Spectroscopie nucléaire par radioactivité

par C. RUHLA,
I.P.N., Université Claude-Bernard
69622 Villeurbanne.

L'inventeur de la spectroscopie nucléaire est un physicien français, Salomon ROSENBLUM, élève de Marie CURIE, qui travaillait à l'Institut du Radium. En découvrant en 1929 la structure fine du spectre α du thorium C (bismuth 212), il a montré que le noyau était un objet quantique, comme l'atome. De même que la découverte de raies d'absorption dans le spectre du soleil par FRAUNHOFER en 1814, marquait l'an I de la spectroscopie optique, la découverte de ROSENBLUM en 1929 marque l'an I de la spectroscopie nucléaire. Mais le résultat de 1929 n'aurait eu que des conséquences limitées si son champ d'action était demeuré réduit aux radioéléments naturels. La découverte de la radioactivité artificielle en 1934 par Irène et Frédéric JOLIOT-CURIE donne à la spectroscopie nucléaire une ouverture générale sur l'ensemble des noyaux, dont on mesurera l'importance si l'on songe que l'on connaît aujourd'hui 300 nucléides stables et 1 500 nucléides radioactifs. La date de 1984, cinquantième anniversaire de la radioactivité artificielle, est donc bien choise pour présenter une discipline peu connue, la spectroscopie nucléaire, qui occupe pourtant une place importante dans l'activité présente des laboratoires.

LA STRUCTURE FINE DU SPECTRE α.

ROSENBLUM a mesuré avec précision, par déviation magnétique, l'énergie des particules α émises dans la transition :

$$\mathrm{Th\,C} \xrightarrow{\alpha} \mathrm{Th\,C''}$$

que nous écrivons aujourd'hui :

$$^{212}_{83}\mathrm{Bi} \xrightarrow{\alpha} {}^{208}_{81}\mathrm{Tl}.$$

Il a constaté que ces particules n'étaient pas monocinétiques, mais se répartissaient en deux groupes d'énergie moyenne $E_\alpha = 6{,}2$ MeV, séparés par un écart $\Delta E_\alpha = 0{,}040$ MeV. La différence en énergie étant faible ($\Delta E_\alpha / E_\alpha < 1\,\%$), cette structure est baptisée « structure fine », et l'on peut affirmer qu'il existe des

spectres de raies α, comme il existe des spectres de raies en optique. Par la suite, en 1936, F. OPPENHEIMER a donné une mesure plus précise de ces énergies $E_{\alpha 1} = 6{,}199$ MeV et $E_{\alpha 0} = 6{,}159$ MeV avec un écart de 0,040 MeV.

L'interprétation de ce résultat est simple si l'on imagine que le noyau final $^{208}_{81}Tl$ peut exister, non seulement dans son état fondamental, mais aussi dans un état d'excitation à 0,040 MeV. Alors la désintégration du noyau initial $^{212}_{82}Bi$ peut se faire soit par voie directe ($E_{\alpha 1} = 6{,}199$ MeV), soit par émission d'une particule α moins énergique ($E_{\alpha 0} = 6{,}159$ MeV) suivie de l'émission en cascade d'un photon γ d'énergie 0,040 MeV (1).

Le schéma des niveaux du nucléide $^{208}_{81}Tl$ se présente donc ainsi, en 1936, si l'on se limite aux deux niveaux les plus importants (fig. 1). Précisons que l'on connaît aujourd'hui 9 niveaux de ce nucléide.

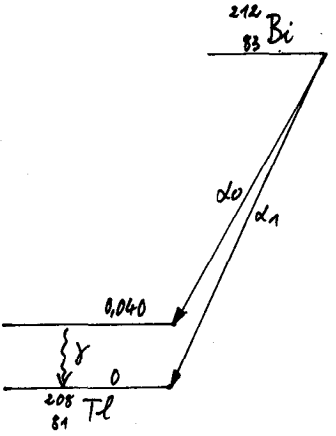

Fig. 1. — Schéma élémentaire des niveaux de $^{208}_{81}Tl$.

LA RADIOACTIVITE ARTIFICIELLE.

