



HAL
open science

Radioactivité naturelle du lutétium, du rhénium et de l'osmium

D. Dixon, A. Mc Nair, S.C. Curran

► **To cite this version:**

D. Dixon, A. Mc Nair, S.C. Curran. Radioactivité naturelle du lutétium, du rhénium et de l'osmium. Journal de Physique et le Radium, 1955, 16 (7), pp.538-540. 10.1051/jphysrad:01955001607053800 . jpa-00235212

HAL Id: jpa-00235212

<https://hal.science/jpa-00235212>

Submitted on 4 Feb 2008

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

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

RADIOACTIVITÉ NATURELLE DU LUTÉTIUM, DU RHÉNIUM ET DE L'OSMIUM

Par D. DIXON, A. Mc NAIR et S. C. CURRAN,

The Department of Natural Philosophy, The University, Glasgow W 2.

Summary. — Some studies of the decay of ^{176}Lu have been made by Dixon, Mc Nair and Curran with the help of the large proportional tube spectrometer and scintillation spectrometers. Sources down to 0.1 mg/cm^2 in thickness were spread over the large cathode and the shape of the β continuum, end-point $425 \pm 25 \text{ keV}$, together with the internal conversion peaks observed. The conversion coefficients were evaluated. The γ ray spectrum and the γ - γ coincidence spectra showed that γ rays of energies 310 , 190 and 89 keV were emitted in cascade. They arose in transitions from levels of spin and parity 6^+ , 4^+ and 2^+ . The decay scheme fitted accurately the Bohr-Mottelson predictions. The ground state of ^{176}Lu seemed to be a 10^+ state. The maximum branching by K -capture was 3 per 100. The half-life was $4.56 \times 10^{10} \text{ g}$ for ^{176}Lu .

Studies by Dixon and Glover on ^{184}Re and ^{18}Os failed to reveal β -activity or capture and minimum half-lives of 10^{16} years were deduced. Apparent evidence of capture in ^{184}Os was found to be due to a specific "background" effect and this effect could explain weak capture activities, for instance that tentatively assigned to ^{113}In .

Work on ^{22}Na by Moljk, with extremely thin sources in the proportional tube, is important in the general problem of observing very soft Auger electrons released in capture decay. The position spectrum was found to be closely allowed in shape down to 15 keV or less. The capture intensity, as examined by searching for Auger electrons, was not more than 3 per 100. These is still some uncertainty about the release of extremely soft electrons from such sources.

Experiments of Moljk and Curran on ^{14}C and ^{32}S as gaseous sources (CH_4 and CS_2) showed that both spectra were allowed in shape to better than 1 per 100 down to an energy of about 2 keV . New techniques for such examination were described.

Nous avons recherché la radioactivité de quelques radioéléments naturels à l'aide d'un compteur proportionnel de grandes dimensions, spécialement construit pour cette usage, dont on avait réduit le mouvement propre par un système de compteurs Geiger-Müller en antioïncidences protégés par un environ 12 cm de plomb et $2,5 \text{ cm}$ de fer. Le faible mouvement propre ainsi obtenu (16 c/mn) dans le compteur, dont la cathode avait une surface utile supérieure à 10^3 cm^2 , nous a permis de poursuivre nos études sur les radioéléments naturels de longue période. Dans un article précédent [1], nous avons exposé en détail les avantages que procure l'emploi de sources placées à l'intérieur d'un compteur proportionnel ayant un faible mouvement propre.

La radioactivité du ^{176}Lu , un des trois isobares voisins, avait été établie d'une manière certaine, quoique jusqu'à une époque récente le schéma de désintégration précis était resté douteux [2], [4]. Goldhaber et Hill [5] proposent un schéma, dans lequel les γ d'énergie 270 , 190 et 89 keV suivent en cascade la transition β d'énergie maximum 400 keV , et qui s'est trouvé en accord avec de récents résultats [6], [7]. Nous avons entrepris le présent travail sur le ^{176}Lu pour, d'une part obtenir les spectres β et γ , d'autre part établir le schéma de désintégration d'une étude détaillée des coïncidences γ - γ et enfin déterminer les intensités β et γ .

