COMPÉTITION FISSION-SPALLATION DANS LES CIBLES DE THORIUM BOMBARDÉES PAR PROTONS DE 155 MeV

Par MM. LEFORT, G. SIMONOFF, et X. TARRAGO,
Laboratoire de Physique Nucléaire, Faculté des Sciences, Orsay.

Résumé. — On donne les résultats de mesures de sections efficaces de formation de plusieurs isotopes du thorium et de l'actinium, par bombardement de Th 232 par des protons de 155 MeV. Ces sections sont également calculées en admettant un processus de spallation en trois étapes : interaction directe, évaporation de neutrons de compétition fission-évaporation dans les noyaux excités. On examine les valeurs de $\frac{\Gamma_n}{\Gamma_f}$ et on compare avec les résultats expérimentaux.

Abstract. — Cross-section measurements were made on the formation of several isotopes of thorium, and actinium, by bombarding Th 232 by 155 MeV protons. These cross-sections were also calculated following spallation processes in three steps : direct interaction, neutron evaporation, and fission-evaporation competition in excited nuclides. $\frac{\Gamma_n}{\Gamma_f}$ values are examined and calculations are compared with experimental results.

1. Introduction. — Le bombardement de noyaux par des particules de grande énergie conduit à un nombre important de réactions nucléaires les plus variées. L'émission de fragments de nature diverse qui en résulte peut être analysée, soit par l'observation directe de ces fragments, soit par l'étude des sections efficaces des différents nuclides résiduels par voie radio-chimique. On sait que le mécanisme des réactions se divise grossièrement en deux stades précisés par Serber [1]. Le premier correspond à des interactions directes en cascades de la particule incidente avec les nucléons individuels, le second, beaucoup plus lent, étant la désexcitation du noyau résiduel disposant d'une certaine énergie. Pour les noyaux lourds, la fission entre en compétition avec l'évaporation de nucléons au cours de ce deuxième stade. Cette compétition est fonction des rapports Γ_n/Γ_f des probabilités d'émission de nucléon (ou plus simplement de neutrons) et de fission pour les produits successifs de l'évaporation des neutrons.

La section efficace d'un isotope de Z inférieur d'une unité à celui du noyau composé et de A inférieur de x unités peut correspondre, en négligeant l'évaporation de protons, à une interaction directe (p, p) suivie de l'évaporation de $(x - 1)$ neutrons, ou encore à l'interaction (p, pn) suivie de $(x - 2)$ neutrons évaporés, etc... En désignant par des majuscules les nucléons émis par interaction directe et par des minuscules les nucléons évaporés, on peut écrire par exemple

$$\sigma(\text{Th } 231) = \sigma(p, p, 1n) + \sigma(p, pn) + \sigma(p, D)$$

$$\sigma(\text{Ac } 229) = \sigma(p, 2p, 2n) + \sigma(p, 2pn, n) + \sigma(p, \alpha).$$

2. Irradiation, séparation des radioéléments formés et mesures. — On a irradié au synchrocyclo-

tron d'Orsay des feuilles de thorium d'épaisseur 0,03 mm. Le flux des protons était mesuré grâce au sodium 24 produit par réaction (p, 3pn) dans des moniteurs d'aluminium [2]. Nous n'insisterons pas sur les détails de séparation chimique des éléments formés, thorium et actinium, ni sur la détermination des rendements de ces opérations. Pour un élément donné, trois techniques de comptage ont été mises en œuvre conjointement pour la mesure de la section efficace de chaque isotope : 1) Étude de décroissance alpha et des filiations et discriminations des énergies des rayons α . Pour cela on a utilisé des chambres 2π à collection électronique et un sélecteur d'amplitude multicanaux.

2) Étude de la décroissance par capture électronique par mesure de l'intensité du rayonnement K de fluorescence.

L'étalonnage du compteur à scintillation a été fait avec une préparation d'astate 210 mesurée en captures et ensuite en désintégrations α du polonium 210 produit par filiation.

3) Décroissance β .

Les détails des dispositifs expérimentaux nécessaires à un développement trop important et seront décrits par ailleurs [3].

