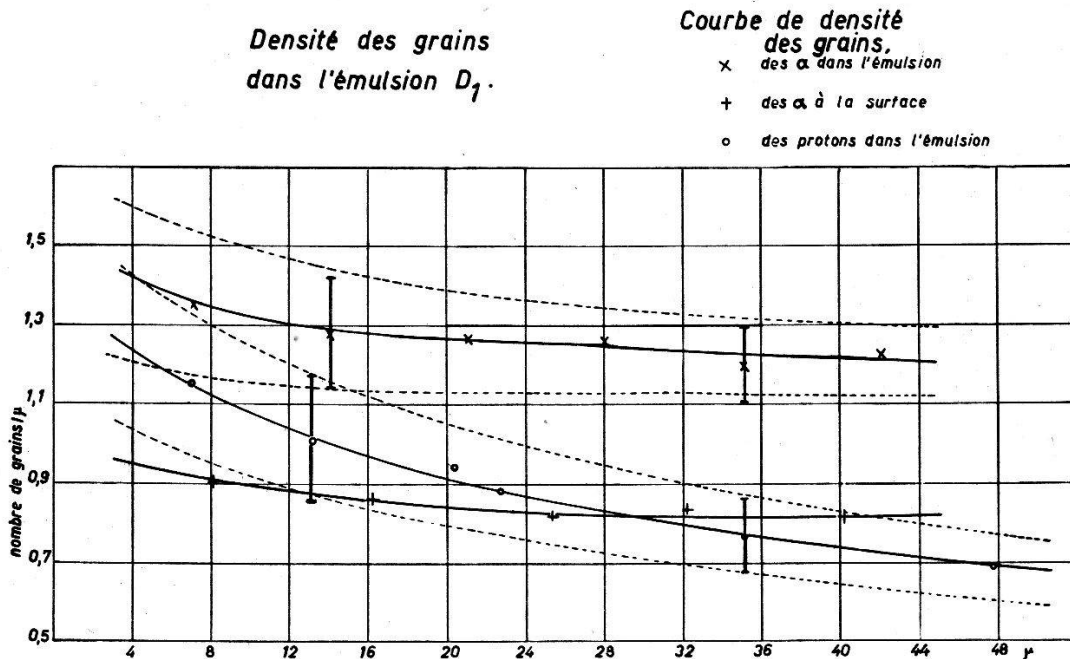


Fig. 5.

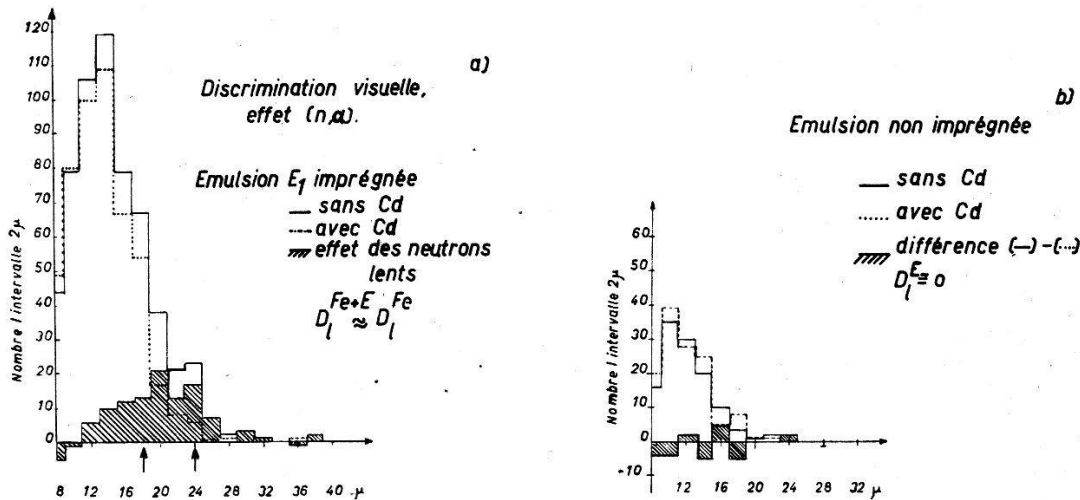


Fig. 5 bis.

