

Diffusion par fluorescence nucléaire du rayonnement γ de 75Se périodes des niveaux de 265 et 402 keV de 75As

H. Langevin-Joliot, M. Langevin

► To cite this version:

H. Langevin-Joliot, M. Langevin. Diffusion par fluorescence nucléaire du rayonnement γ de 75Se périodes des niveaux de 265 et 402 keV de 75As. Journal de Physique et le Radium, 1958, 19 (10), pp.765-775. 10.1051/jphysrad:019580019010076500 . jpa-00235926

HAL Id: jpa-00235926 https://hal.science/jpa-00235926

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.

DIFFUSION PAR FLUORESCENCE NUCLÉAIRE DU RAYONNEMENT Y DE 75Se PÉRIODES DES NIVEAUX DE 265 ET 402 keV DE 75As

Par H. LANGEVIN-JOLIOT et M. LANGEVIN,

Laboratoire de Physique Nucléaire du Collège de France à Orsay.

Résumé. — Aucun effet de diffusion résonnante n'a pu être observé dans le cas de la transition directe de 402 keV; par contre, le rayonnement de fluorescence nucléaire du niveau de 265 keV a tété mis en évidence. Les périodes des niveaux de 402 keV et 265 keV ont été ainsi fixées respec-tivement a : $\tau_1 > 1,4 \ 10^{-11}$ sec et $\tau_2 = (2,3 \pm 0,3) \ 10^{-11}$ sec. L'étude systématique de l'intensité du rayonnement diffusé de 265 keV en fonction de la pression

de la source gazeuse permet d'estimer à $(1,5 \pm 0,4)$ 10⁻⁹ sec la période du niveau de 402 keV. Les facteurs d'embranchements de capture électronique vers les différents niveaux de ⁷⁵As ont été réexaminés. Un faible embranchement supplémentaire (0,04 %) a été observé vers le niveau de 575 keV.

Abstract. — Nuclear resonance fluorescence from the 265 keV excited state of ⁷⁵As leads to a value of $(2,3 \pm 0,3) \ 10^{-11}$ sec for the half life of this level. No resonance fluorescence from the 402 keV level was observed and the half life of this level is therefore greater than 1,4 10^{-11} sec. The variation of nuclear resonance intensity from the 265 keV level with the pressure of the gaseous source gives the value $(1,5 \pm 0,4) \ 10^{-9}$ sec for the half life of the 402 keV level.

Electron capture branching ratios have been reexamined and a weak (0,04 %) new transition leads to the 575 keV level of ⁷⁵As.

A. Introduction. — L'étude de la diffusion des photons par fluorescence nucléaire permet de déterminer les périodes des niveaux excités ; toutefois, les sections efficaces correspondant à ce processus sont, sauf dans les conditions requises pour la résonance, très inférieures à celles de la diffusion élastique Rayleigh.

Sauf dans le cas où la période du niveau considéré est extrêmement brève ($< 10^{-14}$ sec) la largeur Γ est petite devant l'énergie cédée au noyau de recul lors de l'émission ou de l'absorption (quelques eV) : en conséquence la diffusion par fluorescence reste inobservable même si elle a lieu sur des noyaux de même nature que les noyaux émetteurs. Dans certaines conditions, il est cependant possible d'utiliser le changement d'énergie du rayonnement γ par effet Döppler pour retrouver la résonance ou s'en approcher.

On y est parvenu notamment en donnant à la source une vitesse mécanique élevée [1], ou en la portant à haute température [2]. Les conditions expérimentales nécessaires limitent l'usage de ces méthodes au cas de niveaux de faible énergie existant dans des noyaux lourds.

L'élargissement Döppler dû à la vitesse de recul du noyau à la suite d'une émission β ou γ aboutissant au niveau considéré, doit également permettre, s'il est suffisant, l'observation de la diffusion résonnante. Malheureusement, dans les sources solides, le noyau de recul se ralentit par collision en un temps de l'ordre de 10-13 s, ce qui explique l'échec des tentatives faites en ce sens par différents auteurs [3]. Le premier résultat positif a été obtenu par Ilakowac avec une source liquide [4]. L'utilisation de sources gazeuses, enfin, dans lesquelles les noyaux se ralentissent en des temps beaucoup plus longs, a permis à Metzger d'observer pour la première fois le rayonnement de fluorescence nucléaire, sans être pratiquement gêné par les autres diffusions élastiques [5], [6].

Il nous a paru intéressant d'appliquer cette méthode à l'étude des niveaux de ⁷⁵As. ⁷⁵As est en effet le seul isotope stable de l'arsenic, et ⁷⁵Se, qui se désintègre par capture électronique vers le niveau de 402 keV de ⁷⁵As, peut facilement être mis sous forme d'un composé gazeux. L'énergie disponible pour la capture vers ce niveau est de 470 keV [7] donc supérieure à l'énergie des transitions γ (voir le schéma fig. 7); on pouvait espérer que le rayonnement de 402 keV en particulier, caractérisé comme E_1 ou $M_1 + E_2$ aurait une période suffisamment courte.

Nous n'avons pu observer aucun effet de diffusion résonnante dans le cas de la transition directe de 402 keV, par contre nous avons pu mettre en évidence le rayonnement diffusé sur le niveau de 265 keV, et en fixer la période. L'étude systématique de l'effet des collisions subies par ⁷⁵As*, sur l'intensité du rayonnement diffusé de 265 keV a permis d'atteindre la période du niveau de 402 keV.

Au moment où s'achevait ce travail, nous avons pris connaissance des résultats de F. Metzger sur la période du niveau de 265 keV [8].

