

Etude de la réaction ${}_{17}\text{Cl}^{35} (n_{\text{th}}, p) {}_{16}\text{S}^{35}$
par émulsion nucléaire spéciale
au chlorure d'argent

THÈSE

PRÉSENTÉE A LA FACULTÉ DES SCIENCES
DE L'UNIVERSITÉ DE NEUCHÂTEL
POUR L'OBTENTION DU GRADE DE DOCTEUR ÈS SCIENCES

PAR

HORTENSE BERTHET

LICENCIÉE ÈS SCIENCES DE L'UNIVERSITÉ DE LYON

UNIVERSITÉ DE NEUCHÂTEL
FACULTÉ DES SCIENCES

La Faculté des Sciences de l'Université de Neuchâtel sur le rapport de Messieurs les professeurs J. ROSSEL, CH. BOISSONNAS et A. HOURIET, autorise l'impression de la présente thèse sans exprimer d'opinion sur les propositions qui y sont contenues.

Neuchâtel, le 1 juin 1955.

Le Doyen:
Prof. Dr R. CHABLE.

A MA MÈRE

Étude de la réaction ${}_{17}\text{Cl}^{35}(\text{n}_{\text{th}}, \text{p})_{16}\text{S}^{35}$ par émulsion nucléaire spéciale au chlorure d'argent

par H. Berthet.

Summary. The slow neutron reaction $\text{Cl}^{35}(\text{n}, \text{p})\text{S}^{35}$ has been studied with a new nuclear emulsion (prepared by Kodak) where all AgBr was replaced by AgCl. Sandwiches of normal (Ilford) and special Cl-emulsions exposed to pile neutrons enable an accurate determination of the total flux through the $\text{N}^{14}(\text{n}, \text{p})\text{C}^{14}$ reaction and allow a direct comparison of the nearly equal Q values of the two processes by fitting gaussian curves for the two proton groups. The cross-section for Cl was found to be $\sigma = 0,30 \pm 0,01$ barn. The relative difference of the Q amounts to 3,6% in excellent agreement with the predicted Q values both from the masses and from the limit of β -spectrum.

Comparison of the measured ratio $\sigma(\text{n}, \text{p})/\sigma(\text{n}, \gamma)$ with theoretical predictions shows coincidence of the order of magnitude and favours the value $r_0 = 1,3 \cdot 10^{-13}$ cm in the expression $R = r_0 A^{1/3}$ for nuclear radius.

Using the published experimental data on stopping power energy relation for low energy protons in the elements, a calibration curve in the energy range $100 < E_p < 1000$ keV for Ilford emulsion has been established. So is avoided any questionable use of α -particle values of stopping power. The agreement with measured proton ranges being excellent, the same procedure was applied for a calibration of the Cl emulsion.

Finally a discussion of the useful precautions in determining cross-sections with nuclear plates based on a careful chemical analysis of the emulsion is presented.

I. Introduction.

La possibilité de la réaction par neutrons thermiques: $\text{Cl}^{35}(\text{n}, \text{p})\text{S}^{35}$ a été démontrée d'abord par M. D. KAMMEN¹⁾ qui signale son analogie avec la réaction de même type $\text{N}^{14}(\text{n}, \text{p})\text{C}^{14}$. La mesure de la section efficace et de l'énergie de réaction est entreprise en 1944, à Zurich, par A. GIBERT, F. ROGGEN et J. ROSSEL²⁾ qui utilisent une chambre à ionisation remplie du mélange $\text{Cl}_2\text{—N}_2$ et obtiennent pour la section efficace du mélange isotopique: $\sigma_{\text{Cl}} = 0,19 \pm 0,04 \sigma_{\text{N}}$. En 1947, L. SEREN, H. FRIEDLANDER et S. TURKEL³⁾ mesurent 131 sections efficaces d'activation sur 65 éléments et indiquent pour l'isotope Cl^{35} : $\sigma = 0,169$ barn à 20% près. En 1949,

*

Tableau
Données relatives

Noyau initial				Noyau		
		abondance (10)	masse (6)		$T_{1/2}$ (11)	masse (6)
1	${}^3_2\text{He}$	$1,310^{-4} \%$	$3,016\,977 \pm 11$	${}^3_1\text{H}$	12,5a 12,1 10,7	$3,016\,997 \pm 11$
2	${}^{10}_5\text{B}$	18,98% 18,45	$10,016\,114 \pm 28$	${}^{10}_4\text{Be}$	2,5 10^6 a 2,9 — 2,7 $\pm 4 \cdot 10^6$ (18)	$10,016\,711 \pm 28$
3	${}^{14}_7\text{N}$	99,635%	$14,007\,515 \pm 11$	${}^{14}_6\text{C}$	5400 ± 200 a (18) 5568 ± 30 a (27)	$14,007\,682 \pm 11$
4	${}^{33}_{16}\text{S}$	0,74% 0,750 (12)	$32,981\,961 \pm 38$	${}^{33}_{15}\text{P}$	25 ± 2 j 25,4 j (12)	
5	${}^{35}_{17}\text{Cl}$	75,4%	$34,980\,175 \pm 50$	${}^{35}_{16}\text{S}$	87,1 $\pm 1,2$ j (32)	$34,980\,354 \pm 50$
6	${}^{40}_{19}\text{K}$	0,0119%	$39,976\,578 \pm 130$	${}^{40}_{18}\text{Ar}$	—	$39,975\,100 \pm 100$
7	${}^{45}_{21}\text{Sc}$	100%	$44,970\,00 \pm 60$	${}^{45}_{20}\text{Ca}$	163,5 ± 4 j (33)	—
8	${}^{54}_{26}\text{Fe}$	5,84%	$53,956\,540 \pm 230$	${}^{54}_{25}\text{Mn}$	310 j (12)	$53,957\,55- \pm 245$