On voit en particulier que le spectre correspondant à l'action des neutrons lents sur l'émulsion seule a une valeur moyenne sensiblement nulle, ce qui nous autorisera, sans erreur appréciable, à négliger pour certains histogrammes l'effet de l'émulsion seule. La

mesure avec les plaques  $D_1$  et discrimination  $\alpha$ -p par densité des grains conduit aux histogrammes fig. 6. Ici également l'effet des neutrons lents sur l'émulsion seule est nul en moyenne et le spectre final semble confirmer la présence des deux groupes  $\alpha$  déjà indiqués par la première mesure.

La fig. 7a donne l'histogramme obtenu pour une série de plaques  $D_1$  irradiées par les neutrons Be-D (accélérateur à haute tension)

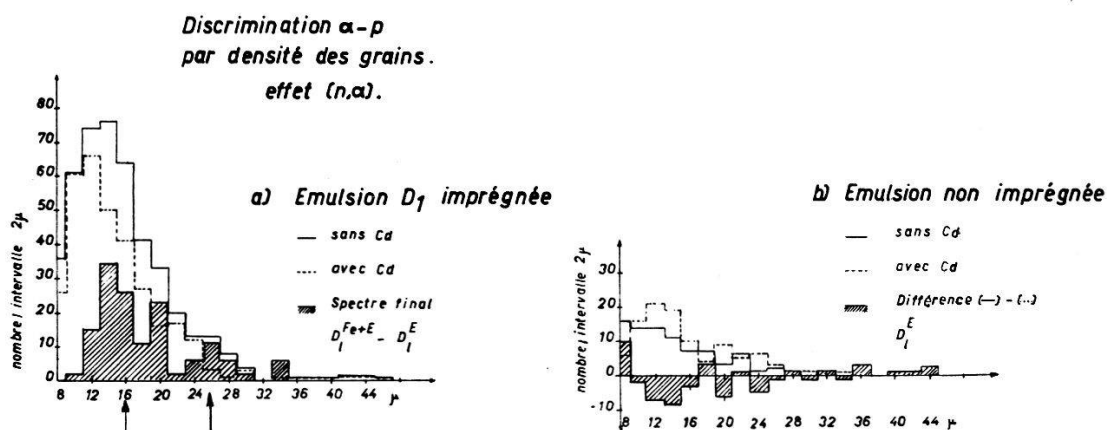


Fig. 6.

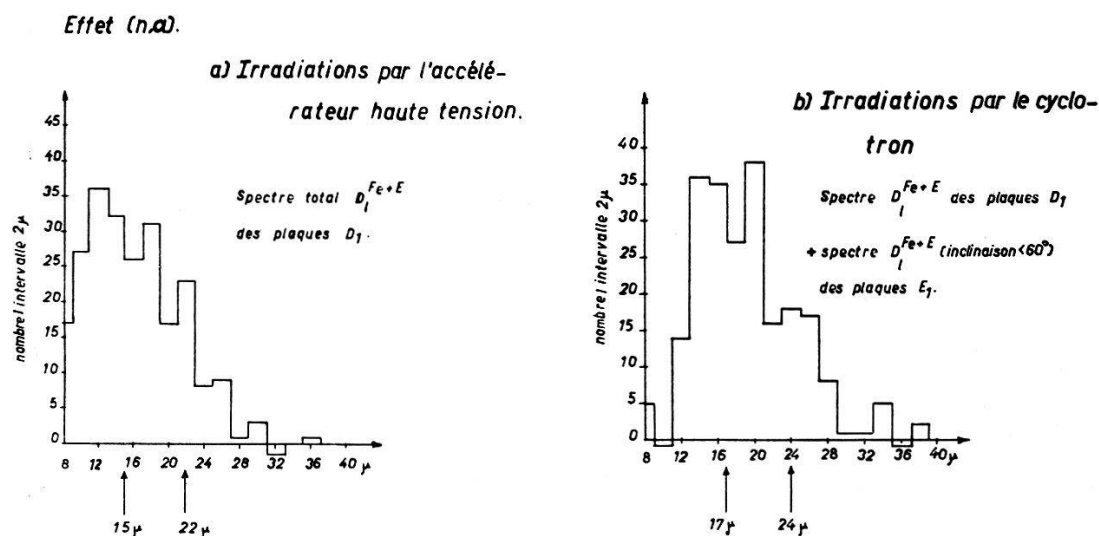


Fig. 7.

et avec discrimination  $\alpha$ -p visuelle; la fig. 7b les résultats relatifs à l'irradiation par le cyclotron.