3. Résultats. — On trouve rassemblées dans le tableau I les sections efficaces de formation d'isotopes du thorium et de l'actinium comparées aux valeurs obtenues par Lindner et Osborne [4] avec des protons de 340 MeV.

On peut remarquer que la valeur de 40 indiquée pour la formation de thorium 231 contient en réalité la section efficace de la réaction de « pick-up » (p, D) qu'on peut estimer à environ 35 mb, de sorte que la section efficace des deux réactions (p, p, n) et (p, pn) est d'environ 5 à 6 mb.

TABLEAU I

RÉACTIONS	PRODUIT	x	DÉSINTÉGRATION	σ EN MBARNS		
				L. S. T.	L. O. (4)	
(p, p, xn)	^{90}Th	231	1	β^-	40 $\pm$ 2	68 (Ac231) $\pm$ 3
+ (p, pn, ($x - 1$)n)		229	3	α	18 $\pm$ 4	
+ (p, p2n, ($x - 2$)n)		228	4	α	18 $\pm$ 5	30 $\pm$ 3
		227	5	α	15 $\pm$ 2	22 $\pm$ 5
+ (p, D($x - 1$)n)		226	6	α	12 $\pm$ 1	17 $\pm$ 0.3
+ (p, T($x - 2$)n)		225	7	α	8 $\pm$ 1	
(p, 2p, xn)	^{89}Ac	228	3	β^- -fil. α		28 $\pm$ 0.1
		227	4	β^-		14 $\pm$ 0.8
(p, 2pn, ($x - 1$)n)		226	5	β^- -fil. α	9 $\pm$ 1	10 $\pm$ 1,6
(p, 2p2n, ($x - 2$)n)		225	6	α	7,5 $\pm$ 0,5	14 $\pm$ 3
		224	7	α 10 % EC 90 %	6 $\pm$ 1	12,5 $\pm$ 0.9
(p, ^4He , ($x - 2$)n)						
.....						

4. **Interprétation.** — Nous avons tenté de calculer les sections efficaces de formation des isotopes de thorium et actinium en décrivant les réactions par trois étapes.

a) *Interaction directe.* — Au cours du premier stade, les protons incidents cèdent leur énergie aux nucléons selon une distribution de hasard. Les cascades de chocs conduisent à l'émission de neutrons et de protons « immédiats ». Par des calculs dits de « Montecarlo », Métropolis et al. [5] ont obtenu les probabilités d'émission de 1, 2, i protons

l'extrême bienveillance de nous communiquer les résultats de ces calculs pour des protons de 150 MeV sur l'uranium 238 et pour chaque type de réaction (p, n) (p, p) (p, pn) etc..., de sorte que nous avons pu construire les fonctions de distribution des énergies d'excitation pour chaque réaction, comme par exemple les fonctions de la figure 1 relative aux (p, p) (p, pn) et (p, p2n) (fig. 1).

b) *Évaporation à partir des nuclides d'énergie d'excitation E^* .* — On peut calculer le nombre moyen de neutrons évaporés au cours de la désexcitation d'un noyau d'énergie E_j selon la méthode de Jackson [7] en négligeant l'évaporation de protons.

Si $R(E_j, x)$ est la probabilité qu'un noyau d'énergie d'excitation E_j évapore x neutrons, la section efficace de la réaction sera $\sigma_j = R(E_j, x) \sigma_c$ où σ_c est la section inélastique totale. Nous avons pris 1,6 barns pour le thorium d'après les mesures de Kirschbaum [8]. Cette valeur est un peu plus faible que celle de 1,8 calculée par Métropolis et al. [5]. On trouve dans un article de Vandenbosch et al. [9] la formule de récurrence permettant d'accéder à la probabilité $R(E_j, x)$ et nous reprenons ici le calcul.