B. Généralités : Relation entre la section efficace moyenne de diffusion par résonance et la période du niveau. — La section efficace de diffusion des photons d'énergie E_{γ} sur un niveau d'énergie E_0 est donnée par la formule (1) :

$$\sigma(E_{\gamma}) = \frac{\lambda_0^2}{8\pi} \frac{\Gamma_0^2}{(E_{\gamma} - E_R)^2 + (1/2 \ \Gamma)^2} g \qquad (1)$$

 Γ et Γ_0 sont respectivement la largeur totale et la largeur partielle pour l'émission γ vers le niveau fondamental, et :

$$E_R = E_0 + \frac{1}{2} E_0^2 / MC^2$$
 $g = \frac{2I \exp (1 - 1)}{2I f + 1}.$

Par ailleurs, l'énergie d'un rayonnement γ émis par un noyau dont la vitesse a la composante vdans cette direction est en première approximation :

$$E_{\gamma} = E_R + \frac{E_0}{C} (v - v_R) \quad \text{où} \quad v_R = \frac{E_0}{MC} \qquad (2)$$

 $\sigma(v)$ étant alors la section efficace de diffusion pour les photons émis par les noyaux de composante de vitesse v, et P(v) le nombre relatif de ces noyaux, on a :

$$\sigma_{\rm moy} = \int_{-v\,\max}^{v\,\max} P(v) \,\sigma(v) \,\mathrm{d}v$$

et comme $\sigma(v)$ est pratiquement nul, sauf dans la région très étroite de la résonance on obtient :

$$\sigma_{\rm moy} = \frac{\lambda_0^2}{4} g \frac{\Gamma_0^2}{\Gamma} \frac{C}{E_0} P(v_R) ; \qquad (3a)$$

$$t_{\gamma} = \frac{\lambda_0^2}{4} g \frac{\Gamma_0}{\Gamma} \frac{\hbar}{\sigma_{\text{moy}}} \frac{C}{E_0} P(v_R). \tag{3b}$$

En réalité, les molécules qui renferment les noyaux émetteurs ou diffuseurs ne sont pas au repos. v, v_1 , v_2 étant respectivement les composantes dans la direction du rayonnement γ , de la vitesse propre du noyau émetteur, et des vitesses d'agitation thermique on a :

$$\sigma_{\text{moy}} = \iiint_{-\infty}^{+\infty} P(v) \sqrt{\frac{M_1}{2\pi k T_1}} e^{-\frac{M_1 v_1^2}{2k T_1}} \\ \times \sqrt{\frac{M_2}{2\pi k T_2}} e^{-\frac{M_2 v_2^2}{2k T_2}} \sigma(v + v_1 - v_2) \, \mathrm{d}v \, \mathrm{d}v_1 \, \mathrm{d}v_2 \quad (4)$$

en admettant que la répartition des vitesses dans la source et dans le diffuseur est celle d'un gaz parfait.

Si la largeur propre Γ du niveau est petite devant la largeur Döppler $\Delta_1 = \frac{E_0}{C} \sqrt{2kT_1/M}$ de la source ou Δ_2 du diffuseur, la section efficace moyenne prend la forme (5) (à condition que P(v)ne soit pas nul dans la région de la résonance):

$$(\sigma_{\text{moy}})_{T} = \frac{\lambda_{0}^{2}}{4} g \frac{\Gamma_{0}^{2}}{\Gamma} \frac{C}{E_{0}}$$

$$\int_{-v \max}^{v \max} P(v) \frac{1}{\sqrt{\pi}} \frac{E_{0}}{c\sqrt{\Delta_{1}^{2} + \Delta_{2}^{2}}} e^{-\frac{E_{0}^{2}(v-vR)^{2}}{C^{2}(\Delta_{1}^{2} + \Delta_{2}^{2})}} dv.$$
(5)

— Lorsque P(v) est constant ou varie linéairement sur l'étendue de la raie Döppler, on retrouve pour σ_{moy} le même résultat que précédemment (3a). Metzger a récemment préconisé et utilisé pour la détermination de la période d'un niveau [6], [8], non pas l'étude directe de la section efficace de diffusion par résonance, mais celle du coefficient d'absorption propre de la raie de résonance. Dans ce cas, à condition que P(v) varie peu sur l'étendue de la raie Döppler, l'effet thermique de la source n'intervient pas, non plus que la probabilité $P(v_R)$. L'atténuation de la raie (corrigèe des effets Compton et photoélectrique) est en première approximation :

$$A = 1 - ndg rac{\lambda_0^2}{4} rac{1}{\sqrt{2\pi}} rac{\Gamma_0}{\Delta_2}$$
 (nd : nombre d'atomes/cm²).

EXPRESSION DE LA PROBABILITÉ $P(v_R)$. — La probabilité pour un noyau de recul dont la vitesse V est distribuée isotopiquement, d'avoir une composante de vitesse v dans une direction donnée est constante entre — V et + V. P(v) dv = dv/2V.

a) Le niveau étudié est alimenté par une capture électronique directe. La vitesse de recul du noyau, constante (aux effets de réarrangement du cortège électronique près) est $V_k = \varepsilon_k / MC$; ε_k étant l'énergie disponible pour la capture

$$E_0 \leqslant \varepsilon_k \qquad P(v_R) = 1/2V_k.$$

b) Le niveau est alimenté par une capture électronique suivie d'une émission γ ; en l'absence de corrélation angulaire $\gamma - \gamma$ et V' étant la vitesse communiquée au noyau par l'émission du rayonnement γ précédant le niveau :

$$V_k \geqslant v_R + V' \qquad P(v_R) = 1/2 V_k \tag{7}$$

$$\mathbf{et}$$

si

$$v_R - V' < V_k < v_R + V'$$

$$P(v_R) = (1/2V_k) (V_k - v_R + V') / 2V'.$$

C. Étude expérimentale de la diffusion résonnante sur les niveaux de ⁷⁵As. — PRÉPARATION DE LA SOURCE. — ⁷⁵Se (121 *J*) a été obtenu en irradiant pendant six semaines du sélénium naturel dans un canal à haut flux de la pile P₂ de Saclay (1,8 10¹² n/cm²/s); aucune activité γ parasite n'a pu être décelée dans un échantillon de ce sélénium irradié.