L'expression « schéma des niveaux » était promise à une gloire permanente autant qu'imprévue. La découverte en 1934, par Irène et Frédéric JOLIOT-CURIE d'un nouveau radioélément, le

(1) On n'a pas compté dans ce bilan énergétique les effets de recul du noyau qui compliqueraient les calculs sans modifier valablement les conclusions. On n'a pas envisagé non plus, dans un but de simplification, la possibilité de la conversion interne (voir aux paragraphes suivants).

phosphore 30, émetteur β^+, a ouvert un champ très vaste. On en aura une idée en regardant ci-après le schéma des niveaux correspondants à la masse 30, tels que nous le connaissons aujourd'hui, et en précisant bien qu'il s'agit d'un cas relativement simple (fig. 2).

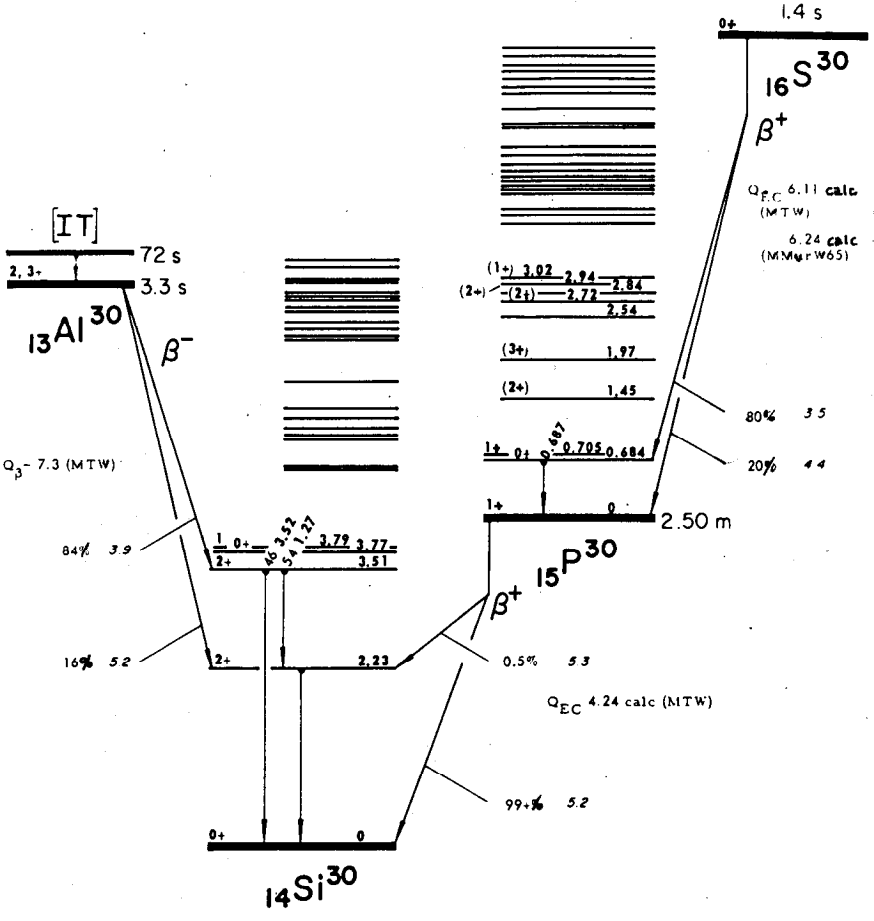

Fig. 2. — Schéma des niveaux de la masse 30.

CARACTERISTIQUES D'UN NIVEAU NUCLEAIRE.

On remarquera que chaque niveau, représenté par une barre horizontale, porte des indications caractéristiques. Par exemple le niveau fondamental du nucléide $^{30}_{14}$Si, porte à droite la men-

tion 0, qui signifie : énergie d'excitation 0, et à gauche la mention 0^+ qui signifie : moment angulaire total 0, parité +. Ceci nous amène à définir trois grandeurs nucléaires :

L'ÉNERGIE D'EXCITATION est une énergie potentielle, égale à la différence entre l'énergie interne du noyau dans son état excité, et l'énergie interne du noyau dans son état fondamental. Précisons bien que l'état fondamental d'un nucléide donné n'est pas nécessairement un état stable, mais c'est l'état le moins élevé qui ne se désintègre pas par transition électromagnétique (émission γ ou conversion interne). L'énergie d'excitation est mesurée en MeV. Par exemple, le premier niveau excité du silicium 30 a une énergie d'excitation de 2,23 MeV.