1.

 aux réactions (n_{th}, p).

final	Q calculé (MeV)		Q mesuré (MeV)	Q réaction (p, n) (MeV)	σ mesuré (barn)
E_{β} (MeV) (17) $0,0180 \pm 5$ (19) $0,0181 \pm 2$	masse $0,763 \pm 26$	E_{β} $0,764 \pm 3$	$0,740$ (14) $0,766 \pm 10$ (21) $0,764 \pm 1$ (20)	$0,764 \pm 1$ (13)	5040 ± 200 (15) 3700 ± 250 (16)
$0,566 \pm 10$ (24) $0,555 \pm 5$ $0,560 \pm 5$ $0,553 \pm 15$ $0,556 \pm 3$ (18)	$0,226 \pm 57$	$0,226 \pm 5$	—	—	$< 0,2$ (11)
$0,155 \pm 1$ $0,155 \pm 1$ (18)	$0,626 \pm 26$	$0,627 \pm 3$	$0,597$ (14) $0,63 \pm 1$ (26) $0,616 \pm 10$ (29) $0,630 \pm 6$ (21) $0,624 \pm 4$ (20) $0,610 \pm 10$ (22) val. adoptée 0,626	$0,620 \pm 9$ (28) $0,624 \pm 4$ (20)	$1,76 \pm 5$ (15) $1,70 \pm 5$ (31) $1,76$ (29) $1,77 \pm 9$ (30) val. adoptée $1,75 \pm 5$
$0,248 \pm 5$ $0,246 \pm 5$ (25)	—	$0,53 \pm 1$	—	—	$2,3 \cdot 10^{-3}$ (25)
$0,1670 \pm 4$ $0,1670 \pm 5$ (23)	$0,615 \pm 90$	$0,615 \pm 3$	—	—	$0,34$ (2) $0,169$ (3) $0,29$ (4)
	$2,158 \pm 220$				
$0,252 \pm 2$ $0,255 \pm 4$ (34) $0,254 \pm 3$ (35) val. adoptée 0,255		$0,527 \pm 6$			
	< 0 avec les valeurs de masse indiquées	—	—	—	$1,1 \cdot 10^{-2}$ (12)

W. MAURER⁴⁾ reprend la mesure par comparaison de la radioactivité β de S^{35} avec la radioactivité γ de Mn^{56} et trouve pour l'isotope Cl^{35} : $\sigma_{Cl} = 0,29$ barn à 25 % près.

Sur la base du schéma général de réactions: $1^0 Z^A + n = (Z-1)^A + p + Q$; $2^0 (Z-1)^A = Z^A + e^- + E_\beta$, il est possible de déterminer l'énergie de réaction Q soit à partir des masses, soit, dans le cas où l'isotope formé est instable, à partir de la limite du spectre E_β et de la différence $n - {}_1H^1 = (0,782 \pm 0,002) \text{ keV}^{(5)}$ ¹³⁾. Utilisant les valeurs de masses les plus récentes⁶⁾ et la valeur $E_\beta = 167,0 \pm 0,5 \text{ keV}^{(7)}$ ⁸⁾ on obtient pour l'énergie de réaction des valeurs parfaitement concordantes: à partir des masses: $Q = 0,615 \pm 0,090 \text{ MeV}$, à partir de E_β : $Q = 0,615 \pm 0,03 \text{ MeV}$. Des calculs analogues permettent de prévoir les réactions de même type, énergétiquement possibles avec les neutrons thermiques. Les données relatives à ces réactions sont consignées dans le tableau I. La réaction $N^{14}(n, p)C^{14}$ dont la section efficace et l'énergie de réaction sont utilisées dans ce travail, est la seule parfaitement connue. Les résultats incompatibles obtenus par les différents expérimentateurs dans la détermination de la section efficace ainsi que l'absence de mesure précise de l'énergie de réaction nous ont incités à reprendre l'étude de la réaction $Cl^{35}(n, p)S^{35}$ par une méthode nouvelle utilisant une émulsion photographique au chlorure d'argent⁹⁾. Le matériel dont nous nous sommes servis, à notre connaissance, n'a pas encore été employé dans les recherches nucléaires. Aussi dans ce travail, nous sommes-nous proposé le double but suivant:

1⁰ Mesure de précision par émulsion nucléaire de la section efficace σ et de l'énergie de réaction Q du processus $Cl^{35}(n, p)S^{35}$ par comparaison avec la réaction bien connue $N^{14}(n, p)C^{14}$.

2⁰ Etude des caractéristiques de l'émulsion spéciale utilisée et essai d'étalonnage en énergie-parcours pour les protons d'énergie inférieure à 1 MeV.

II. Méthode expérimentale et traitement de l'émulsion.

Principe de la mesure de σ .

Les méthodes usuelles employées pour la détermination de σ consistent soit dans la mesure du nombre de protons émis dans une chambre d'ionisation ou dans un compteur proportionnel, soit dans la mesure de l'activité de l'isobare instable produit par détermination du nombre de β^- émis après irradiation à saturation. Dans ce cas particulier, l'application de la première méthode est rendue délicate

par le choix d'un gaz adéquat, chloré mais non corrosif; celle de la seconde, par la difficulté de la mesure absolue du nombre de β^- émis qui doivent provenir uniquement de la désintégration de S^{35} .