Le composé gazeux choisi, SeH₂, forme par capture électronique un radical *AsH₂ dont l'énergie de dissociation est supérieure à l'énergie de recul. SeH₂ a été préparé par passage d'un mélange de vapeur de sélénium actif et d'hydrogène sur de la pierre ponce chauffée à 400°. (Le rendement de cette opération est supérieur à 50 %.) Le gaz actif traverse ensuite un desséchant (P₂O₅) puis se condense dans un piège à air liquide. Le vide étant établi dans l'appareil, on transfère par recondensation une fraction donnée de SeH₂ formé dans une ampoule de verre de 7 cm³ qu'il suffit alors de sceller sous vide. 8 sources d'activités réparties entre 670 μ C et 9 μ C ont été ainsi préparées, la pression de SeH₂ étant alors de 89 cm de mercure dans la première ampoule et de 1,2 cm dans la dernière.

— DISPOSITIF EXPÉRIMENTAL. — Ce dispositif est représenté schématiquement figure 1. Le cristal





de INa — Tl de 1" 1/2 de diamètre et de 1" d'épaisseur, est protégé du rayonnement γ émis directement par la source, par un écran de plomb tronconique. Le diffuseur circulaire d'arsenic peut être rapidement remplacé par un diffuseur de sélénium de masse superficielle équivalente, ce qui permet d'éliminer tous les effets autre que la diffusion résonnante. Un écran de plomb de 1 mm d'épaisseur entourant le cristal absorbe une grande partie des photons diffusés par effet Compton, ce qui permet avec les sources fortes d'étudier le pic photoélectrique dû aux photons de fluorescence sans être gêné par l'empilement des impulsions. Le spectre d'impulsions est analysé par un sélecteur d'amplitude à 50 canaux.

Les diffuseurs sont constitués par de l'arsenic ou du sélénium en poudre remplissant un boîtier cylindrique d'aluminium de 2/10 mm d'épaisseur, assemblé à l'araldite ; les diffuseurs minces et épais sont chargés respectivement avec 280 g et $1 \ 080 \text{ g}$ d'arsenic.

- RECHERCHE DU RAYONNEMENT DIFFUSÉ PAR résonance sur le niveau de 402 keV. — Aucune différence significative n'a été constatée dans la région correspondant à un pic photoélectrique de 402 keV, entre les spectres d'impulsions obtenus avec les diffuseurs épais de As ou de Se, et ceci quelle que soit la source étudiée. Avec un facteur d'embranchement de 0,14 pour le rayonnement de 402 keV, les limites inférieures de la période partielle de la transition y directe, et de la période du niveau sont respectivement de 10⁻¹⁰ s et 1.4 10⁻¹¹s. Avec une source de 20 mC, Mertzger a fixé la limite inférieure de la période du niveau à 10⁻¹⁰ s [8]: on peut remarquer que pour améliorer cette limite par la même méthode, il serait nécessaire à la fois d'augmenter l'activité de la source et d'opérer sous faible pression ; l'influence des collisions devient en effet très importante pour des périodes de l'ordre ou supérieures à 10⁻¹⁰ s et particulièrement lorsque la vitesse de résonance est voisine de la vitesse de recul (ici $v_R/V_k = 0.87$).

--- RAYONNEMENT DIFFUSÉ PAR RÉSONANCE SUR LES NIVEAUX DE 265 ET 280 KEV. --- Nous avons représenté figure 2a les spectres d'impulsions obtenus avec les diffuseurs minces d'arsenic et de sélénium, et la source n° 4. La raie observée avec le



diffuseur d'arsenic a été comparée avec celles produites par le rayonnement direct de sources de ⁷⁵Se et de ²⁰³Hg (*fig. 2b*). On peut en conclure que 90 °/°



sinon la totalité de l'effet observé doit être attribué à la diffusion par résonance du rayonnement de 265 keV. Dans la suite, la raie de résonance d'intensité $N_{\rm R}$ sera entièrement attribuée au niveau de 265 keV.

38 °/o des photons de 280 keV [9] sont associés au niveau isomérique de 0,017 s, et ne peuvent donner lieu à aucun effet. Compte tenu du rapport d'intensité des rayonnements de 280 et 265 keV (voir schéma fig. 7) on obtient t_{γ} (280) > $4t_{\gamma}$ (265).

Les résultats obtenus avec des ampoules contenant une quantité de plus en plus faible de SeH_2 font apparaître une augmentation très importante du rapport du nombre de photons diffusés par résonance au nombre de photons émis par la source ; un maximum paraît être atteint pour les pressions les plus faibles.