LE MOMENT ANGULAIRE TOTAL EST UNE GRANDEUR QUANTIQUE, dont le correspondant classique est le moment cinétique de la mécanique de NEWTON. Mais une grandeur quantique est représentée par un opérateur, ici l'opérateur vectoriel $\vec{J}$, dont les trois composantes sont J_x, J_y, J_z. La mesure de J_z donne comme résultat une des valeurs propres de J_z et il est d'usage de désigner par moment angulaire total J la valeur positive maximale des valeurs propres de J_z. C'est ainsi que le premier niveau excité du nucléide $^{30}_{14}Si$ est un état $J = 2$ où J est mesurée en unités $\hbar$ c'est-à-dire $h/2\pi$. Signalons au passage que l'on désigne souvent et improprement dans les laboratoires sous le nom de spin le moment angulaire total d'un noyau, alors que le terme spin est réservé uniquement à la désignation du moment angulaire intrinsèque des particules fondamentales comme le proton et le neutron.

LA PARITÉ π EST ÉGALEMENT UNE GRANDEUR QUANTIQUE mais elle n'a pas d'équivalent classique. Elle correspond à une propriété de la fonction d'onde. Pour une seule particule, décrite par une fonction d'onde $\psi(x, y, z)$, il existe deux possibilités :

1) $\psi(x, y, z) = \psi(-x, -y, -z)$. La fonction d'onde est paire et la parité est positive ($\pi = +1$),

2) $\psi(x, y, z) = -\psi(-x, -y, -z)$. La fonction d'onde est impaire et la parité est négative ($\pi = -1$).

Par convention, les nucléons (protons et neutrons) ont une parité intrinsèque positive.

Pour un nucléon, i, animé d'un mouvement orbital de nombre quantique l, la parité est :

$$\pi_i = \underbrace{(-1)^l}_{orbital} \times \underbrace{(+1)}_{intrinsèque}.$$

Dans cette écriture, le + 1 peut paraître mathématiquement inutile, mais on a voulu marquer ainsi que l'on n'a pas le droit d'ignorer, physiquement, qu'il existe une parité intrinsèque du nucléon.

Pour un noyau qui est un ensemble de n nucléons, la parité totale est le produit des parités individuelles.

$$\pi_n = \pi_1 \cdot \pi_2 \ldots \cdot \pi_i \ldots \cdot \pi_n.$$

L'objectif du spectroscopiste nucléaire pour un nucléide est donc d'identifier le plus grand nombre de niveaux d'excitation, et de déterminer pour chacun, son énergie, son moment angulaire et sa parité. Ce travail est relativement aisé pour les énergies d'excitation limitées à quelques MeV, car les niveaux sont peu nombreux surtout pour les noyaux légers, mais le travail se complique dès que l'énergie d'excitation dépasse un seuil de l'ordre de 8 MeV. Les niveaux deviennent très nombreux et s'élargissent, ce qui rend leur séparation difficile. Enfin pour des énergies d'excitation encore plus grandes, les niveaux se confondent en un « continuum » et le travail du spectroscopiste s'arrête généralement là.

METHODES EXPERIMENTALES DE LA SPECTROSCOPIE NUCLEAIRE.

Deux voies complémentaires pour ne pas dire concurrentielles permettent l'étude des noyaux.

La réaction nucléaire directe se pratique en temps réel sur le faisceau de particules issu d'un accélérateur (fig. 3).