Les histogrammes présentent également les deux groupes déjà mis en évidence précédemment. Dans chaque cas les flèches indiquent approximativement la position des centres de gravité des deux groupes  $\alpha$ .

Enfin la fig. 8 relative au citrate de Fe présente, en dépit de la statistique relativement faible, des caractéristiques semblables aux résultats obtenus avec le saccharosate, à l'exception du maximum

à 9  $\mu$  très douteux puisque dans une région de contamination possible par le bore.

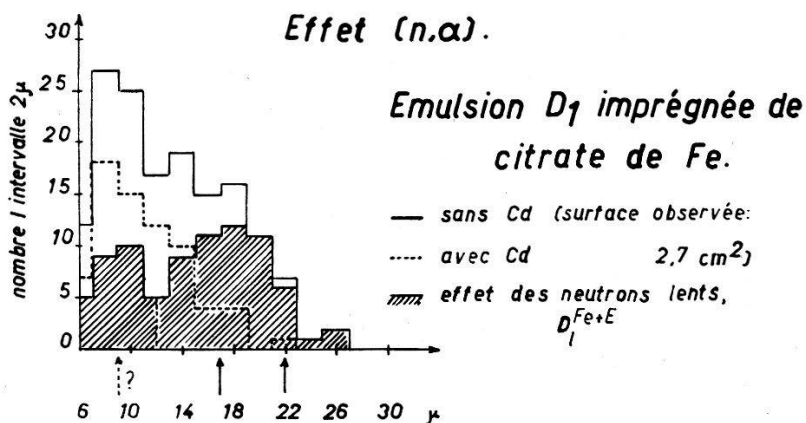


Fig. 8.

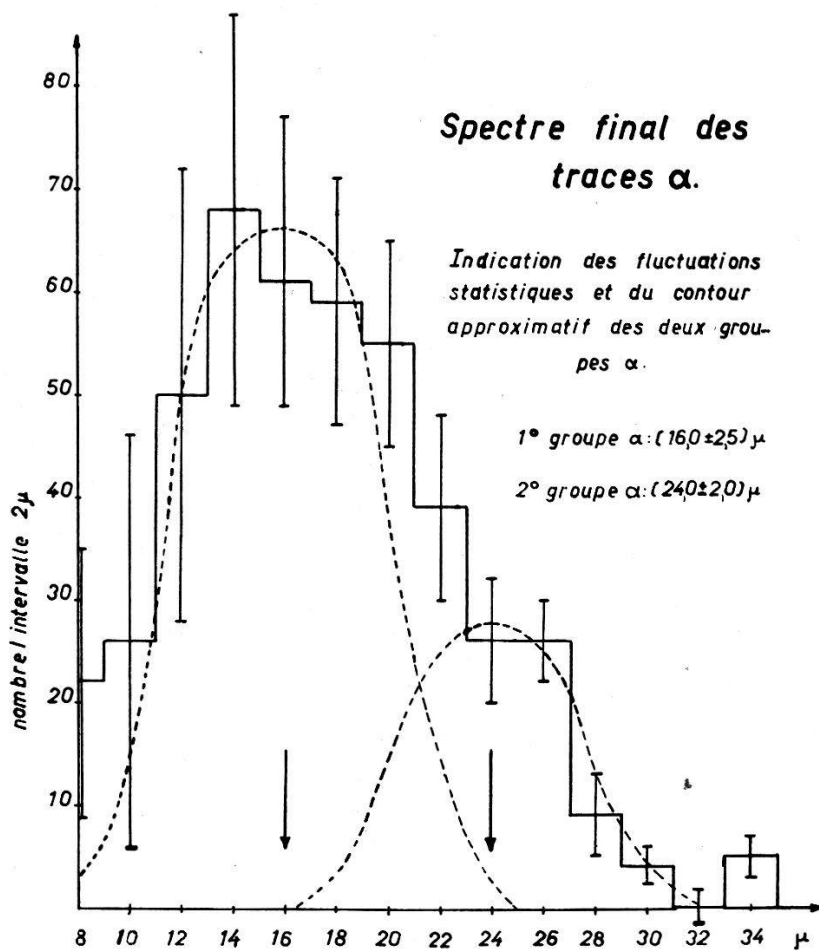


Fig. 9.