Méthode expérimentale.

Dans notre méthode le noyau cible *Cl* se trouve incorporé au chlorure d'argent d'une émulsion photographique spéciale *A* dans laquelle s'inscriront les protons émis. L'émulsion contient N_{Cl} noyaux de chlore par cm^2 — détermination microanalytique —. Après bombardement des plaques photographiques par les neutrons thermiques d'un réacteur, et développement approprié des émulsions, on détermine le nombre de traces T_{Cl} par cm^2 . Ceci permet, si on connaît N_{Cl} et la dose n de neutrons par cm^2 , la détermination de la section efficace σ_{Cl} par la relation

$$T_{\text{Cl}} = \sigma_{\text{Cl}} \cdot N_{\text{Cl}} \cdot n.$$

Outre le chlorure d'argent, l'émulsion *A* contient de la gélatine dont la composante azote donne aussi par la réaction $\text{N}^{14}(\text{n}, \text{p})\text{C}^{14}$ des protons qui tombent dans le même domaine d'énergie et qui par conséquent ne seront pas distinguables des protons de la réaction au chlore. Le nombre de ces protons peut être calculé si on connaît la teneur en azote — N'_N atomes par cm^2 — et le flux de neutrons.

Une seconde émulsion *B*, émulsion ordinaire au bromure d'argent, est exposée en sandwich avec la précédente. Le seul élément sensible est l'azote (N'_N noyaux par cm^2) et les seuls protons observés sont dûs à la réaction $\text{N}^{14}(\text{n}, \text{p})\text{C}^{14}$.

Soient T et T'_N les nombres de traces par cm^2 dans les émulsions *A* et *B*; on a les relations 1^o $T = n (N'_\text{N} \sigma_\text{N} + N_{\text{Cl}} \sigma_{\text{Cl}})$ et 2^o $T'_\text{N} = n \cdot N'_\text{N} \cdot \sigma_\text{N}$ d'où 3^o:

$$\sigma_{\text{Cl}} = \sigma_\text{N} \left[\frac{T}{T'_\text{N}} \frac{N'_\text{N}}{N_{\text{Cl}}} - \frac{N'_\text{N}}{N_{\text{Cl}}} \right].$$

Principe de la mesure de Q .

Les mesures de Q sont basées soit sur la mesure du parcours du proton, soit sur une détermination d'ionisation totale.

Pour les protons enregistrés dans les émulsions ordinaires dont la courbe d'étalonnage parcours-énergie est relativement bien connue, la détermination de la longueur de la trace fournit une mesure directe et précise de l'énergie du proton et par suite du Q de la réaction. Cette courbe d'étalonnage fait défaut pour l'émulsion au

AgCl. Cependant, comme le spectre observé résulte de la superposition de 2 distributions voisines, une détermination de Q_{Cl} relative à Q_N est possible avec une bonne précision, les valeurs attendues étant très voisines.

La cible.

Les plaques utilisées ont été spécialement fabriquées et mises gracieusement à notre disposition par le Dr BERRIMAN*) (Kodak Angleterre). Ce sont des Kodak NT dans lesquelles les halogénures d'argent, IAg et BrAg sont remplacés par une quantité égale de ClAg, ce qui réalise pour la concentration en noyaux-cibles des conditions bien supérieures à celles obtenues dans les méthodes d'imprégnation des émulsions ordinaires.

N'étant point encore standardisées, les plaques au chlore ont fait l'objet de notre part d'une étude systématique de composition chimique, traitement et particularités.

1. Composition des plaques.

	Composition atomique	Composition en g/cm ³		Nombre de noyaux par cm ³	
H	210	0,040	1,19%	2,41 10 ²²	33,6%
C	124	0,286	8,5 %	1,43	19,9%
N	32	0,084	2,49%	0,36	5,0%
O	57	0,17	5,05%	0,64	8,9%
Cl	100	0,69	20,4 %	1,17	16,3%
Ag	100	2,10	62,2 %	1,17	16,3%

Ces résultats obtenus à partir de données fournies par le fabricant, concernent l'émulsion complètement desséchée.

Des microanalyses effectuées par les laboratoires spécialisés de l'E.P.F. de Zurich ont permis la détermination exacte de la teneur en N et Cl pour *chaque cible*. La précision obtenue est indiquée par le résultat de l'analyse pour 2 échantillons A et B :

% de Cl pour A : 20,15; 20,15; 19,95; pour B : 19,75; 19,65; 19,75; la détermination de la teneur en N a donné successivement pour l'un des échantillons : 2,51; 2,50; 2,50; 2,51; 2,55 %.

Entre leur coulée et la période d'utilisation, les plaques de 50 μ d'épaisseur ont été conservées dans des blocs de plomb et, dans la mesure du possible, à basse température. Chaque cible a été choisie telle que l'émulsion ne présente aucune zone d'amincissement.

*) Nous remercions chaleureusement le Dr BERRIMAN de l'intérêt manifesté pour ce travail ainsi que des émulsions spéciales qu'il a bien voulu fabriquer pour nous.

2. *Traitement de l'émulsion.*

Le développement a été essayé sur un échantillon de chaque coulée différente. Les mêmes conditions ont pu être appliquées. Le révélateur employé est le bain spécial D 163 de composition suivante :

Elon	2,2 g
Sulfite de Na cristallisé	150 g
Hydroquinone	17 g
Carbonate de Na cristallisé	175 g
Bromure de potassium	2,8 g
Eau q. s. p. f.	1000 cm ³

Le révélateur est employé dans les conditions suivantes :

révélateur D 163	1 partie
solution de NaCl (20%)	1 partie
eau distillée	2 parties

Durée du développement : 4 minutes, température : 4° C.