Le spectre généralement admis d'énergie des neutrons correspondant à $\int_0^{E_{\max}} C E e^{-E/\tau} dE = 1$ d'où la constante $C = \frac{1}{\int_0^{E_{\max}} E e^{-E/\tau} dE}$, τ étant

la température nucléaire et $E_{\max}$ l'énergie maximum possible pour les neutrons émis. Lorsque $E_{\max}$ est beaucoup plus grand que τ , C est approximativement égal à $1/\tau^2$ et le spectre s'écrit :

$$dR = \frac{E}{\tau^2} e^{-E/\tau} dE.$$

FIG. 1. — Distribution des énergies d'excitation pour les noyaux formés après interactions directes (p, p) (p, pn) et (p, p2n). En ordonnées : pourcentage du nombre total d'interactions noyaux cible-protons de 150 KeV. En abscisse : énergie d'excitation (intervalles de 10 MeV).

et 1, 2, i neutrons. À la base de ces calculs effectués sur des machines, certaines hypothèses sont faites sur les dimensions du noyau, les énergies de liaison des nucléons. La distribution des énergies d'excitation résiduelles et l'énergie d'excitation moyenne $\bar{E}$ est ensuite obtenue. G. Friedlander [6] a eu

La probabilité que deux premiers neutrons aient les énergies cinétiques E_1 et E_2 est

$$dR^2 = \frac{E_1}{\tau^2} e^{-E_1/\tau} \frac{E_2}{\tau^2} e^{-E_2/\tau} dE_1 dE_2.$$

Un troisième neutron sera émis si l'énergie d'excitation restante dépasse B_3 , énergie de liaison du troisième neutron. La probabilité d'émission d'au moins trois neutrons sera

$$R_3 = \int_0^{E-B_1-B_2-B_3} \int_0^{E-B_1-B_2-B_3-E_1} \frac{E_1}{\tau^2} e^{-E_1/\tau} \frac{E_2}{\tau^2} e^{-E_2/\tau} dE_1 dE_2.$$

En intégrant sur toutes les énergies cinétiques possibles telles que l'énergie d'excitation subsistant après l'évaporation de deux neutrons soit supérieure à l'énergie de liaison de 3^e neutron, on trouve :

$$R_3 = 1 - e^{-\frac{(E-B_1-B_2-B_3)}{\tau}} \sum_{n=0}^3 \frac{(E-B_1-B_2-B_3)^n}{n!} \frac{\tau}{\tau} = I(\Delta_3, 3)$$

où $\Delta_3 = \frac{E-B_1-B_2-B_3}{\tau}$ et $I(\Delta_3, 3)$ est une fonction gamma incomplète du type

$$I(z, n) = \frac{1}{n!} \int_0^z y^n e^{-y} dy.$$

La probabilité d'évaporation d'exactly trois neutrons est égale à la différence entre la probabilité d'émettre au moins 4 neutrons et celle d'en émettre au moins 3, $R_4 - R_3 = I(\Delta_4, 4) - I(\Delta_3, 3)$, ou plus généralement

$$R(E, x) = I(\Delta_x, 2x-3) - I(\Delta_{x+1}, 2x-1).$$

Le choix de la température nucléaire τ est délicat. On a pris après diverses essais la formule proposée par Lang et Le Couteur [10] appliquée au Thorium $\tau = 0,2 \sqrt{E}$. On obtient ainsi comme l'a fait Jackson les énergies moyennes qui correspondent à l'évaporation de 0,1, i. neutrons. Comme la distribution des probabilités autour de l'énergie moyenne E_i est assez aiguë, on peut pratiquement faire correspondre à une bande d'énergie $\bar{E}_i \pm \Delta E_i$, un nombre moyen de neutrons émis $\bar{N}_i$.

En faisant correspondre la probabilité d'obtenir une énergie d'excitation dans la bande $E_i \pm \Delta E_i$ (probabilité donnée en a) au nombre moyen de neutrons évaporés pour cette bande d'énergie, on obtient la probabilité de la réaction considérée. On fait le même calcul pour toutes les distributions d'énergie d'excitation susceptibles d'être produites de façon non négligeable par diverses interactions directes (par exemple p, p ; p, pn ; p, p 2n).