En superposant les différentes distributions, on obtient l'histogramme total de la fig. 9. Le contour approximatif des deux groupes décelés y est indiqué.

Sur la base de ces différents résultats, on peut fixer les maxima des deux groupes  $\alpha$  à  $(16 \pm 2,5) \mu$  et  $(24 \pm 2,0) \mu$ , ce qui donne pour les énergies de réaction en tenant compte d'une correction de  $+7,5\%$  pour le recul du noyau de Cr,

$$Q_1 = (4,5 \pm 0,5) \text{ MeV} \text{ et } Q_2 = (5,7 \pm 0,3) \text{ MeV.}$$

### Section efficace.

Le flux total des neutrons lents a été déterminé par les plaques au Li. Pour l'une des irradiations des plaques  $D_1$  et de l'émulsion avec couche de Fe, on trouve ainsi par exemple un flux total de  $(6,85 \pm 0,33) \cdot 10^9$  neutrons lents/cm<sup>2</sup>.

Pour se faire une idée du rapport du nombre des neutrons lents  $0 < E < 0,2 \text{ eV}$  à celui des neutrons rapides ( $E > 0,4 \text{ MeV}$ ) qui caractérise les particules agissant sur les plaques dans la paraffine, nous avons déterminé, pour les deux sources utilisées, le spectre

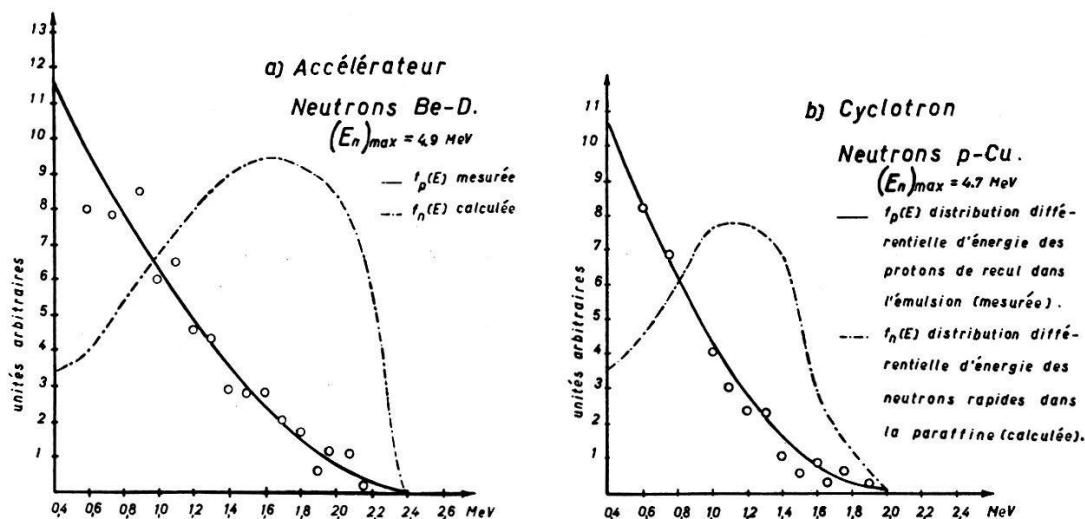


Fig. 10.

des neutrons rapides au moyen des protons de recul dont les distributions sont indiquées dans la fig. 10. A partir de ces spectres on peut, par intégration et en tenant compte de la perte d'énergie du neutron dans la collision élastique ainsi que de la section efficace de collision, déterminer le nombre des neutrons rapides.

Si  $f_p^*(E)$  est la fonction de distribution différentielle d'énergie relative aux protons mesurés et  $f_p(E)$  la fonction de distribution pour l'ensemble des protons dans l'émulsion, on pourra poser  $k f_p^*(E) = f_p(E)$  et écrire pour le nombre total de protons de recul (qu'on peut mesurer):

$$N_p = k \int_{E_{\min}}^{E_{\max}} f_p^*(E) dE = \int_{E_{\min}}^{E_{\max}} f_p(E) dE.$$

Cette relation permet de déterminer le facteur géométrique  $k$  relatif au domaine angulaire d'orientation des traces effectivement mesurées, et ensuite la fonction de distribution  $f_p(E)$ .