Nous avons représenté figure 3 les valeurs expérimentales de N_R/N_{γ} en fonction de la pression de remplissage des ampoules. La précision statistique devient mauvaise pour les mesures 7 et 8 correspondant à 2,1 et 1,2 cm de mercure. Toutefois il est probable que la diminution observée avec la source [8] est réelle et doit être attribuée à la décomposition partielle de SeH₂, favorisée par la présence d'impuretés sur les parois ; une telle décomposition ne se produit en effet que très lentement lorsque la quantité de SeH₂ est plus élevée : ainsi la proportion de SeH₂ décomposé au bout d'un mois est inférieure à 15 $^{\circ}/_{0}$ pour la source n°6, d'après l'intensité de la raie de résonance. Par ailleurs nous nous sommes assurés que la présence sur le verre des ampoules d'un dépôt de sélénium correspondant à la destruction de 10 $^{\circ}/_{0}$ de SeH₂ initial serait facilement visible, sauf pour les ampoules 7 et surtout 8. Enfin les valeurs portées dans la figure 3 ont été obtenues avec des sources fraîchement préparées.

D. Période du niveau de 265 keV. — L'embranchement de la capture électronique directe vers le niveau de 265 keV a été trouvé inférieur à 5 % (voir l'appendice). Dans ces conditions nous avons interprété les résultats en considérant que dans tous les cas le niveau de 265 keV était atteint par l'intermédiaire de celui de 402 keV.

Nous avons utilisé pour la détermination de la section efficace de diffusion résonnante la valeur extrapolée $N_R/N_{\gamma} = (1,25 \mp 0,15) \, 10^{-6}$; la période du niveau de 265 keV alors obtenue est trop courte pour que le ralentissement des noyaux de recul par collisions sur les molécules du gaz intervienne, même dans l'ampoule (1). Par contre nous avons pu rendre compte correctement de la variation de N_R/N_{γ} observée, en tenant compte de la période du niveau de 402 keV.

Le nombre total de photons de 265 keV émis par les différentes sources a été déterminé en plaçant celles-ci à une grande distance du cristal, non protégé cette fois par le plomb. On observe la raie photoélectrique complexe des rayonnements de 280 et 265 keV, dont le rapport d'intensité a été pris égal à 0,48.

Pour chaque élément du diffuseur de hauteur dh, le nombre de photons de 265 keV reçus varie selon l'angle d'incidence, de même que la masse superficielle effective ; il faut tenir compte également de l'absorption du rayonnement incident dans le diffuseur (en moyenne 8 $^{o}/_{o}$ pour les effets photoélectriques, Compton et pour l'absorption par résonance), et de la variation du rendement photoélectrique du compteur selon la position du point d'émission des photons diffusés.

Ce dernier effet a été étudié à l'aide d'une source de 203 Hg, placée au-dessus du cristal dans une position standard, puis en différents points des parois du diffuseur ; une correction (5 %) est nécessaire pour appliquer les résultats obtenus au cas du rayonnement diffusé de 265 keV.

La position du diffuseur a été choisie de telle sorte que l'angle de diffusion moyen soit voisin de 125°. Dans ces conditions la section efficace moyenne, est pratiquement la même que l'on admette une distribution isotrope du rayonnement diffusé ou une distribution en $(1 + A_2 P_2(\cos^2 \theta))$.

Le niveau de 265 keV se désexcite dans 96 % des



cas par émission γ directe (4 °/₀ représentant la conversion interne et l'embranchement vers le niveau de 200 keV).

En admettant pour les spins du niveau fondamental et du niveau excité la valeur 3/2, on obtient pour la période partielle et pour la période du niveau :

 $t_{\gamma} = (2,4 \pm 0,3) \ 10^{-11} \ s$ $t = (2,3 \pm 0,3) \ 10^{-11} \ s$

la précision est principalement limitée par la mesure de la raie de résonance.

DISCUSSION. — Les périodes déduites par Metzger de la mesure de la section efficace de diffusion résonnante d'une part, et par la méthode d'absorption propre d'autre part, sont respectivement $2,5 \ 10^{-11}$ s et $1,65 \ 10^{-11}$ s.

La première valeur est en très bon accord avec celle que nous avons obtenue ; le désaccord avec la seconde, d'ailleurs à la limite des précisions statistiques, ne devrait pas à notre avis être attribué à un effet résiduel des collisions dans le gaz. Une valeur limite de $1.8 \ 10^{-6}$ pour N_R/N_{γ} (fig. 3) nous paraît en effet tout à fait inadmissible, même en tenant compte de la décomposition possible de SeH₂ dans les ampoules 8 et 7 ; la variation de N_R/N_{γ} avec la pression du gaz s'écarterait de plus fortement de la courbe théorique, même en ajustant au mieux la valeur de la période du niveau de 402 keV.

Les valeurs de t_{γ} déduites de la section efficace directe, font intervenir l'énergie de la transition de capture électronique, déterminée par l'étude de la réaction ⁷⁵As(p, n)⁷⁵Se [7]. La vitesse V_k de recul a été calculée à partir d'une masse de 77, les énergies de dissociation de SeH₂ ou *AsH₂ étant très supérieures à l'énergie de recul [10].

Enfin ces valeurs de t dépendent du rapport des largeurs Γ_0/Γ , mais il est exclu que le niveau de 265 keV possède un embranchement supplémentaire de plus de quelques pour cent.

On peut remarquer par contre que le coefficient d'absorption propre de la raie de résonance est proportionnel à Γ_0/Δ_2 ; la largeur Döppler Δ_2 due à l'agitation thermique dans le diffuseur est calculée pour un gaz parfait à une température effective légèrement différente de la température réelle [11].