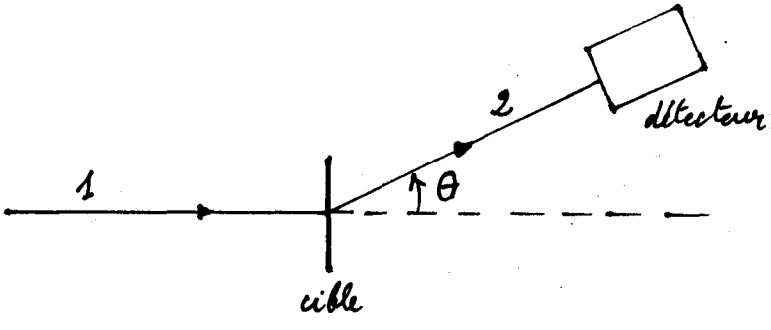

Fig. 3. — Spectroscopie nucléaire par réaction.

On irradie la cible avec des particules de type 1, et l'on détecte à la sortie, sous l'angle θ, des particules de type 2. L'identification des particules 2, la mesure de leur énergie et de leur distribution angulaire, fournit des informations spectroscopiques

sur le noyau cible. Cette méthode est très puissante, très pratiquée, mais nous avons choisi de nous limiter, dans cet article, à la présentation de la seconde méthode : la spectroscopie par radioactivité.

L'étude de la radioactivité induite se fait en deux étapes. On commence par irradier la cible dans un accélérateur pendant un temps de l'ordre de quelques minutes à quelques heures. On place ensuite la cible irradiée devant un détecteur, et l'on suit l'émission des rayonnements pendant la décroissance de l'activité. Nous allons détailler quelque peu la méthode (fig. 4).

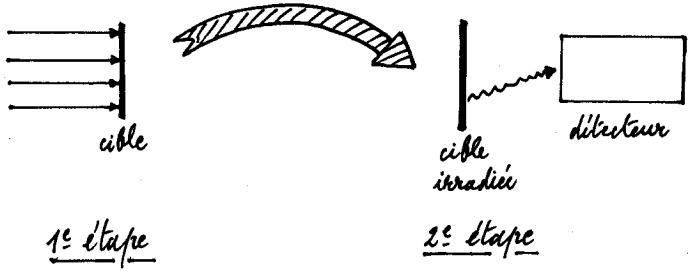

Fig. 4. — Spectroscopie nucléaire par radioactivité induite.

DEUX TYPES DE TRANSITION ELECTROMAGNETIQUE.

Lorsqu'un noyau se trouve dans l'état d'excitation d'énergie E_x, deux voies sont possibles pour le retour à l'état fondamental.

La RADIOACTIVITÉ γ qui, correspondant à l'émission d'un photon d'énergie $E_\gamma = E_x$, ou de plusieurs photons γ en cascade tels que $E_{\gamma 1} + E_{\gamma 2} + ... = E_x$. On détecte généralement les photons γ émis par des semi-conducteurs dont la résolution en énergie est de l'ordre de 1 ‰, ce qui est excellent (2). On obtient ainsi des spectres γ aux raies très fines, tels que celui des isotopes du terbium, produits par réaction (α, xn) en irradiant une cible d'europium (3) (fig. 5).

---

(2) Voir B.U.P. n° 565, mai 1974, pages 923 à 930. C. RUHLA : *Utilisation des semi-conducteurs en physique nucléaire.*

(3) D'une façon générale, la réaction (α, xn) sur la nucléide ${}^{A}_{Z}X$, s'écrit :

$$ {}^{A}_{Z}X + {}^{4}_{2}He \rightarrow {}^{(A+4-x)}_{(Z+2)}Y + x\,({}^{1}_{0}n) $$

où x est un nombre entier.

Par exemple, la réaction (α, $2\,n$) sur l'europium 151 s'écrit :

— soit simplement ${}^{151}_{63}Eu\,(\alpha, 2\,n)\,{}^{153}_{65}Tb$

— soit *in extenso* ${}^{151}_{63}Eu + {}^{4}_{2}He \rightarrow {}^{153}_{65}Tb + 2\,({}^{1}_{0}n)$.