Après rinçage à l'eau courante et passage dans le bain d'arrêt (1,5% d'acide acétique), les plaques sont fixées dans le bain suivant :

Hyposulfite de Na	200 g
Bisulfite de Na	20 g
eau q. s. p. f.	1000 cm ³

Le fixage se fait avec brassage permanent. Le bisulfite de sodium ajouté au fixateur ordinaire, outre le fait qu'il diminue le gonflement, donne des plaques sensiblement plus claires. Le lavage à l'eau courante se fait par dilution progressive du fixateur. Séchage à l'air sec.

Les plaques témoins, des Ilford C₂ et E₁ 50 μ , ont été développées dans le révélateur à l'hydroquinone³⁶⁾ par la méthode du bain de température^{37) 38)} lequel assure le « choc thermique » et une bonne pénétration du révélateur.

Stade froid : imprégnation préalable à 3° C pendant une demi-heure ; stade chaud : 12 minutes à 30° C, bain d'arrêt, fixage, lavage et séchage comme ci-dessus. Pour ces plaques, on a travaillé avec le filtre de sécurité Ilford « S » n° 902, et pour les plaques au chlore, en lumière rouge.

3. *Exploration des plaques.*

Le dénombrement des traces et la mesure de leur longueur ont été faits par deux observateurs expérimentés utilisant des microscopes binoculaires WILD avec objectif à immersion ($n \sin u = 1,25$), en lumière verte, ce qui réduit les effets de diffraction et rend l'observation plus confortable. On a utilisé un grossissement intrinsèque

de $85 \times 10 \times 1,5 = 1275$. Dans la mesure des longueurs, on a utilisé un oculaire micrométrique à fil Leitz ($\times 12,5$) gradué au $1/30$ de μ et contrôlé avec deux échelles micrométriques Leitz, elles-mêmes comparées à un étalon d'autre provenance (Société des Instruments de Physique, Genève). Aucune déviation systématique des valeurs nominales n'a pu être décelée supérieure à l'erreur d'observation de $0,8\%$ sur les intervalles.

1^{re} échelle: 1 division = $0,0332 \pm 0,0003 \mu$

2^{me} échelle: 1 division = $0,0333 \pm 0,0002 \mu$

4. Qualité des traces.

Les plaques ayant toujours été utilisées dans le mois qui suivait leur fabrication, présentent un faible bruit de fond. Le développement employé permet une bonne discrimination visuelle $\alpha - p$, ainsi qu'on a pu le vérifier sur un fragment de plaque soumis aux α du Po avant irradiation à la pile. La qualité des traces est au moins égale à celle des meilleures traces enregistrées dans les émulsions ordinaires.

Pour la mesure de σ l'exploration a porté sur toutes les traces. Pour la détermination de Q ont été mesurées seulement les traces horizontales au point dans le plan de visée, c'est-à-dire dont la différence des cotes est inférieure à $0,5 \mu$, ceci dans le but d'éviter l'erreur provenant de l'emploi du coefficient de contraction dans la reconstruction de la longueur réelle des traces.

On a vérifié les différents points suivants :

a) *La concordance dans les résultats obtenus par des expérimentateurs différents dans le dénombrement des traces est satisfaisante.*

La même cible a été étudiée par les observateurs 1 et 2. Sur un nombre de traces égal à 1716, réparties sur 308 champs de vue, dans une plaque vierge et de 2738 traces réparties sur 660 champs de vue dans une plaque au chlorure, les résultats des deux observateurs ont été respectivement: 5,57 et 5,62 pour la première, et 4,15 et 4,18 pour la seconde.

b) *La répartition des éléments sensibles est homogène.*

Pour vérifier la répartition homogène des éléments sensibles on a dressé la statistique des nombres de traces par champ de vue et montré qu'elle obéit à une répartition de Gauss de moyenne x_0 et d'écart type $\sigma = \sqrt{x_0}$, dans les limites imposées par le test du χ^2 (graphique 1).

Les résultats obtenus montrent en outre qu'on peut considérer comme non probable une contamination du bore. Cet élément serait en effet particulièrement dangereux à cause de sa section efficace élevée et parce que la longueur des traces des α ($\sim 7 \mu$) est sensiblement égale à celle des protons étudiés.

c) Le nombre de traces perdues par suite de leur trop grande inclinaison est négligeable.

Un calcul simple montre qu'il s'agit au maximum de quelques % du nombre total de traces.

Répartition des événements dans la plaque au Cl

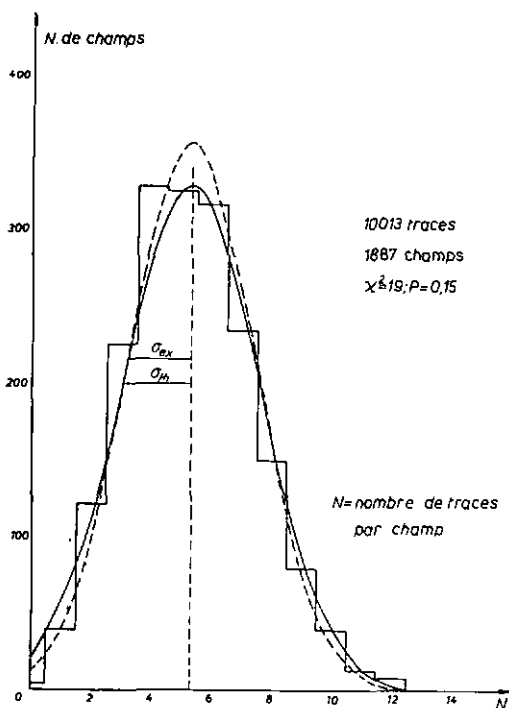


Fig. 1.