c). *Compétition — fission — évaporation.* — Pour étendre le modèle de Jackson aux noyaux

fissionnables, Vandenbosch et Seaborg [9-11] ont introduit deux modifications ; la plus importante consiste à incorporer la compétition fission à chaque étape de l'évaporation, ce qui est justifié au moins pour les noyaux à faible seuil de fission par divers travaux dont ceux de Pate [12] selon lesquels Γ_n/Γ_f dépend très peu de l'énergie d'excitation et que la fission a lieu selon un processus peu modifié d'égale déplacement des charges (E. C. D.). La seconde modification tient compte de ce que le seuil de fission est inférieur à l'énergie de liaison des neutrons dans de nombreux noyaux lourds, et que les noyaux résiduels d'énergie d'excitation supérieure au seuil de fission et insuffisante pour l'évaporation se désexciteront par fission. Divers seuils de fission sont indiqués par la formule semi-empirique de Swiateki [13] et sont valables au moins jusqu'au californium.

$R(E, x)$ devient $R'(E, x)$, pour tenir compte de cette fission possible du noyau résiduel.

Par exemple Δ_3 devient

$$\frac{E-B_1-B_2-B_3-B_f}{\tau}$$

La section efficace d'une réaction particulière à partir d'un noyau fissionnable est

$$\sigma(A, xn) = \left(\frac{\bar{\Gamma}_n}{\bar{\Gamma}_n + \bar{\Gamma}_f} \right)^x R'(E, x) \sigma_c \frac{\bar{\Gamma}_n}{\bar{\Gamma}_n + \bar{\Gamma}_f}$$

étant le rapport d'embranchement moyen.

Diverses données existent qui permettent des estimations raisonnables de ces rapports d'embranchement et nous allons en analyser quelques-unes. Elles sont de trois types : section efficace de fission par neutrons rapides [14], section efficace de réaction (γ, n) et de photofission et enfin de réaction (α, xn) sur des noyaux fissionnables.

Les résultats sont rassemblés dans le tableau suivant emprunté à Vandenbosch et Huizenga [15] ; on trouve aussi les rapports Γ_n/Γ_f mesurés d'après les rendements de photofission par Huizenga [16] et par Lazareva et al. [17].

TABLEAU II

NOYAU CIBLE	σ_f EN BARNS	NOYAU FISSIONNANT	Γ_n/Γ_f	PHOTO- FISSION Γ_n/Γ_f
^{226}Ra	0,0003	^{227}Ra	10^4	—
^{230}Th	—	^{233}Th	24,3	4,9
^{232}Th	0,13	^{232}Pa	1,85	12
^{231}Pa	0,16	^{234}U	0,85	1,0
^{233}U	1,78	^{235}U	1,17	1,6
^{234}U	1,52	^{236}U	1,64	1,6
^{235}U	1,25	^{237}U	3,01	2,1
^{236}U	0,82	^{239}U	5,13	4,0
^{238}U	0,54	^{241}Pu	0,74	—
^{240}Pu	1,90			

Ce sont surtout Vandenbosch, Seaborg et leurs collaborateurs [9-11] qui ont réussi à préciser les

rapports Γ_n/Γ_f de nombreux nuclides en bombardant par les hélions ou les deutons des cibles de thorium, uranium et plutonium.

Il semble assez délicat de savoir d'après les résultats expérimentaux publiés jusqu'ici, comment Γ_n/Γ_f dépend de l'énergie d'excitation. On peut cependant avancer que si Γ_n/Γ_f varie, c'est faiblement.

Par exemple (Γ_n/Γ_f) moyen obtenu d'après les réactions $(\alpha, 4n)$ sur ^{232}Th correspond à une compétition sur un noyau moyen fissionnant $^{234.5}\text{U}$ (à mi-chemin de l'évaporation). D'après les fissions par neutrons de 3 MeV on a obtenu Γ_n/Γ_f pour ^{233}U et ^{234}U et on peut extrapoler une valeur pour $^{234.5}\text{U}$ à faible énergie. Le tableau suivant correspond à quelques-unes de ces valeurs empruntées à Vandenbosch et al. [9].