D'autre part on aura par intervalle d'énergie du proton:

$$f_p(E) dE = n_H \int_{E'=E}^{\infty} f_n(E') P(E', E) dE dE'.$$

Comme la diffusion n-p est isotrope dans le système du centre de gravité pour les énergies considérées, la probabilité  $P(E', E) dE$  est simplement égale à  $\sigma_H(E') dE/E'$ , si bien que, en introduisant dans l'expression ci-dessus et en dérivant par rapport à la limite inférieure  $E$  de l'intégrale, on obtient:

$$f_n(E) = - \frac{1}{n_H} \frac{E}{\sigma_H(E)} \frac{df_p(E)}{dE}$$

où  $\begin{cases} n_H = \text{nombre de } H/\text{cm}^2 \\ \sigma_H = \text{section efficace de collision n-p} \end{cases}$

pour la fonction de distribution des neutrons rapides et pour leur nombre total

$$N_n = \int_{E_{\min}}^{E_{\max}} f_n(E) dE.$$

La courbe  $\sigma_H(E)$  étant donnée dans la littérature<sup>16</sup>), il est facile d'effectuer l'intégration graphiquement.

On obtient ainsi, pour les neutrons ralentis dans 10 cm de paraffine, comme rapport des neutrons rapides ( $E > 0,4$  MeV) aux neutrons lents ( $E < 0,2$  eV):

Cyclotron (neutrons p-Cu,  $E_{\max} = 4,7$  MeV):  $\frac{N_{\text{rapides}}}{N_{\text{lents}}} = 3,3 \cdot 10^{-2}$

Accélérateur (neutrons D-Be,  $E_{\max} = 4,9$  MeV):  $\frac{N_{\text{rapides}}}{N_{\text{lents}}} = 2,3 \cdot 10^{-2}$ .

Il est intéressant de comparer ces rapports avec celui mesuré dans la colonne de graphique d'un réacteur nucléaire. Pour la G.L.E.E.P. de Harwell par exemple LOCQUEREUX<sup>17</sup> indique le rapport  $4,3 \cdot 10^{-6}$ .

Il n'est pas nécessaire d'insister sur les avantages que présenterait l'irradiation par pile pour les investigations du genre présenté ici, en particulier pour l'élimination du fond très gênant des protons de recul.

Le calcul de la section totale de l'effet  $(n, \alpha)$  se fait en tenant compte de deux corrections, l'une due aux traces sortant de l'émulsion et qui ne sont pas prises en considération, ce qui pour une énergie  $\alpha$  moyenne de 4,5 MeV se monte à 8,75%, l'autre relative aux traces de forte inclinaison et qui sont éliminées, soit 8,5%. De plus comme seules les traces  $L_p \geq 5 \mu$  ont été retenues une correction supplémentaire de 10% environ est nécessaire. On obtient ainsi pour l'émulsion imprégnée la section efficace,

$$\sigma_{n, \alpha} = (3,9 \pm 1,0) \cdot 10^{-27} \text{ cm}^2.$$

Pour la plaque avec *couche mince de Fe* la section efficace, compte tenu de la correction de 25% déjà mentionnée plus haut, est trouvée égale à

$$\sigma_{n, \alpha} = (6,8 \pm 2,0) \cdot 10^{-27} \text{ cm}^2.$$

Des valeurs supplémentaires pour  $\sigma_{n, \alpha}$  ont été obtenues avec une *feuille épaisse de Fe* en contact avec l'émulsion  $D_1$  et avec deux nouvelles plaques  $D_1$  imprégnées de citrate et saccharosate de Fe. Ces valeurs sont dans l'ordre:

$$\begin{aligned} \sigma_{n, \alpha} &= (7,2 \pm 2,8) \cdot 10^{-27} \text{ cm}^2 \\ &= (7,4 \pm 1,9) \cdot 10^{-27} \text{ cm}^2 \\ &= (6,9 \pm 2,2) \cdot 10^{-27} \text{ cm}^2 \end{aligned}$$