III. Résultats expérimentaux.

a) Détermination de σ .

Trois irradiations ont eu lieu, les deux premières au réacteur Bepo de Harwell*), la troisième à celui de Châtillon*). Sept cibles, comportant chacune une plaque au chlore et une plaque témoin, placées à l'intérieur d'une protection de plomb ont été soumises à des doses croissantes de neutrons, de l'ordre de 10^9 n/cm². La cible 1 de Har-

*) Nous sommes heureux de remercier Madame FARAGGI et l'équipe du C. E. A. à Saclay ainsi que M. EASTWOOD, à Harwell, qui ont bien voulu se charger des différentes irradiations.

well a été explorée par deux observateurs; les cibles A. B. C. de HARWELL, A¹, B¹, C¹ de Châtillon par l'un ou l'autre d'entre eux. La cible C¹ a donné des résultats incohérents.

σ a été déterminé par le dénombrement de 59 796 traces réparties dans 12 534 champs de vue. La population moyenne par champ varie suivant l'irradiation de 3,13 à 25 traces dans les plaques au chlore, de 2,7 à 22,1 traces dans les plaques témoins.

Résultats.

Les résultats obtenus ont été les suivants:

Cibles	σ_i
1 Harwell	0,34 \pm 0,05 barn
A Harwell	0,30 \pm 0,03
B Harwell	0,28 \pm 0,04
C Harwell	0,32 \pm 0,03
A ¹ Châtillon	0,25 \pm 0,04
B ¹ Châtillon	0,31 \pm 0,04

Les mesures étant toutes indépendantes et compatibles, nous pouvons donner comme résultat final celui de la *moyenne pondérée* des résultats ci-dessus, soit

$$\sigma = 0,30 \pm 0,01 \text{ barn}$$

σ est la moyenne arithmétique des σ_i , le poids de chaque mesure est donné par $p_i = 1/\varepsilon_i^2$ avec $\varepsilon_i = |\bar{\sigma} - \sigma_i|$. On a alors:

$$\sigma = \frac{\sum p_i \sigma_i}{\sum p_i}$$

et cette valeur est affectée d'une erreur m , calculée d'après

$$m = \pm \sqrt{\frac{\sum p_i (\sigma - \sigma_i)^2}{(n-1) \sum p_i}}$$

Erreurs affectant la mesure des σ_i .

La formule (3) du chapitre II montre que σ est fonction de 6 variables indépendantes X_k dont l'une est la section efficace de la réaction à l'azote; les 3 suivantes se rapportent à la composition des plaques en N et Cl et les deux dernières font intervenir la statistique par le nombre de traces observées par champ de vue.

L'erreur totale est l'erreur *quadratique moyenne*, calculée pour chaque cible suivant la théorie de la propagation des erreurs par la formule:

$$\Delta \sigma = \pm \sqrt{\sum \left(\frac{\partial \sigma}{\partial X_k} \right)^2 \Delta X_k^2}$$

Détermination des ΔX_k .

$\Delta \sigma_N$: d'après les mesures les plus récentes, l'erreur concernant la section efficace σ_N peut être prise égale à 3%.

ΔN_j : pour les 3 irradiations, les plaques soumises aux neutrons étaient des plaques entières. Le nombre de noyaux présents par cm^2 a été déterminé à partir:

1. du poids d'une partie de l'émulsion développée après un laps de temps suffisamment long pour que l'équilibre hygrométrique se soit établi dans les conditions du laboratoire (pesées au $1/10$ de mg).
2. de la surface de ce fragment de plaque, déterminée à mieux de 1%.
3. du rapport m_1/m_2 des poids de l'émulsion après et avant développement. Pour déterminer m_1/m_2 on a mesuré la variation de poids que subissent les plaques d'une même coulée lors du développement standard — étude faite sur quatre ou cinq plaques de la boîte à laquelle appartenait la cible. L'erreur commise sur le facteur m_1/m_2 est évaluée à partir des résultats des déterminations de ce rapport (elle est inférieure à 1%).
4. du résultat des microanalyses de l'émulsion non traitée.

ΔT_k . L'erreur sur le nombre moyen de traces par champ de vue a été calculée par la formule: $\Delta T_k = \bar{T}/\sqrt{\bar{A}}$; \bar{T} = nombre moyen de traces par champ de vue.

L'erreur provenant de $\Delta \sigma_N$ est la plus faible. La *proportion* d'erreur due à la statistique est inférieure à 8% dans le cas d'une statistique poussée, inférieure à 20% pour les statistiques normales, inférieure à 40% pour les statistiques faibles. Pour toutes les cibles, la part la plus importante de l'erreur provient de ΔN_j . La précision pourrait être encore légèrement améliorée en agissant sur ce facteur. On peut en effet supprimer l'erreur sur m_1/m_2 et l'erreur due à la variation d'humidité relative en faisant toutes les déterminations sur des émulsions desséchées sous vide avant irradiation.

Comparaison avec les résultats antérieurs.