TABLEAU III

		$\frac{\Gamma_n}{\Gamma_f}$	ÉNERGIE D'EXCITAT. INITIALE	ÉNERGIE D'EXCITAT. MOYENNE
$^{232}\text{Th} + p$	^{232}Pa	2,2	27 MeV	18
$^{231}\text{Pa} + n$	^{232}Pa	1,85	9	9
$^{232}\text{Th} + \alpha$	$^{234.5}\text{U}$	0,92	36	22,5
$^{233}\text{U}, ^{234}\text{U} + n$	$^{234.5}\text{U}$	1,0	9	9
$^{238}\text{U} + \alpha$	$^{240.5}\text{Pu}$	0,61	36	22,6
$^{239}\text{Pu}, ^{240}\text{Pu} + n$	$^{240.5}\text{Pu}$	0,72	9	9

d) *Dépendance de A pour Γ_n/Γ_f et application aux résultats sur le thorium.* — Pour utiliser les valeurs de Γ_n/Γ_f dont nous avons besoin, nous avons cherché à les extrapoler à partir de valeurs mesurées sur des nuclides connus. Vandenbosch et Huizenga [15] ont porté pour divers Z ces rapports Γ_n/Γ_f en fonction de A entre 228 et 256 et obtenu des droites à peu près parallèles pour Z allant de 90 à 100. Nous avons prolongé ces droites vers les A et Z plus faibles (fig. 2). Pour un isotope on a calculé Γ_n/Γ_f d'après la formule de Fujimoto et Yamaguchi [18] $\frac{\Gamma_n}{\Gamma_f} = \frac{\tau A^{1/3}}{10} e^{(B_f - B_n)/\tau}$ où $B_f - B_n$

est la différence entre le seuil de fission et l'énergie de liaison des neutrons ; elle est obtenue d'après l'équation de Swiatecki. On peut se rendre compte ainsi que l'importance de la fission est déjà très faible pour les isotopes de l'actinium de A supérieur à 224 ($\frac{\Gamma_n}{\Gamma_f} = 12$ pour ^{224}Ac) et négligeable pour les radium.

A partir de ces valeurs extraites de la figure 2 on peut calculer la section efficace d'un isotope donné correspondant à i neutrons évaporés :

$$\sigma(n, = i) = \left(\frac{\Gamma_{n_1}}{\Gamma_{n_1} + \Gamma_{f_1}} \cdot \frac{\Gamma_{n_2}}{\Gamma_{n_2} + \Gamma_{f_2}} \cdots \frac{\Gamma_{n_i}}{\Gamma_{n_i} + \Gamma_{f_i}} \right) \sigma_c P'(E, i)$$

où $P'(E, i)$ est la probabilité d'évaporation de i

FIG. 2. — Estimation du rapport des probabilités de fission et d'évaporation de neutrons en fonction de A. D'après Vandenbosch et Huizenga [14].

FIG. 3. — Sections efficaces de divers isotopes du thorium et de l'actinium en fonction du nombre de neutrons émis.

- A, courbe calculée sans fission pour Th.
- B, courbe calculée sans fission pour Pa.
- C, courbe calculée avec fission pour Th.
- D, courbe calculée avec fission pour Ac.

neutrons, compte tenu de B_f et de l'énergie d'excitation consécutive à l'interaction directe. On obtient ainsi les courbes de la figure 3 pour lesquelles on a porté en fonction du nombre de neutrons émis (par interaction directe ou par évapo-

ration) les sections efficaces des isotopes ainsi produits du thorium et de l'actinium. On a également figuré pour le protactinium (réactions p, xn) et pour le thorium les courbes qui seraient obtenues théoriquement si la fission n'intervenait pas. Rappelons que ces courbes ont été tracées en supposant $r_0 = 1,35$, $\sigma_c = 1,6$ et en prenant

$$\tau = 0,2 \sqrt{E}.$$

On peut voir que l'accord avec les résultats expérimentaux sans être parfait est assez satisfaisant, à condition de tenir compte pour Th 231 du phénomène de pick-up. On remarquera pourtant que les points calculés sont systématiquement au-dessus des valeurs expérimentales. Il est possible que la fission n'intervienne pas également à tous les stades de l'évaporation et qu'elle soit plus importante en fin de chaîne comme le proposent Dostrovsky et al. [19].