E. Effets des collisions sur σ_{moy} (265 keV); période du niveau de 402 keV. — Le libre parcours moyen des molécules SeH₂ est $1/n_p \pi d^2$ si n_p est le nombre de molécules par cm³ à la pression P, et d le diamètre de ces molécules supposées sphériques. Avec une valeur de 2,6 10⁻⁸ cm pour ce diamètre et une vitesse moyenne de 2 10⁵ cm/s pour les noyaux de recul, il apparaît que même dans l'ampoule 1 la probabilité de choc

$$k = n_p \pi d^2 v$$

reste petite devant la constante de désintégration du niveau de 265 keV. La diminution de N_R/N_{γ} observée doit par conséquent être associée à l'existence d'une période relativement longue du niveau de 402 keV.

L'interprétation quantitative de la variation de N_R/N_{γ} en fonction de la pression (c'est-à-dire du libre parcours moyen l_p) permet d'atteindre la valeur de cette période.

Les noyaux de recul lors de la désexcitation du niveau de 402 keV sont animés non plus d'une vitesse constante V_k , mais de vitesse V_k , V_1 , V_2 , V_3 , etc... suivant que les radicaux auxquels ils appartiennent ont subi 0, 1 2, 3 chocs. Naturellement les vitesses $V_1 - V_2 - V_3$ peuvent prendre toutes les valeurs entre 0 et V_k .

Le nombre $n(V_1)$ d V_1 de noyaux de recul appartenant à des molécules ayant subi un choc et un seul le ramenant à une vitesse V, avant la désexcitation du niveau de 402 keV, dépend de la distribution des vitesses après le choc, des probabilités de collisions avant et après le choc, ainsi que de la constante de désintégration λ . $n(V_2)$ et $n(V_3)$... s'obtiennent en sommant les contributions pour les différentes vitesses possibles après le ou les chocs intermédiaires. En admettant pour la distribution 0,15 des vitesses après un choc l'expression

$$P(V') dV' = 2V' dV'/V^2$$

(collisions entre sphères rigides identiques), l_p étant le libre parcours moyen et N_i le nombre de *AsH₂ formés, on a en définitive

$$N_0 = N_i \times \lambda l_p / (V_k + \lambda l_p)$$

pour le nombre de noyaux se désexcitant avant la première collision et :

$$N(V) dV = \frac{2 N_{i}}{V_{k}} \frac{\lambda l_{p}}{\lambda l_{p} + V_{k}} \frac{V dV}{V + \lambda l_{p}} \left\{ 1 + 2L \frac{V_{k} + \lambda l_{p}}{V + \lambda l_{p}} + 2 \left| L \frac{V_{k} + \lambda l_{p}}{V + \lambda l_{p}} \right|^{2} \dots \right\}$$

les termes entre crochets se rapportant successivement à $n_1(V)$, $n_2(V)$, $n_3(V)$.

Enfin les expressions (7) dans lesquelles on remplace V_k par la vitesse réelle V permettent de calculer, compte tenu du spectre de vitesse précédant le rapport $P(v_R)/P_i(v_R)$, soit

$$(N_R / N_\gamma)_p / (N_R / N_\gamma)_i$$

 $P_i(v_R)$ et N_i^R se rapportent au cas où les collisions sont négligeables).

Nous avons représenté figure 4a, en fonction du paramètre $a = \lambda l/V_k$, les contributions respectives des molécules ayant subi 0, 1, 2, 3 chocs,

rapportées à $P_i(v_R)$, ainsi que $P(v_R)/P_i(v_R)$; la contribution du quatrième choc, estimée pour



a = 0.05 et 0.1 est négligeable au delà. Nous avons pris V'/V_k égal à 0.29 et v_R/V_k égal à 0.565 d'après les énergies de la capture, du premier et du second rayonnement γ . La figure 4b représente les mêmes



contributions, mais pour une valeur de a donnée (0,05) lorsque v varie autour de v_R .

Nous avons estimé, à partir de la dérivée seconde de P(v), la correction sur la valeur calculée de $N_R/N_{i(R)}$ due à l'effet de la température de la source et du diffuseur. Lorsque a est suffisamment petit pour que les molécules ayant subies plus d'une collision aient une contribution importante (voir par exemple figure 4b) cette correction peut ne pas être négligeable ; ainsi elle atteint $15 \, {}^{o}/_{o}$ pour a = 0.05. Nous avons tenu compte de cet effet pour la comparaison avec l'expérience. RÉSULTATS ; PÉRIODE DU NIVEAU 402 KEV. — Le paramètre a s'exprime explicitement en fonction de t, période du niveau (en seconde) et de la pression P (en cm de mercure) par la formule

$$a = 4.9 \frac{10^{-9}}{t} \times \frac{1}{P};$$

la masse spécifique de SeH₂ dans les conditions normales, la masse moléculaire et la section de collision ont été pris respectivement égales à $3,63 \text{ mg/cm}^3$, 81 g et $2,1 \ 10^{-15} \text{ cm}^2$.

Pour différentes valeurs possibles de $N_{i(R)}$ et différentes valeurs de t, on calcule ainsi une série de courbes de N_R/N_γ en fonction de P. On peut constater sur la figure 3 que la courbe tracée pour $N_{i(R)}/N_\gamma = 1,25 \ 10^{-6}$ et $t = 1,5 \ 10^{-9}$ s est en bon accord avec les résultats expérimentaux sauf pour la pression la plus faible. Pour les deux autres courbes tracées à titre d'exemple et recoupant la première pour les pressions moyennes, il y a décalage systématique de tous les points expérimentaux, dans un sens pour les pressions plus faibles, dans l'autre pour les pressions plus fortes. Des différents essais il est possible de conclure : $t = (1,5 \mp 0,4) \ 10^{-9}$ s.

DISCUSSION. — L'existence d'un embranchement de capture directe vers le niveau de 265 keV conduirait à une valeur plus élevée de la période t; cet embranchement a été trouvé inférieur à 5 °/₀.