A l'exception de la première de ces 5 valeurs toutes sont compatibles dans les limites d'erreur  $\varepsilon_i$ . La moyenne pondérée calculée par les formules

$$\begin{aligned} \bar{\sigma} &= \frac{\sum p_i \sigma_i}{\sum p_i}; \quad p_i = 1/\varepsilon_i^2 \\ \bar{m} &= \sqrt{\frac{\sum p_i (\bar{\sigma} - \sigma_i)^2}{(n-1) \sum p_i}} \end{aligned}$$

donne

$$\underline{\bar{\sigma}_{n, \alpha} = (5,4 \pm 0,8) \cdot 10^{-27} \text{ cm}^2.}$$

#### d) Effet $(n, p)$ .

Par suite de la présence d'un très grand nombre de protons de recul, la détermination et la mesure d'un effet  $(n, p)$  ne peut guère dépasser le stade d'une première estimation. En considérant comme traces de protons celles dont la densité moyenne de grains est inférieure à 1,00 grains/ $\mu$ , on obtient pour la plaque  $D_1$  la distribution des longueurs donnée dans la fig. 11 a. Il semble possible de distinguer trois groupes de protons ayant leur centre de gravité approxi-

mativement à  $27 \mu$ ,  $35 \mu$ , et  $45 \mu$  ce qui correspond aux énergies de 1,5; 1,8 et 2,1 MeV. Construisant la distribution statistique pour l'ensemble des traces sans discrimination  $\alpha$ -p, on trouve la répartition des longueurs données dans la fig. 11 b. On y distingue nettement vers  $17 \mu$ , le maximum correspondant aux  $\alpha$  et on retrouve au voisinage des mêmes positions que précédemment les trois groupes qu'on peut considérer comme protons. Par suite d'une contamination par les  $\alpha$  inévitable pour les longueurs de traces

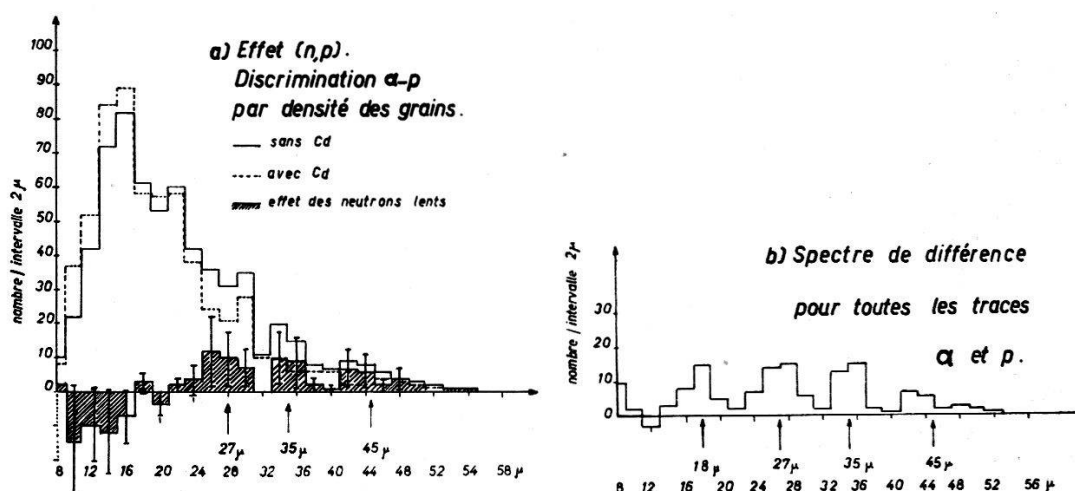


Fig. 11.

jusqu'à  $20 \mu$  et davantage, le groupe de protons de  $27 \mu$  (fig. 11a) est probablement influencé par le groupe  $\alpha$  de  $24 \mu$ . C'est pourquoi le groupe correspondant de la fig. 11b est relativement peu augmenté.

### Section efficace.

L'estimation de la section efficace de l'effet (n, p) après les différentes corrections nécessaires donne la valeur approximative

$$\sigma_{n,p} \cong 2 \cdot 10^{-26} \text{ cm}^2.$$

## VI. Discussion et conclusions.

Les causes d'erreurs pour les mesures effectuées sont assez appréciables et il est bon de les passer en revue pour se rendre compte de la limite de la méthode.