Nous avons par ailleurs négligé les différences

de fission lorsqu'on part de noyaux à A pairs et A impairs, ainsi que l'influence de la couche à 126 neutrons.

Lorsque les nuclides formés ont des numéros atomiques plus éloignés du thorium ($Z < 88$, francium, astate et polonium) nous trouvons encore des sections efficaces relativement élevées dont l'explication semble plus difficile. Un travail plus complet est prévu dans ce domaine [3].

Il nous est très agréable d'exprimer ici notre dette au P^r Friedlander qui nous a aimablement communiqué les résultats détaillés de calculs Montecarlo sur les cascades d'interaction directe, et au D^r R. Vandenbosch dont les conseils nous ont été très utiles pour la compétition fission spallation.

Nous remercions l'équipe de conduite du synchrocyclotron d'Orsay pour les nombreuses irradiations qu'elle a effectuées pour notre travail.

Nous sommes très reconnaissants à M^{me} Brun pour son aide efficace dans les mesures de décroissance.

BIBLIOGRAPHIE

- [1] SERBER (R.), *Phys. Rev.*, 1947, **72**, 1114.
- [2] HICKS (H. G.), STEVENSON (P. C.) et NERVICK (W. E.), *Phys. Rev.*, 1956, **102**, 1390.
- [3] SIMONOFF (G.), *Thèse en préparation*.
- [4] LINDNER (M.) et OSBORNE (R. N.), *Phys. Rev.*, 1956, **103**, 378.
- [5] METROPOLIS (N.), BIVINS (R.), STORM (M.), TURKEVICH (A.), MILLER (J. M.) et FRIEDLANDER (G.), *Phys. Rev.*, 1958, **110**, 185.
- [6] FRIEDLANDER (G.), *Communication privée*, 1959.
- [7] JACKSON (J. D.), *Canad. J. Phys.*, 1956, **34**, 767..
- [8] JACKSON (J. D.), *Canad. J. Phys.*, 1957, **35**, 21.
- [9] KIRSCHBAUM, d'après MILBURN (G. P.), BIRNBAUM (W.), GRANDALL (W. E.) et SHECTER (L.), *Phys. Rev.*, 1954, **95**, 1268.
- [10] VANDENBOSCH (R.), THOMAS (T. D.), VANDENBOSCH (S. E.), GLASS (R. A.) et SEABORD (G. T.), *Phys. Rev.*, 1958, **111**, 1358.
- [11] LANG (J. M. B.) et LE COUTEUR (K. J.), *Proc. Phys. Soc. (A)*, 1954, **67**, 586.
- [12] VANDENBOSCH (R.) et SEABORD (G. T.), *Phys. Rev.*, 1958, **110**, 507. GLASS (R. A.), CARR (R. J.), COBLE (J. W.) et SEABORG (G. T.), *Phys. Rev.*, 1956, **104**, 434.
- [13] PATE (B. D.), *Can. J. Chem.*, 1958, **36**, 1707.
- [14] SWIATECKI (W. J.), *Phys. Rev.*, 1956, **101**, 97.
- [15] HENKEL (R. L.), *L. A.*, 1957, 2122.
- [16] VANDENBOSCH (R.) et HUIZENGA (J. R.), *II Conférence de l'O. N. U.*, Genève P/688, 1958, **15**, 284.
- [17] HUIZENGA (J. R.), *Phys. Rev.*, 1958, **107**, 484.
- [18] LAZAREVA (L. E.), GAVRILOV (B. I.), VALNEV (B. N.), ZATSEPINA (G. N.) et STAVINSKY (V. S.), *Conf. Acad. Sc. U. R. S. S.*, 1956.
- [19] FUJIMOTO (Y.) et YAMAGUCHI (Y.), *Proc. of Theor. phys.*, 1950, **5**, 76.
- [20] DOSTROVSKY (I.), FRAENKEL (Z.) et RABINOVITCH (P.), *II^e Conf. de l'O. N. U.*, Genève, P/1615, 1958, **15**, 301.