Pour étudier le spectre β du ^{176}Lu , nous avons

utilisé deux sources; l'une de LuCl_3 de $0,49 \text{ mg/cm}^2$ d'épaisseur et l'autre de poudre de Lu_2O_3 finement pulvérisée de $0,149 \text{ mg/cm}^2$. Les spectres obtenus, en employant ces sources, montraient principalement une raie d'électrons vers 80 keV correspondant à la conversion K et L d'un γ de 89 keV , l'énergie maximum étant observée dans la région des 500 keV . Des raies électroniques plus faibles ont été observées avec les deux sources provenant de la conversion de γ de $310 \pm 10 \text{ keV}$ et $190 \pm 10 \text{ keV}$. Le diagramme de Fermi du spectre continu est une droite entre 80 et 350 keV , ce qui est surprenant étant donné la complexité de la désintégration, dans laquelle une fraction des particules β ont leur énergie augmentée par l'émission simultanée de l'électron de conversion du γ de 89 keV qui est fortement converti. On a calculé le nombre total de désintégrations par heure dans la source à partir du coefficient de conversion du γ de 89 keV émis dans la transition isomérique de ^{176}Lu [8], [9] de $3,75 \text{ h}$ de période et du taux de comptage; on en a déduit le rapport des intensités des deux composantes du spectre. En supposant une forme permise pour le spectre d'énergie maximum $E_{\text{max}} = 425 \text{ keV}$, les points expérimentaux s'accordent avec le spectre ainsi déterminé. La forme du diagramme de Fermi est en accord avec une superposition de spectres d'énergie maximum 425 keV et une forme permise, et un spectre d'énergie maximum $425 + 80 \text{ keV}$. Nous en con-

cluons que le spectre β du ^{176}Lu a une forme permise d'énergie maximum 425 ± 15 keV et une période $4,56 \pm 0,3 \cdot 10^{10}$ ans. A partir de l'étude de l'intensité et de la nature du rayonnement L associé à la désintégration, on a pu estimer la probabilité de désintégration par capture électronique et trouver une vie moyenne partielle de $1,5 \cdot 10^{12}$ an pour ce processus. Nous avons recherché le rayonnement γ à l'aide d'un compteur à scintillation à NaI de faible mouvement propre et observé des γ de 310 ± 10 keV et 190 ± 10 keV. Une raie à 53 keV correspond au rayonnement K du Lu provenant de l'absorption des γ dans la source dont l'épaisseur était de $0,4$ mg/cm². Les coïncidences γ - γ confirment que ceux-ci sont en cascade comme l'avaient suggéré Goldhaber et Hill. De la comparaison entre les valeurs mesurées au compteur proportionnel des coefficients de conversion dans la couche K et les valeurs théoriques déduites des tables de Rose et al. [10] on conclut que ces rayonnements sont des $E[2]$. L'hypothèse d'un spin égal à 10 [11], [12] pour l'état fondamental du ^{176}Lu avec une parité paire signifie que la transition correspond à $\Delta J = 4$, non. Ceci semble plausible étant donné la grande valeur de $\log ft = 18,75$. Il apparaît improbable que la transition corresponde à $\Delta J = 3$, oui comme cela été trouvé pour ^{87}Rb ($\log ft = 18,6$), ce qui correspond à une forme de spectre interdite du troisième ordre [1], [13].

Rhénium et Osmium. — ^{187}Re et ^{187}Os sont des isobares voisins, de telle sorte que l'un doit être radioactif. Les premiers travaux, qui étaient erronés, suggéraient que ^{187}Os était radioactif par capture K et L [14], [15], mais les travaux de Naldrett et Libby [17] renversèrent la situation et indiquèrent que ^{187}Re était émetteur de période $\tau = 3 \cdot 10^{10}$ ans. Les travaux ultérieurs de Sugeran [18] et Gauthé et Blum [19] confirment cette activité, mais Sugeran estime que la période est deux fois plus grande. Des recherches récentes entreprises à Glasgow semblent confirmer cette activité, mais avec une différence importante pour l'énergie maximum. Naldrett et Libby par des mesures d'absorption proposent 43 keV, tandis que nos premiers travaux suggéraient une énergie maximum vers 400 keV [20]. Depuis cette époque, nous avons considérablement réduit le mouvement propre, et avons trouvé que des rayonnements β que nous pensions être dus à ^{187}Re étaient en réalité dus à différentes contaminations radioactives de l'aluminium sur lequel était monté la source et qui était employé à l'intérieur du compteur proportionnel.