Ces causes sont successivement:

1. Le voile considérable produit par l'action des rayons  $\gamma$  qu'il est difficile d'éviter sans diminuer le flux des neutrons lents.

2. L'action sensibilisatrice des substances d'imprégnation (en particulier pour le saccharosate de Fe) tendant à rendre plus difficile



la discrimination  $\alpha$ -p en dépit de l'élimination du sel par lavage consciencieux de l'émulsion avant développement et maintien du pH de la solution à 7,0. (Les plaques non imprégnées étaient également soumises au même lavage pour maintenir des conditions analogues.)

3. Les difficultés de discrimination des traces  $\alpha$  et p surtout au-dessous de  $15 \mu$  et malgré un développement progressif. Cette difficulté est en relation avec les fluctuations de sensibilité de l'émulsion elle-même et l'action non uniforme du révélateur en dépit du procédé de développement utilisé, dit de température.

4. La variation du nombre des neutrons lents enregistrés avec la position de la plaque dans le bloc de paraffine. Cet effet s'il n'est pas soigneusement éliminé empêche la détermination de la section efficace. Nous avons indiqué plus haut comment il était possible par des mesures préliminaires d'obtenir à cet égard des conditions optima.

5. Enfin il est clair que si l'on ne dispose pas d'une pile, la précision statistique reste encore limitée. Remarquons cependant que d'après H. FARAGGI<sup>18)</sup> on ne peut dépasser un flux total maximum de  $10^{11}$  neutrons/cm<sup>2</sup> environ si l'on veut éviter un voile prohibitif dû aux radiations émises par Ag et Br activés par les neutrons lents.

En dépit de ses limitations, la méthode utilisée a donné dans les trois cas étudiés: a) émulsion chargée de saccharosate de Fe; b) émulsion chargée de citrate de Fe; c) émulsion en contact avec une couche de fer métallique, des résultats convergents tant pour la distribution statistique des traces  $\alpha$  que pour la section efficace  $\sigma_{n,\alpha}$ . Ceci nous paraît exclure définitivement un effet produit par des impuretés incontrôlables et confirme les résultats déjà publiés par nous<sup>12)</sup> et mis en doute par H. FARAGGI<sup>18)</sup> dans un travail entrepris à la suite de notre communication préliminaire.

#### *Essai d'identification des processus observés.*

##### 1. *Effet (n, $\alpha$ ).*

a) Les valeurs de masses spectrographiques donnent des valeurs de  $Q$  en général faiblement positives pour Fe<sup>54</sup>, par contre pour Fe<sup>56</sup> et Fe<sup>57</sup> comprises dans le domaine de nos résultats expérimentaux autour de 5 MeV. De plus

b) les estimations semi-théoriques faites en page 526 du rendement relatif des isotopes de Fe pour le processus (n,  $\alpha$ ), compte tenu des abondances isotopiques, avantagent fortement Fe<sup>56</sup>.

Ces deux points sont des arguments en faveur de l'attribution du groupe  $\alpha$  de  $Q_1 = 4,5$  MeV à  $\text{Fe}^{56}$  et du groupe plus faible de  $Q_1 = 5,7$  MeV à  $\text{Fe}^{57}$ . Les valeurs de  $Q$  mesurées sont alors compatibles uniquement avec celles déduites des masses spectrographiques de OGATA<sup>6</sup>).

Par suite des très hautes barrières de potentiel (12 MeV) il nous paraît très improbable que le maximum principal de  $Q = 4,5$  MeV corresponde à une transition menant du noyau 'compound' de Fe à un niveau excité du noyau final  $\text{Cr}^{53}$  ou  $\text{Cr}^{54}$ .

## 2. Effet (n, p).

Comme la valeur de  $Q$  pour un effet (n, p) de  $\text{Fe}^{54}$  est positive il semble que les protons observés puissent être attribués, en partie du moins, à cet isotope. Cette attribution est supportée par les résultats obtenus par irradiation de Fe dans la pile de OAK RIDGE<sup>19</sup>) où la création de l'isotope  $\text{Mn}^{54}$  radioactif a été mise en évidence.