Le résultat obtenu diffère notablement de la valeur donnée par L. SEREN, H. FRIEDLANDER et S. TURKEL: $0,169 \pm 0,038$ barn. Ces auteurs signalent dans leur travail qu'ils se sont assigné la mesure

d'un grand nombre de sections efficaces plutôt que la mesure précise de l'une d'entre elles. Ils indiquent cependant une erreur probable de 20% qui ne suffit pas pour que nos valeurs se rejoignent. Quant à la mesure de W. MAURER, si on reprend le calcul avec une section efficace pour la réaction $Mn(n\gamma)$ de 12,8 barns au lieu de 11,2 barns qui était la valeur adoptée en 1949, on obtient un σ isotopique de 0,33 barn, soit pour le σ du chlore naturel, compte tenu de la précision indiquée: $\sigma = 0,25 \pm 0,06$ barn. Si dans le résultat obtenu par A. GIBERT, F. ROGGEN, J. ROSSEL, à savoir $\sigma_{Cl}/\sigma_N = 0,19 \pm 0,04$, on introduit la valeur actuellement adoptée pour σ_N , soit $1,75 \pm 0,05$ barn, on obtient pour le chlore naturel: $\sigma = 0,33 \pm 0,08$ barn.

Notre résultat est en très bon accord avec cette valeur.

Critique de la méthode employée pour la détermination de σ .

1. La méthode photographique exige pour le traitement des émulsions des conditions rigoureusement identiques. Les facteurs physiques dont l'influence n'est pas parfaitement déterminée: température, durée des différents stades du traitement, conditions de conservation, etc., doivent être maintenus constants. La détermination exacte de la composition des émulsions nécessite des analyses chimiques très soigneuses.

2. Cette méthode implique le dénombrement d'un très grand nombre d'événements parce que la détermination de σ_{Cl} est obtenue par la différence de deux statistiques telles que l'effet dû au Cl n'est que le 1/3 de l'effet global. Le nombre des protons parasites de N peut d'ailleurs être déterminé de façon précise. Notons que dans la seconde partie de ce travail, ils jouent un rôle essentiellement positif, permettant de fixer le spectre de Cl par rapport à celui de N.

3. Par ailleurs, nous avons bénéficié de bonnes conditions d'expérimentation en ce qui concerne la *source de neutrons*. Dans les trois irradiations le faisceau neutronique est purement thermique. Son spectre pratiquement maxwellien, correspond à une température du graphique de 30° C, dans les deux premières irradiations effectuées dans la colonne thermique de la pile. La contamination en neutrons rapides est remarquablement faible; 10^{-6} à Harwell, 10^{-5} à Châtillon. De même, les γ sont pratiquement négligeables pour la seconde irradiation environ 0,2 mr/min avec un flux de 10^6 n/sec, l'énergie des γ étant légèrement supérieure à 1 MeV (40). Enfin, pour la mesure du flux, le dispositif des plaques accolées

assure des conditions de « bonne géométrie ». Ainsi, quoique délicate dans sa mise au point technique, la méthode elle-même est simple et précise.

Comparaison avec les données théoriques.

Il existe entre la section efficace $\sigma(\text{n}, \text{p})$ et la section de capture radiative $\sigma(\text{n}, \gamma)$ une relation indépendante du processus de capture du neutron mais faisant intervenir certaines caractéristiques des noyaux intermédiaire et final :

$$\frac{\sigma(\text{n}, \text{p})}{\sigma(\text{n}, \gamma)} = \frac{\Gamma_{\text{p}}}{\Gamma_{\gamma}}.$$

En effet, dans le domaine de validité de la formule de dispersion à un niveau, la section efficace d'une réaction (n, α) des neutrons lents avec un noyau de spin I s'écrit :

$$\sigma(\text{n}, \alpha) = \pi \lambda \lambda_r \frac{1}{2} \left[1 \pm \frac{1}{2I+1} \right] \frac{\Gamma_n \Gamma_\alpha}{(E - E_r)^2 + \Gamma^2/4},$$

expression qui pour les neutrons thermiques ($E_{\text{th}} = 0,025$ eV et $\lambda_{\text{th}} = \lambda(E_{\text{th}})$; $E_r \gg \Gamma$) prend la forme :

$$\sigma_{\text{th}}(\text{n}, \alpha) = \pi \lambda_{\text{th}} f \frac{\lambda_r \Gamma_n \Gamma_\alpha}{E_{\text{th}}^2}.$$

Γ_α est la largeur relative à l'émission d'une particule α (particule chargée ou quantum γ) et Γ la largeur totale du niveau sensiblement égale à $\Gamma_n + \Gamma_\gamma$. Le signe \pm dans le facteur statistique de spin $f = 1/2 (1 \pm 1/(2I+1))$ correspond aux deux orientations relatives possibles des spins du neutron et du noyau.

Pour la section de diffusion élastique, l'intervention du « potential scattering » σ_p qui fait apparaître le rayon R du noyau diffusant complique un peu la formule :

$$\sigma_s(E) = \sigma_p + \pi \lambda_r f \Gamma_n \frac{\lambda_r \Gamma_n + 4R(E - E_r)}{(E - E_r)^2 + \Gamma^2/4}.$$

HIBDON et MUEHLHOUSE⁽⁴¹⁾ ont déterminé dans le cas de Cl^{35} la valeur des paramètres à la résonance en adaptant la courbe mesurée $\sigma_s(E)$ à l'expression théorique et en faisant usage de la valeur expérimentale de la section thermique de capture ($(\sigma_{\text{n}, \gamma})_{\text{th}} = 42,0$ barns pour Cl^{35} et la capture suit une loi en $1/v$).