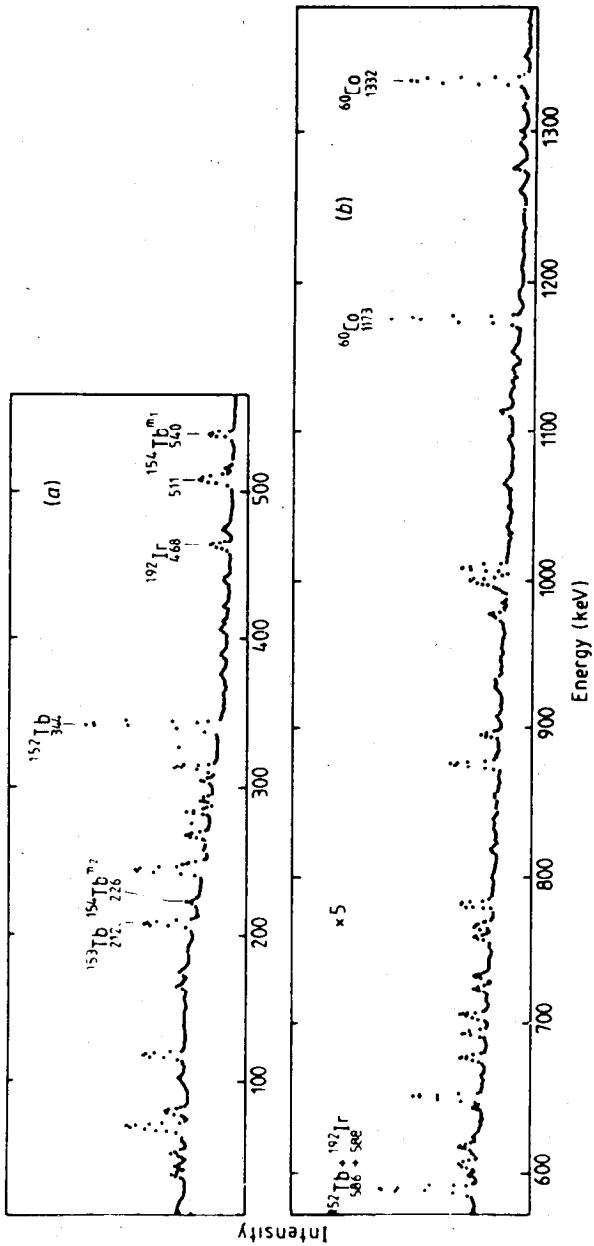

Fig. 5. — Le spectre des isotopes du Terbium.

La conversion interne, tout aussi importante, est beaucoup moins souvent citée dans l'enseignement secondaire. Le processus se présente ainsi :

— L'énergie d'excitation E_x, disponible pour la transition est entièrement cédée à un électron voisin du noyau (couches K ou L). Cette énergie sert à la fois à arracher l'électron du nuage électronique (énergie de liaison E_L) et à lui fournir une énergie cinétique E_c. On a donc la relation $E_c = E_x - E_L$, qui indique que l'électron ainsi libéré par conversion interne, a une énergie cinétique bien définie. Le spectre des électrons de conversion est donc un spectre de raies, que l'on peut mettre en évidence par un spectromètre à déviation magnétique. Voici par exemple le spectre des électrons de conversion du nucléide plomb 212 (fig. 6).