Les différents isotopes du sélénium sont présents dans le gaz actif et les collisions ne se produisent donc pas entre des molécules de masses strictement égales ; de plus ces molécules ne sont pas absolument sphériques, bien qu'on puisse estimer que la déformation due à la présence des atomes d'hydrogène n'occupe qu'une fraction faible de leur surface. L'énergie mise en jeu lors d'une choc est insuffisante pour dissocier le radical *AsH₂; bien que ce radical libre soit beaucoup plus actif qu'une molécule normale, la probabilité de réaction lors d'un petit nombre de collisions reste négligeable.

La principale cause d'erreur systématique sus-

ceptible de modifier la valeur obtenue pour la période, provient du choix de la section de collision. Le rayon de la sphère de choc de SeH_2 ou $*AsH_2$ a été pris égal à 1,3 10^{-8} cm, soit légèrement supérieur au rayon de l'atome de sélénium $(1,17 \ 10^{-8} \text{ cm}) [12]$ et au rayon de covalence de la liaison avec l'hydrogène, 1,17 10^{-8} cm également [13].

Une limite supérieure de 2.10^{-9} s pour la période du niveau de 402 keV a été fixée par Day [14] par la méthode des coïncidences différées. Metzger a par ailleurs observé comme nous-mêmes l'effet des collisions sur la section efficace de diffusion par résonance du rayonnement de 265 keV. Toutefois, disposant de sources contenant à la fois SeH₂ et H₂, il a fixé seulement une limite inférieure pour la période (3 10⁻¹⁰ s).

F. **Conclusions.** — Les résultats que nous avons obtenus permettent de fixer d'une part la probabilité de transition du rayonnement γ de 265 keV et la limite supérieure de celle du rayonnement de 280 keV, d'autre part les probabilités des différentes transitions γ par lesquelles se désexcite le niveau de 402 keV. Nous avons pris pour les embranchements les valeurs indiquées sur le schéma de la figure 7.

Par ailleurs la période du niveau isomérique de 304 keV a été déterminée par Vegors et Axel [15] puis par Schardt [9]; les probabilités partielles E_2 pour les niveaux de 200, 280, 575 keV peuvent être déduites des valeurs de $B(E_2)$ obtenues par l'excitation coulombienne [16].

Nous avons rassemblé dans le tableau I l'ensemble des résultats ainsi que les probabilités théoriques de transition (transition d'un proton impair) [17].

Le caractère M_1 du rayonnement de 265 keV semble bien établi, notamment par la distribution angulaire des photons diffusés par résonance, et par la nouvelle valeur du coefficient de conversion interne [8]. Le rapport T_{exp}/TM_1 égal à 0,06 est près de 10 fois plus élevé que pour les autres transitions M_1 observées dans les noyaux à nombre impair de protons [18].

$E_{\mathtt{keV}}$	T_{exp} (par s)	E_1	M_1	E_2	M_{2}	E_{3}
575	$[2,8 \ 10^{10} \ (E_2)]$			3 109		
402	6,5 107	2,1 1014	$2,2 \ 10^{12}$	5,3 10 ⁸	2,2 107	
304	3,6				5 10 ⁶	180
280	$[1 \times 10^9 (E_2)] - < 810^9$			9 107		
265	$3 \ 10^{10} - [< 10^9 \ (E_2)]$		5,2 1011	6,6 107		
200	$[(E_2) \ 2 \ 10^8]$			1,6 107		
136	$2,5\ 10^8$	8 1012	8,5 1010	2,35 106	10^{5}	
121	7,7 107	$4,7 \ 10^{12}$	5 10 ¹⁰	1,3 106	5,5 10 4	
97	2,7 107		2,5 1010	1×10^{6}	4,4 10 ⁴	
23	36			1,8 105	30	2 10-6

Le rayonnement de 280 keV est caractérisé comme un mélange $M_1 + E_2$ entre des niveaux 5/2- et 3/2-, les mesures de corrélation angulaire de [19], [20], [24] donnant pour le rapport E_2/M_1 de 0,35 à 0,55 (si l'état du niveau de 402 keV est 5/2 +). La limite supérieure obtenue pour $T_{\rm exp}$ ainsi que la valeur de $T_{\rm exp}E_2$ sont compatibles avec de tels rapports.

Les caractères E_3 et M_2 respectivement ont seuls pu être attribués aux rayonnements de 304 et 23 keV issus du niveau isomérique [9].

L'attribution d'un spin 5/2 et de la parité positive au niveau de 402 keV soulève certaines difficultés.

Cette attribution s'appuie d'une part sur la valeur de log ft de la transition de capture électronique, indiquant une transition permise, d'autre part sur les expériences de corrélations angulaires [19], [20] et de corrélation associée à la polarisation [20] pour les cascades 121-280 keV et 136-265 keV. Enfin la période partielle du rayonnement de 97 keV est en accord convenable avec celle d'une transition E_2 (5/2⁺ — 9/2⁺).

Cependant les valeurs expérimentales [20] des coefficients de conversion des rayonnements de 121, 136 et 402 keV sont plus de deux fois supérieurs aux valeurs attendues pour des transitions E_1 , et les périodes sont respectivement 6.10^4 , 3.10^4 et 3.10^6 fois trop longues.

En attribuant au niveau de 402 keV une parité négative, les périodes des rayonnements de 121 et 136 keV pourraient s'interpréter par un mélange $M_1 + E_2$ encore que les rapports E_2/M_1 possibles soient difficiles à concilier avec le résultat des expériences de corrélation angulaire et les coefficients de conversion. Par contre, la période du rayonnement de 402 keV est supérieure à celle d'une transition E_2 et celle du rayonnement de 97 keV 600 fois plus courte que celle d'une transition M_2 . Or, sauf pour les transitions E_2 , les périodes expérimentales connues ne sont jamais inférieures aux périodes théoriques.