L'ambiguïté due au facteur de spin $f = 5/8$ ou $3/8$ a été levée par les valeurs obtenues pour R , seul $f = 5/8$ conduisant à un résultat raisonnable. Les grandeurs ainsi déterminées sont les suivantes :

$\sigma_p = 0,43$ b; $E_r = -75$ eV (niveau réel); $\Gamma_\gamma = 0,3$ eV et $\Gamma_n = 2,63$ eV (pour $E = +75$ eV).

Le rapport Γ_p/Γ_γ peut s'écrire sous la forme $D^* T_p/2\pi\Gamma_\gamma$ et sa détermination nécessite donc la connaissance de D^* , intervalle entre niveaux de mêmes spin et parité du noyau intermédiaire Cl^{36} , et de T_p , transparence pour le proton de la barrière de potentiel de S^{35} .

Comme $D^* = \pi K_0 \Gamma_n/2k_r$ ($K_0 \approx 1,0 \cdot 10^{13} \text{ cm}^{-1}$ et $k_r = 1/\lambda_r$ sont respectivement les nombres d'onde du neutron à l'intérieur et à l'extérieur du noyau), la valeur ci-dessus de Γ_n permet de déduire⁽⁴²⁾: $D^* = 2200 \text{ eV}$.

On voit maintenant que le rapport $\sigma(n, p)/\sigma(n, \gamma) = (D^*/2\pi\Gamma_\gamma) \cdot T_p = 1,17 \cdot 10^3 T_p$ ne fait plus intervenir que la pénétrabilité de la barrière de potentiel. Comme sa hauteur B est beaucoup plus grande que l'énergie du proton de la réaction (n, p) , l'approximation W. K. B. sera satisfaisante.

Les résultats pour T_p dépendent du choix du rayon nucléaire de S^{35} . Notre comparaison des sections efficaces constitue donc en fait un test de la cohérence des expressions théoriques et une estimation des valeurs possibles pour r_0 donnant le rayon nucléaire de S^{35} par $R = r_0 A^{1/3}$.

Le calcul de la transparence a été fait à partir de l'expression⁽⁴³⁾ $T_p = e^{-2\sigma\gamma(x)}$ et également au moyen de la même expression mais affectée du facteur $(B/E - 1)^{1/2}$ ⁽⁴⁴⁾.

Dans notre cas $E=Q=0,615 \text{ MeV}$; les valeurs de g ont été calculées directement et celles de $\gamma(x)$ tirées des tables⁽⁴⁵⁾. On obtient les résultats suivants:

r_0	sans facteur $(B/E - 1)^{1/2}$	avec facteur
1,30 10^{-13} cm	0,32 barn	0,90 barn
1,40	0,62	1,86
1,50	0,76	1,97

La variation de $\sigma(n, p)$ avec l'énergie dans le domaine des neutrons thermiques est du même type pour les réactions $\text{Cl}^{35}(n, p)\text{S}^{35}$ et $\text{N}^{14}(n, p)\text{C}^{14}$. La valeur expérimentale isotopique $\sigma = 0,39 \text{ b}$ déterminée pour Cl^{35} par comparaison avec le σ de l'azote correspond donc sensiblement à la même énergie moyenne sur le spectre des neutrons thermiques soit $\bar{E} = 0,025 \text{ eV}$. La comparaison avec les valeurs calculées ci-dessus est donc légitime. On voit que la concordance des ordres de grandeur est très satisfaisante et que le résultat favorise la valeur $r_0 = 1,30 \cdot 10^{-13} \text{ cm}$.

b) Détermination de Q_{Cl} relativement à Q_{N} .

À notre connaissance, la seule mesure directe (par chambre d'ionisation) de l'énergie de réaction Q_{Cl} a été réalisée²⁾ par comparaison avec la réaction $\text{N}^{14}(\text{n, p}) \text{C}^{14}$. Le résultat indiquait une différence très faible entre la valeur expérimentale pour Cl et celle pour

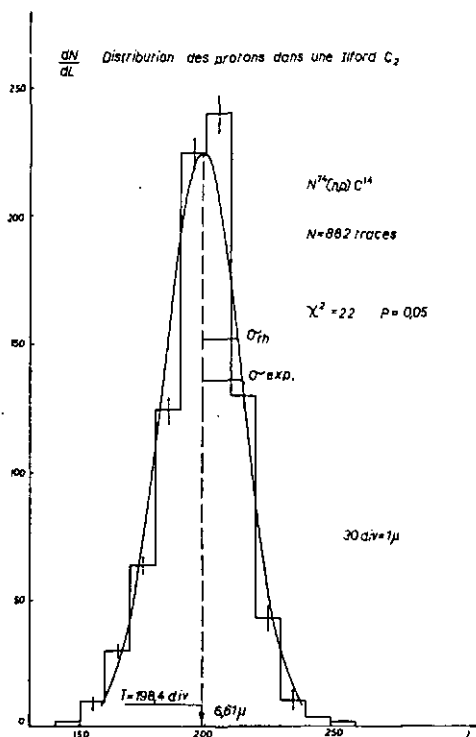


Fig. 2.

N considérée à l'époque comme voisine de 0,57 MeV, ce qui pouvait, par comparaison avec le Q fourni par les masses, laisser supposer qu'un γ de 50 keV environ était émis par le noyau final S^{35} .

L'étude de la distribution des protons a été effectuée sur une plaque vierge Ilford C_2 et sur une plaque au Cl. La statistique a porté sur 882 traces pour la première, 1349 pour la seconde. Ces distributions sont représentées par les histogrammes (fig. 2 et 4a).