Les résultats de nos recherches plus complètes sur l'activité du rhénium indiquent une période pour $^{187}\text{Re} < 10^{16}$ ans à moins que l'énergie du rayonnement β soit considérablement plus petite que 1 keV. Ce résultat négatif nous conduisit à examiner l'osmium et, à partir de différentes sources

un rayonnement XL de la région du Re a été observé avec un taux de comptage de $0,5$ c/mn pour $7,5$ mg d'osmium répartis sur 900 cm². Nous avons étudié la possibilité suivant laquelle ce rayonnement L pourrait provenir de la conversion externe de γ traversant le compteur proportionnel et non détectés par le système d'anticoïncidences. Nous avons trouvé qu'en introduisant du tungstène et du platine dans le compteur, on détectait un rayonnement L de ces éléments en intensité comparable avec celui obtenu avec la source d'osmium. Des études semblables faites dans la région du rayonnement K en employant un compteur à scintillation à NaI entouré par du tungstène et de l'osmium ne montrait pas de rayonnement K du rhénium. On en conclut que la période de capture électronique de ^{187}Os est plus grande que 10^{15} ans.

Un rapport plus détaillé sur ce travail paraîtra par ailleurs.

Intervention de M. Deutsch. — 1. Étant donné le grand spin de ^{176}Lu , pensez-vous que le taux de capture K de 3 pour 100 que vous avez trouvé soit une limite supérieure ?

2. La valeur généralement admise pour la probabilité de capture K de ^{22}Na est d'environ 10 pour 100. Votre faible valeur, 2 pour 100 seulement, pourrait-elle être due à une absorption dans la source ?

3. Étant donné que le rayonnement γ postérieur à la décroissance de ^{22}Na est probablement E_2 , votre valeur du coefficient de conversion de paires peut-il être affecté par des paires créées, en contrepartie, par les rayons γ de la source ?

Réponse de M. Curran. — 1. La probabilité de bifurcation de 3 pour 100 vers la capture K semble bien indiquée par la position et la forme du groupe L sur les courbes, mais il est vrai que nos données n'interdisent pas la possibilité d'une absence complète de capture K .

2. Pour ^{22}Na , la principale incertitude vient de ce que la meilleure source solide possible dans la région de 800 eV est en quantité mal connue. C'était probablement le cas de la source de NaCl, d'environ 1 $\mu\text{g}/\text{cm}^2$ déposé par évaporation sur un support de nylon de 10 $\mu\text{g}/\text{cm}^2$. Nous espérons travailler avec des sources de ^{22}A fixées par bombardement sur des films et vérifier leur comportement pour 2,5 et 0,25 keV environ.

Intervention de M. Rose. — Avez-vous calculé le rapport de bifurcation prévu pour une transition $\Delta J = 4$, « non » ?

Réponse de M. Curran. — Il n'est pas impossible que la paire de conversion interne des rayons γ

de 1,28 MeV dans ^{22}Na correspond à E_2 plutôt qu'à M_1' . Le coefficient est difficile à mesurer s'il est de l'ordre de 10^{-4} , mais actuellement sa valeur suggère M_1 plutôt que E_2 . Le point intéressant est que cette conversion se signale par une discontinuité au cours de la mesure du spectre β « complet ».

Rapport sur un travail récent de Moljk et Curran. — Les recherches de Moljk et Curran sur le spectre β de ^{14}C et ^{35}S ont été entreprises pour étudier certaines différences, dans le spectre de ^{14}C , entre l'expérience et certaines formes théoriques permises (voir Mize et Zaffarano).

Une étude des déformations apportées au spectre des sources utilisées, par les conditions des expériences, a montré que l'intégration graphique permettait d'estimer exactement la distortion due à la sortie et à l'entrée dans l'espace de comptage. Cette correction des valeurs observées était plus grande dans la région de basse énergie (inférieure, par exemple, à 10 keV) où elle atteignait environ 5 pour 100.

L'isotope ^{35}S était introduit dans le compteur proportionnel, placé dans un champ axial de 4 500 gauss, sous forme de vapeurs de CS_2 .

Le spectre expérimental était analysé avec un sélecteur d'amplitude à 100 canaux du type Hutchinson-Scarrot, fondé sur le principe de l'accumulation par un circuit à transmission différée.