On peut se rendre compte que le choix d'un état (3/2 -) ou (7/2 +) pour le niveau de 402 keV présente des inconvénients encore plus graves. Dans ces conditions il semble bien que le niveau ait un spin 5/2 et la parité +. On peut espérer confirmer encore une telle attribution en m ϵ surant à nouveau les coefficients de conversion des rayonnements de 121, 136 et 402 keV (les mesures existantes [19] ne sont pas sûres en valeur absolue). D'après les probabilités de transition obtenues, les proportions de M_2 dans les mélanges $E_1 + M_2$ sont probablement négligeables dans le cas des rayonnements



de 121 et 136 keV, mais non dans celui de 402 keV. Une autre cause susceptible de compliquer l'interprétation des valeurs expérimentales des coefficients de conversion est l'influence sur ces coefficients E_1 des dimensions et de la structure du noyau [21].

L'existence de facteurs d'interdictions aussi élevés que 10⁷ est bien connu dans le cas de transitions E_1 observées dans les noyaux déformés. Pour des noyaux de A moyen on ne s'attend pas, d'une manière générale à l'existence de transitions E_1 associés à des niveaux de faible énergie. Aussi, dans le cas de ⁷⁵As est-il étonnant qu'un niveau 5/2⁺ se présente pour une énergie d'excitation de 402 keV. Le modèle de Nilsson [22] pourrait expliquer pour un noyau déformé possédant 33 protons une succession de niveaux 9/2⁺, $7/2^+$, $5/2^+$.

Il n'existe pas à notre connaissance d'autres cas de transitions E_1 dans les noyaux moyens, dont le caractère puisse être considéré comme suffisamment bien établi.

Appendice. — Schéma de désintégration de ⁷⁵Se. Compléments. — ⁷⁵Se a été l'objet de plusieurs études récentes [19], [23], [24], [9], [20]. Les intensités relatives des principaux rayonnements γ paraissent bien établies mais non les valeurs des coefficients de conversion interne. Ainsi, d'après les mesures préliminaires de Metzger, le coefficient de conversion K pour la transition de 265 keV serait voisin de 0,0064 au lieu de 0,016 obtenu par Schardt et Welker [19]; toutes les valeurs données par ces auteurs seraient alors environ 2,5 fois trop élevées.

Les études de corrélation angulaire pour la cascade 136-265 keV, conduisent à une anisotropie nulle ou très faible ; pour la cascade 121-280, le coefficient A_2 obtenu est — 0,36 [19], — 0,41 [24], — 0,435 [20]. Par contre, alors que Schardt [9] ne signale pas d'embranchement de capturc directe vers les niveaux de 265 et 280 keV, Van den Bold et coll. [20] évaluent ces embranchements à 24 °/o au total.

LIMITE SUPÉRIEURE DE L'EMBRANCHEMENT DE CAPTURE VERS LE NIVEAU DE 265 KEV. — Nous, avons repris l'étude de ⁷⁵Se par la technique du cristal-puits, précédemment utilisée par Lu et coll. [23] pour mettre en évidence les principales cascades, et par Schardt pour l'étude du niveau isomérique.

Nous avons représenté figure 5 le spectre d'impulsions obtenu avec une source de ⁷⁵Se placée au centre d'un cristal de INa — Tl de 1" 3/4 de diamètre et de 2" de hauteur. (Le puits est creusé dans l'axe jusqu'à une profondeur de 1" 1/4.) La raie très intense observée correspond pour une part au pic photoélectrique des photons de 402 keV, mais surtout aux superpositions dues à la désexcitation du niveau pour des rayonnements γ en coı̈ncidence. Les autres raies doivent être successivement attribuées :

— au rayonnement γ de 97 keV aboutissant au niveau isomérique de 304 keV (t = 0.018 s);

— aux rayonnements de 121 et 136 keV — cette raie complexe est observée du fait de la désexcitation des niveaux de 280 et 265 keV par conversion interne, ou par l'émission de photons qui ne sont pas détectés dans le cristal ;

— trois processus peuvent rentrer en jeu pour rendre compte de l'existence d'une raie photoélectrique au voisinage de 280 keV : a) la détection des photons de 304 keV et surtout de 280 keV provenant du niveau isomérique ; b) celle des photons de 265 et 280 keV qui se trouvent en coincidence, soit avec les électrons de conversion, soit avec des photons non absorbés correspondant aux transitions de 136 et 121 keV ; c) celle de photons de 265 ou 280 keV associés à des embranchements de capture directe.

Nous avons calculé l'efficacité du cristal et mesuré expérimentalement le rapport du pic photoélectrique à la surface totale, en fonction de l'énergie. Compte tenu du rapport d'intensité des photons de 402 keV à ceux de 265 et 280 keV, il est alors possible de déduire du spectre d'impulsion total la contribution de la transition directe. L'intensité du « pic somme » ainsi obtenue est relativement peu sensible à la valeur de l'embranchement de capture directe admis *a priori*, et à celles des coefficients de conversion ; on peut remarquer que le rapport de cette intensité à celle de la raie complexe 121-136 keV est en bon accord avec la valeur calculée dans le cas du schéma de Schardt.