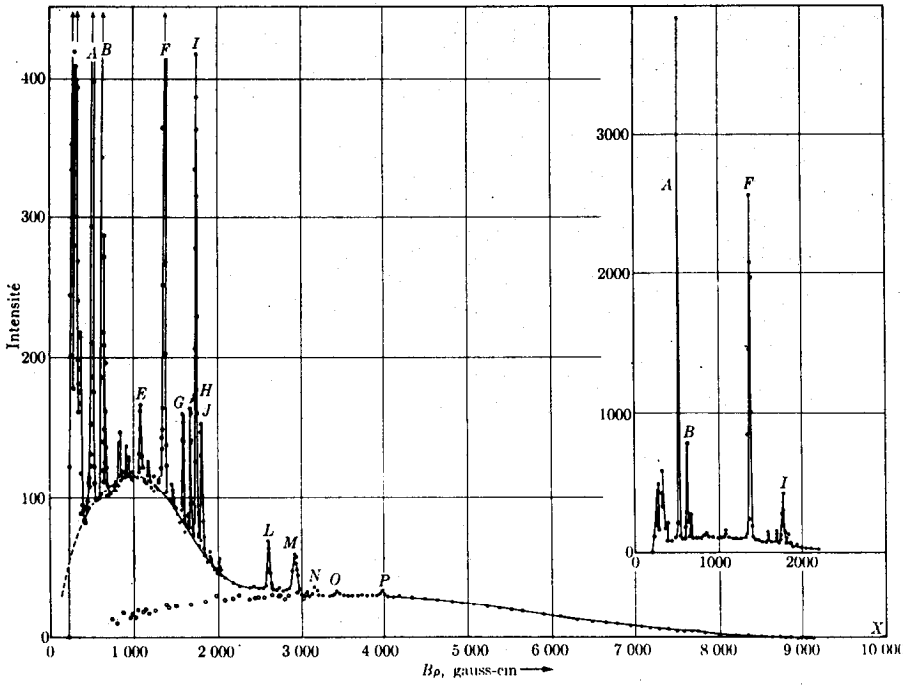

Fig. 6. — Spectre des électrons émis par le Plomb 212 et ses descendants.

Le coefficient de conversion α, pour une transition électromagnétique déterminée est défini par un quotient :

$$\alpha = \frac{\text{Probabilité de désintégration par conversion interne}}{\text{Probabilité de désintégration par émission } \gamma}.$$

Lorsque l'on a bien identifiée pour une transition la raie d'électron de conversion et la raie γ, on obtient le coefficient de conversion α en mesurant le rapport $Ne/N\gamma$, quotient du nombre d'électrons au nombre de γ émis pendant le même temps par une source donnée. Ce rapport $Ne/N\gamma$ est égal à α avec une très bonne approximation, dès que le temps est suffisamment long pour que les nombres Ne et $N\gamma$ soient grands. (L'écart-type relatif est égal à $\sqrt{N}/N$) (4).

D'une façon générale le coefficient de conversion est très grand lorsque E_γ est faible, décroît quand E_γ augmente, pour devenir négligeable lorsque l'énergie E_γ atteint quelques MeV.

LE SPECTROSCOPISTE AU TRAVAIL.

Il bénéficie du travail de ses prédécesseurs, qui figure dans les tables, et il va chercher à apporter sa contribution à la connaissance d'un nucléide donné en identifiant des états d'excitation encore inconnus, dont il déterminera les caractéristiques E_x, J, et π.

La méthode des coïncidences est fondamentale pour « débrouiller » les spectres aux raies multiples. A cet effet, on place autour de la source deux détecteurs, reliés entre eux par un circuit de coïncidences (5). Ce circuit ne donne un signal de comptage à la sortie que si les impulsions issues des détecteurs 1 et 2 sont « simultanées » c'est-à-dire en coïncidence dans le temps

(4) L'émission d'un électron de conversion *e* est statistiquement indépendante de l'émission d'un photon γ puisque les deux modes de désintégration s'excluent mutuellement. Donc N_e et N_γ sont des nombres aléatoires indépendants. Mais le rapport N_e/N_γ converge en probabilité vers le coefficient de conversion α quand N_e et N_γ tendent vers l'infini.

(5) On peut spécialiser les détecteurs en fonction de l'objectif poursuivi. Le détecteur β est une diode silicium dont la surface est de quelques centimètres carrés et l'épaisseur de quelques millimètres. Il enregistre toutes les particules β quelle que soit l'énergie, car le spectre β est continu. On maintient toutefois, électroniquement, un seuil de détection pour être sûr de rester au-dessus du bruit de fond. Le détecteur γ est une diode germanium-lithium de grand volume (environ 50 cm^3), et l'on définit électroniquement une fenêtre de détection autour de l'énergie γ cherchée afin d'isoler une seule transition.

avec un écart maximum de l'ordre de 10^{-8} secondes. Cet écart est défini par l'appareillage (fig. 7).