Le spectre théorique permis de ^{35}S était modifié pour tenir compte de la limitation par l'appareil discutée plus haut. Ce spectre corrigé a été comparé avec les données d'observation : l'accord entre les deux a été constaté, à 1 pour 100 près, depuis 3 keV jusqu'à l'énergie limite de 165 keV. ^{14}C était introduit dans le compteur sous forme de CH_4 . La forme du spectre calculée en supposant la transition

permise a été comparée avec les résultats expérimentaux corrigés : l'accord était excellent au-dessus de 2 keV, et jusqu'à l'extrémité. Les corrections des données d'observation avaient été déduites dans ce cas de la comparaison entre les valeurs expérimentales et théoriques pour ^{35}S .

Cette méthode mixte, dans laquelle ^{30}S est pris comme noyau de référence, est plus directe que celle utilisée pour ^{35}S lui-même, et cet emploi de substances étalons peut être largement utilisé.

Le travail décrit ci-dessus a donné des résultats importants dans l'étude du spectre β^+ de ^{22}Na . Dans ce cas, le spectre observé par Moljk était voisin du spectre théorique, jusqu'aux très basses énergies (~ 1 keV). La recherche des électrons Auger émis pendant le processus de capture K semblait indiquer qu'ils formaient peut-être 4 pour 100 des désintégrations. Il faut poursuivre le travail sur l'effet de l'épaisseur de la source sur l'émission des électrons d'énergie voisine de 1 keV. Tout permet d'espérer que l'étude directe pour mettre en évidence la capture K dans la désintégration de ^{40}K , dont on peut obtenir des échantillons enrichis en isotope actif, sera couronnée de succès.

L'étude des sources de faible intensité a montré que le bruit de fond est du à l'interaction entre les quanta γ et la cathode solide. Ces quanta γ pénètrent à travers la paroi de Geiger en anticoincidence. Un nouveau tube proportionnel dont la cathode sera formée de plusieurs fils fins permettra de tourner à peu près complètement cette difficulté. Les particules qui traverseront la paroi environnante seront écartées de la région sensible par l'application d'un champ magnétique défecteur. Avec un tel compteur ultrasensible et des sources gazeuses, on doit pouvoir explorer avec un meilleur succès la région des très basses énergies.

BIBLIOGRAPHIE.

- | | |
|---|---|
| [1] CURRAN S. C., DIXON D. et WILSON H. W. — <i>Phil. Mag.</i> , 1951, 43 , 82. | [12] KLINKENBERG P. F. A. — <i>Physica</i> , 1951, 17 , 715. |
| [2] LIBBY W. F. — <i>Phys. Rev.</i> , 1939, 56 , 21. | [13] TOMOZAWA V., UMEZAWA M. et NAKAMURA S. — <i>Phys. Rev.</i> , 1952, 86 , 791. |
| [3] FLAMMERSFELD A. et MATTAUCH J. — <i>Naturwiss.</i> , 1943, 31 , 66. | [14] SHERRER P. et ZINGG E. — <i>Helv. Phys. Acta</i> , 1939, 12 , 283. |
| [4] FLAMMERSFELD A. — <i>Z. Naturf.</i> , 1947, 2 a , 86. | [15] LOUGHER E. T. et ROWLANDS S. — <i>Nature</i> , 1944, 153 , 374. |
| [5] GOLDBABER M. et HILL R. D. — <i>Rev. Mod. Physics</i> , 1952, 24 , 179. | [16] SELIGER H. H. et BRADT H. L. — <i>Phys. Rev.</i> , 1948, 73 , 1408. |
| [6] GOLDBABER M. — Non publié. | [17] NALDRETT S. N. et LIBBY W. F. — <i>Phys. Rev.</i> , 1948, 73 , 487. |
| [7] ARNOLD J. R. et SUGIHARA T. — <i>Phys. Rev.</i> , 1953, 90 , 332. | [18] SUGERMAN N. — <i>Phys. Rev.</i> , 1948, 73 , 1410. |
| [8] MCGOWAN F. K. — <i>Phys. Rev.</i> , 1952, 87 , 542. | [19] GAUTHÉ B. et BLUM J. M. — <i>C. R. Acad. Sc.</i> , 1953, 236 , 1255. |
| [9] MIHELICH J. W. et CHURCH E. L. — <i>Phys. Rev.</i> , 1952, 87 , 691. | [20] CURRAN S. C. — Proc. Internat. Conf. on β and γ Radioactivity, Amsterdam, 1952. |
| [10] ROSE M. E., GERTZEL G. H. et SPINRAD B. I. — <i>Phys. Rev.</i> , 1951, 83 , 79. | |
| [11] SCHULER H. et GOLLNOW H. — <i>Z. Physik</i> , 1939, 113 , 1. | |