La surface des raies associées aux processus (a)et (b) a été déduite, la première de celle de la raie de 97 keV, la seconde de celle du « pic somme ». En admettant les coefficients de conversion de Schardt et Welker, la somme de ces deux effets se trouve être nettement supérieure à la raie expérimentale. Avec des coefficients de l'ordre de 2,5 fois plus petits (voir plus haut) et compte tenu de l'imprécision sur la détermination des surfaces, le processus (c) pourrait représenter au maximum 40 °/o de l'effet observé. Dans ces conditions la somme des embranchements de capture vers les niveaux de 265 et 280 keV est inférieure à 5 °/o.

Par étude de la diffusion inélastique des neutrons sur l'arsenic Lind et Day [25] trouvent également que le rayonnement γ de désexcitation du niveau de 402 keV est indistinguable de celui d'une source de ⁷⁵Se.

EXISTENCE D'UN EMBRANCHEMENT DE 0,04 o/oVERS LE NIVEAU DE 575 KEV DE ⁷⁵As. — Temmer et Heydenbourg [16] ont mis en évidence par excitation coulombienne des niveaux de ⁷⁵As à 200 et 280 keV mais aussi à 573 et 811 keV.

Nous avons repris l'étude du rayonnement γ de ⁷⁵Se en interposant devant le cristal d'INa — Tl, un écran de plomb de 2 cm, absorbant les photons de faible énergie. Nous avons observé dans le spectre d'impulsions (fig. 6) une raie produite par



un rayonnement γ de faible intensité et dont l'énergie a été trouvée égale à (577 ± 2) keV. Cette valeur est en bon accord avec l'énergie du niveau observé par excitation coulombienne. De plus, le mode de préparation de la source (SeH₂ gazeux) exclut la présence d'impuretés radioactives autres que As. Pendant deux mois

aucune variation du rapport d'intensité de la raie de 577 keV à celle de 402 keV n'a été observée. Ce rapport permet d'estimer à 0,04 º/o l'embranchement de capture vers le niveau de 577 keV, en admettant qu'il n'y a pas d'autres transitions que la transition directe vers le niveau fondamental (Temmer et Heydenbourg ne signalent pas d'autres modes de désexcitation.)



On obtient pour log (ft) de la capture vers le niveau de 575 keV la valeur de 9, correspondant à une transition une fois interdite.

Le schéma de désintégration de ⁷⁵Se finalement adopté a été représenté figure 7.

Manuscrit reçu le 11 juillet 1958.

BIBLIOGRAPHIE

- MOON (P. B.), Proc. Phys. Soc., 1951, A 64, 76. MOON (B. P.) et STORRUSTE (A.), Proc. Phys. Soc., 1953, A 66, 585. MOON (P. B.) et DAVEY (W. G.), Proc. Phys. Soc., 1953, A 66, 956.
 MARTING, C. MARTING, C. MARTING, A 66, 956.
- [2] MALMFORS (K. G.), Arkiv Fysik, 1952, 6, 69. METZGER (F. R.) et TODD (W. B.), Phys. Rev., 1954, 95, 853. METZGER (F. R.), Phys. Rev., 1955, 97, 125 8.
- [3] Beta and Gamma ray spectroscopy, édité par K. Siegbahn, chapitre XVIII (II).
 [4] ILAKOVAC (K.), Proc. Phys. Soc., 1954, 67, 601.
 [5] METZGER (F. R.), Phys. Rev., 1956, 101, 286.

- [6] METZGER (F. R.), Phys. Rev., 1956, 103, 983. SWANN (C. P.) et METZGER (F. R.), Phys. Rev., 1957, 108, 982.
- [7] WAY (K.), KING (R. W.), MCGINNIS (C. L.) et LIEHOUT (R. Van), AECR TID, 5 300, 1955.
- METZGER (F. R.), *Phys. Rev.*, 1958, 110, 123. SCHARDT (A. W.), *Phys. Rev.*, 1957, 108, 398.
- [9]
- [10] Electron impact phenomena. FIELD (F. H.) et FRAN-KLIN (J. L.), Academic Press Inc Publishers, New-York, 1957
- [11] LAMB (W. E.), Phys. Rev., 1939, 55, 190.

Nº 10

- [12] BRAGG, Phil. Mag., 1920, 40, 169.
- [13] PAULING et HUGGINS, Z. Kryst., 1938, 100, 189.
- [14] DAY (R. B.), Cité par Metzger [8].
 [15] VEGORS (S. H.) et AXEL (P.), Phys. Rev., 1956, 101, 1067.
- [16] TEMMER (G. M.) et HEYDENBOURG (N. P.), Phys. Rev., 1956, 104, 967.
- [18] GRAHAM (R. L.) et BELL (R. E.), Canad. J. Physics, 1953, 31, 377. VARTAPETIAN (H.), Thèse, Annales , de Physique, à paraître.
- [19] SCHARDT (A. W.) et WELKER (J. P.), *Phys. Rev.*, 1955, **99**, 810.
- 1955, 39, 810.
 [20] VAN DEN BOLD (H. J.), VAN DE GEIGER (J.) et ENDT (P. M.), *Physica*, 1958, XXIV, 23.
 [21] NILSSON (S. G.) et RASMUSSEN (J. O.), *Nuclear Physics*, 4050 E 547
- 1958, 5, 617.
 [22] NILSSON (S. B.), Danske Nat. Fys. Medd., 1955, 29,
- nº16.
- [23] LU (D. C.), KELLY (W. H.) et WIEDENBECK (M. L.), *Phys. Rev.*, 1955, 97, 139.
 [24] KELLY (W. H.) et WIEDENBECK (M. L.), *Phys. Rev.*, 1956, 102, 1130.
 [25] LIND (D. A.) et DAY (R. B.), Cités par SCHARDT [9].