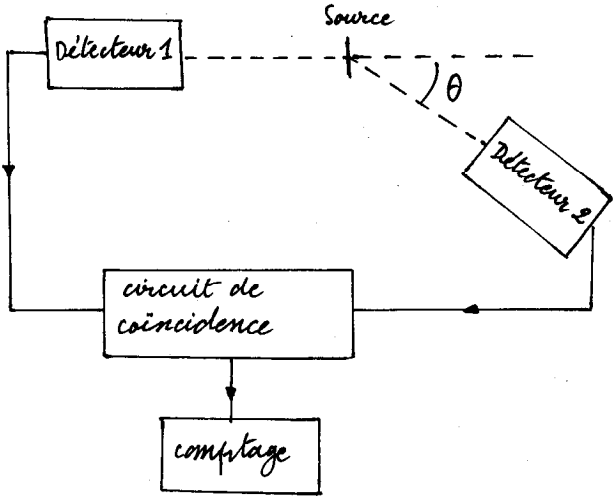

Fig. 7. — La méthode des coïncidences.

Envisageons par exemple la désintégration du cobalt 60. On pourra réaliser des coïncidences (β, γ_1), (β, γ_2) et (γ_1, γ_2) et ceci permettra de comprendre qu'il existe une cascade β^-, γ_1, γ_2 dans le cobalt 60 (fig. 8).

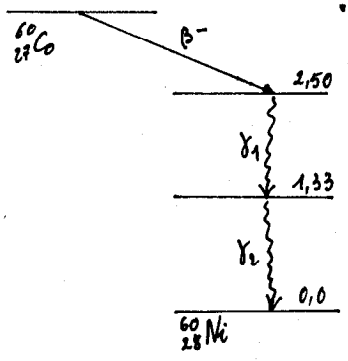

Fig. 8. — Niveaux de nickel 60.

Le principe de combinaison de Ritz s'énonce simplement dans le cas du Nickel 60. « Si l'on mesure deux γ en cascade d'éner-

gie $E_{\gamma 1} = 1{,}17$ MeV et d'énergie $E_{\gamma 2} = 1{,}33$ MeV, c'est qu'il existe un état d'excitation d'énergie :

$$E_x = E_{\gamma 1} + E_{\gamma 2} = 1{,}17 + 1{,}33 = 2{,}50 \text{ MeV} ».$$

« Pour écrire convenablement le principe de combinaison de Ritz, il faut vérifier expérimentalement qu'il n'existe pas une autre transition, qui donnerait un γ_3 en coïncidence avec γ_1 et γ_2, car on serait alors obligé d'écrire $E_x = E_{\gamma 1} + E_{\gamma 2} + E_{\gamma 3}$, cas complexe, difficile à débrouiller.

Si nous restons dans le cas simple, où il n'y a pas de γ_3, nous avons encore le choix entre deux schémas de désexcitation. » (fig. 9).

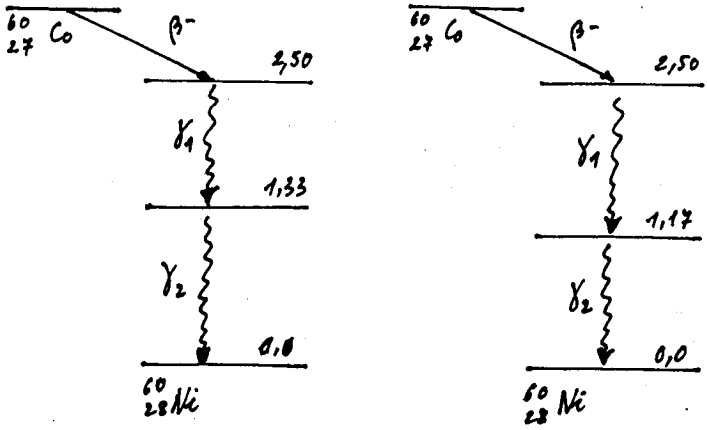

Schéma A Schéma B

Fig. 9. — Comment choisir entre A et B ?

Une transition peu fréquente $^{60}_{27}\text{Co} \xrightarrow{\beta^-} {}^{60}_{28}\text{Ni}^* \xrightarrow{\gamma} {}^{60}_{28}\text{Ni}$ va permettre de conclure. Elle n'intervient que pour 0,12 % du total des désintégrations, mais cela est suffisant. C'est une cascade (β, γ) qui conduit directement au niveau de 1,33 MeV (fig. 10).