Notre valeur expérimentale de  $Q$ , voisine de 2 MeV, est assez élevée pour qu'il y ait de bonnes chances d'éclaircir ce point de façon satisfaisante par l'émulsion photographique irradié dans le flux des neutrons lents de la pile, pratiquement exempt de neutrons rapides.

Pour le processus (n,  $\alpha$ ), la section efficace expérimentale est en gros 100 fois plus grande que les estimations semi-théoriques basées sur les sections de capture de Fe. Cette discrédance paraît être due, comme dans le cas de la réaction  $\text{Cl}^{35}(\text{n}, \text{p}) \text{S}^{35}$  à une inconséquence théorique qu'il reste à élucider.

Il est évident que d'autres effets (n, p) et (n,  $\alpha$ ) par neutrons lents sont parfaitement possibles avec des éléments voisins du fer, surtout, semble-t-il, en passant aux noyaux à nombre magique ou doublement magique de protons et neutrons. Une investigation préliminaire entreprise avec le zinc et qui est en progrès confirme ce fait.

Un des buts de ce travail était d'étudier les possibilités de l'émulsion nucléaire pour la mesure des processus à très faible section efficace. Sur la base des résultats obtenus, on peut fixer la limite approximative de détectabilité des effets (n,  $\alpha$ ) et (n, p) avec neutrons lents à  $5 \cdot 10^{-29}$  cm<sup>2</sup> et  $5 \cdot 10^{-28}$  cm<sup>2</sup> respectivement.

Ce travail a été financé par la Commission Suisse de l'énergie Atomique à laquelle vont nos sincères remerciements.

Institut de Physique de l'Université de Neuchâtel.

**Bibliographie.**

- 1) J. MATTAUCH, A. FLAMMERSFELD, Isotopenbericht (1949).
  - 2) H. A. BETHE, Elementary Nuclear Theory (1947).
  - 3) L. ROSENFELD, Nuclear Forces (1948).
  - 4) H. FARAGGI, Annales de physique **12**, 340 (1951).
  - 5) NUCLEAR DATA, United States Department of Commerce, National Bureau of Standards (1950).
  - 6) K. OGATA, Phys. Rev. **75**, 200 (1949).
  - 7) H. E. DUCKWORTH, H. A. JOHNSON, Phys. Rev. **78**, 179 (1950); H. E. DUCKWORTH, H. A. JOHNSON, Phys. Rev. **78**, 330 (1950); H. E. DUCKWORTH, H. A. JOHNSON, R. S. PRESTON, R. F. WOODCOCK, Phys. Rev. **78**, 386 (1950); H. E. DUCKWORTH, K. S. WOODCOCK, R. S. PRESTON, Phys. Rev. **78**, 479 (1950); H. E. DUCKWORTH, R. S. PRESTON, Phys. Rev. **79**, 402 (1950); H. E. DUCKWORTH, communications privées (1951).
  - 8) H. E. DUCKWORTH, R. S. PRESTON, Phys. Rev. **82**, 469 (1951).
  - 9) H. A. BETHE, Rev. of Mod. Physics **9**, 166 (1937).
  - 10) B. L. COHEN, Phys. Rev. **80**, 105 (1950).
  - 11) H. POMERANCE, J. I. HOOVER, Phys. Rev. **73**, 1265 (1948).
  - 12) H. HÄNNI et J. ROSSEL, Helv. Phys. Acta **23**, 513 (1950).
  - 13) H. A. BETHE, Rev. of Mod. Physics **9**, 272 (1937).
  - 14) Bulletin 13a du Centre de Physique Nucléaire, Bruxelles (1950), Ire partie: Le développement.
  - 15) A. D. DAINTON, A. R. GATTIKER and W. O. LOCK, Phil. Mag. **42**, 396 (1951).
  - 16) C. GOODMAN, The Science and Engineering of Nuclear Power (1947).
  - 17) R. LOCQUENEUX, Journ. de phys. et le Radium **11**, 144 (1950).
  - 18) H. FARAGGI, Comptes Rendus **231**, 1475 (1950).
  - 19) T. ALPER, L. DU PREEZ, Nature **165**, 689 (1950).
-