Si l'on règle le seuil de détection de l'énergie des β de façon à éliminer totalement les β du schéma A (fig. 9), on obtiendra une coïncidence (β, γ), avec un γ unique, d'énergie 1,33 MeV. Ceci élimine le schéma B, et permet de conclure effectivement à l'existence de deux niveaux d'excitation, d'énergies 1,33 et 2,50 MeV.

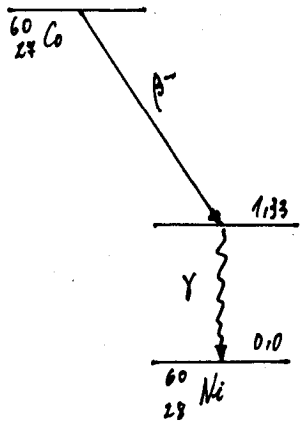

Fig. 10. — La bonne solution.

La méthode des corrélations angulaires permet la détermination de J et π pour un état d'excitation donné. Pour cela, on détermine par des mesures successives, la distribution angulaire (γ, γ) c'est-à-dire la variation du rendement de coïncidence en fonction de l'angle θ. La théorie électromagnétique permet le calcul de la forme de la distribution qui dépend du moment angulaire l emporté par le rayonnement. Si J_i, π_i et J_f, π_f sont les moments angulaires et les parités de l'état initial et de l'état final, on aura la relation :

$$|J_i - J_f| \leqslant l \leqslant J_i + J_f$$

$$\pi_i \cdot \pi_f = (-l)^l.$$

La détermination expérimentale de l par la forme de la distribution angulaire donne π_i en fonction de π_f, et un encadrement pour J_i en fonction de J_f. On mènera des expériences différentes pour J_i jusqu'à ce que sa valeur soit déterminée sans ambiguïté.

Le coefficient de conversion α, lui aussi calculable par la théorie électromagnétique, permet aussi une détermination de l, donc de J et π.

Enfin, signalons que le spectroscopiste mesure aussi d'autres grandeurs nucléaires, telles que le facteur gyromagnétique g par corrélation angulaire perturbée, et la durée de vie τ par effet Mössbauer.

SERVITUDES ET GRANDEURS DU SPECTROSCOPISTE.

Ce travail patient, qui s'apparente souvent à celui des bénédictins, n'est absolument pas un acte gratuit. La bonne connaissance des niveaux excités des noyaux conduit les théoriciens à élaborer des modèles de structure nucléaire. Ces modèles se sont perfectionnés au cours des années pour atteindre un haut degré d'explication et de précision. Et toute la grandeur de l'activité des spectroscopistes est contenue dans le commentaire du jury Nobel que nous citons dans son intégralité.

« Le prix Nobel de physique a été attribué en 1975, par tiers à M. Aage BOHR (6), Copenhague, à M. Ben MOTTELSON, Copenhague, et à M. James RAINWATER, New York, pour la découverte de la relation entre les mouvements collectifs et ceux des particules dans les noyaux d'atomes et pour l'élaboration de la théorie relative à la structure du noyau, qui se rattache à cette relation ».

---

(6) Aage BOHR est le fils de Niels BOHR, prix Nobel de Physique 1922.

BIBLIOGRAPHIE

— R.-D. EVANS. — *Le noyau atomique.* Traduction de A. BUSSIÈRE, C. STEPHAN, J. VERNOTTE. Editions Dunod, Paris, 1961.

— H.-A. ENGE. — *Introduction à la Physique Nucléaire.* Traduction de M. BAUBILLIER, H. BRIAND, M. BORATAV. Editions Masson, Paris, 1972.

Les documents scientifiques ont été extraits des publications suivantes :

— *Schéma des niveaux de la masse 30.* C.-M. LEDERER, J.-M. HOLLANDER, I. PERLMAN. Table of isotopes, Sixth Edition. Editions John Wiley et sons, New York.

— *Spectre des électrons du Plomb 212.* A. FLAMMERSFELD. Zeitschrift für Physik 114, 227, (1939).

— *Spectre d'une source Eu* (α, *xn*). I. BERKES, A. BRENIER, G. MAREST. Nuclear Physics 9 (1983), 213-226.