La précision de la mesure détermine le choix de la *largeur de classe* utilisée dans l'établissement des histogrammes. Cette précision est conditionnée d'abord par la *limite instrumentale* qui cor-

respond au pouvoir de résolution du microscope. Avec une ouverture numérique $n \sin u = 1,25$ et $\lambda = 0,55 \mu$, la condition d'Abbe donne $d = 0,22 \mu$.

Il faut d'autre part s'assurer que l'erreur maxima due à l'observateur dans l'appréciation de la longueur d'une trace n'est pas supérieure à cette limite. Pour évaluer cette erreur la même trace a

Une même trace mesurée 237 fois par 8 observateurs

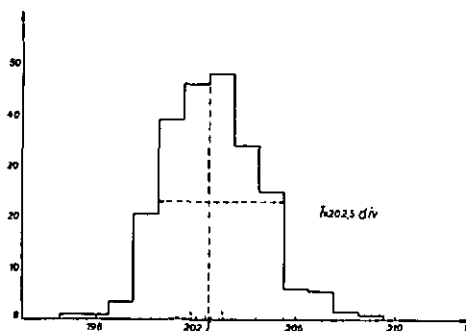


Fig. 3.

été mesurée 237 fois par 8 observateurs. Les résultats de ce test sont reportés sur le graphique fig. 3.

1. et 2. sont les points de mesure des observateurs qui ont fait par la suite les mesures de longueur des traces. Ces résultats montrent que le choix de la largeur de classe adoptée — à savoir 10 divisions du micromètre, ou $0,33 \mu$ — est pleinement justifié.

Nous avons adopté comme définition de la longueur de trace la *distance mesurée entre les tangentes extérieures aux grains extrêmes*.

Étude du spectre dans la plaque Ilford.

Comme les protons enregistrés sont monocinétiques et qu'ils sont freinés dans un milieu considéré comme homogène, on peut s'attendre à une répartition gaussienne de la distribution mesurée. Celle-ci permet de définir un écart quadratique expérimental par la formule:

$$\sigma_{\text{ex}} = \sqrt{\frac{\sum n_i (\bar{l} - l_i)^2}{n}}$$

n = nombre de traces mesurées.

n_i = population de chaque classe de longueur moyenne l_i ,

et un σ théorique par la formule:

$$\sigma_{\text{th}} = \sqrt{\bar{l}}.$$

Pour la distribution mesurée on obtient $\sigma_{\text{ex}} = 15,6$; $\sigma_{\text{th}} = 14$ et $\sigma_{\text{ex}}(\bar{l}) = \sigma_{\text{ex}}(l)/\sqrt{n} = 15,6/\sqrt{882} = 0,6$ div. La longueur moyenne des traces mesurées est donc :

$$\bar{l} = 6,61 \pm 0,02 \mu.$$

Une distribution normale peut se mettre sous la forme

$$Y = \frac{1}{\sigma\sqrt{2\pi}} e^{-\frac{x^2}{2\sigma^2}}$$

la surface limitée par la courbe étant alors égale à l'unité. Les deux valeurs σ_{ex} , σ_{th} permettent de construire deux courbes de même surface S (nombre de traces) et dont le Y max. est donné par Y max. = $S/\sigma\sqrt{2\pi}$. On obtient ainsi : $Y_{\text{ex}} = 224 \exp. (-0,0204 x^2)$ et $Y_{\text{th}} = 251 \exp. (-0,023 x^2)$. On peut alors appliquer le test du χ^2 pour savoir si la distribution observée est assimilable à une distribution gaussienne :

$\chi^2 = \Sigma[Y_{\text{th}} - Y_{\text{ex}}]^2/\Sigma Y_{\text{th}} = 22$, ce qui dans les tables de FISCHER donne une probabilité de 0,05. La distribution peut être considérée comme normale.

On ne peut comparer les résultats avec ceux des autres expérimentateurs que pour autant que les traces sont mesurées de la même manière.

La valeur obtenue pour \bar{l} serait alors en accord avec celle mesurée par CUER : $6,6 \mu^{46}$, mais différerait notablement de celle de Locqueneux : $6,31 \pm 0,04 \mu^{47}$. Il nous paraît difficile d'expliquer la différence avec ce dernier résultat uniquement par la modification du pouvoir d'arrêt de l'émulsion due aux variations de composition. H. FARAGGI⁴⁸ indique une distance entre les grains extrêmes égale à $6,4 \pm 0,15 \mu$ ce qui, compte tenu de la dimension du grain, est en accord raisonnable avec notre valeur.

Distribution dans la plaque au chlore.

Le maximum de cette distribution a lieu pour $\bar{l} = 6,54 \mu$ (avec une erreur de l'ordre de 0,5%). Si on applique le calcul ci-dessus à cette distribution (fig. 4a), on trouve $\chi^2 = 80$ et $P < 0,001$ montrant qu'elle ne peut pas être assimilée à une gaussienne; ceci est naturel puisqu'elle résulte de la superposition de deux distributions, l'une et l'autre normales, décalées suivant l'axe des parcours d'une longueur inconnue qui correspond à la différence des énergies.

Les traces ayant été mesurées dans les mêmes conditions dans les deux plaques, pour une statistique de 1349 traces, on peut choisir un $\sigma = 15,6 \sqrt{882/1349} = 12,5$. On construit alors deux courbes de même σ et de surface respective 8820 et 4760.

Ces courbes sont ensuite décalées l'une par rapport à l'autre, suivant l'axe des parcours, d'une quantité $\Delta R/R$ variable jusqu'à l'obtention d'une courbe résultante superposable à la courbe expérimentale. Des décalages progressifs de 2 à 6% ont été essayés. Le

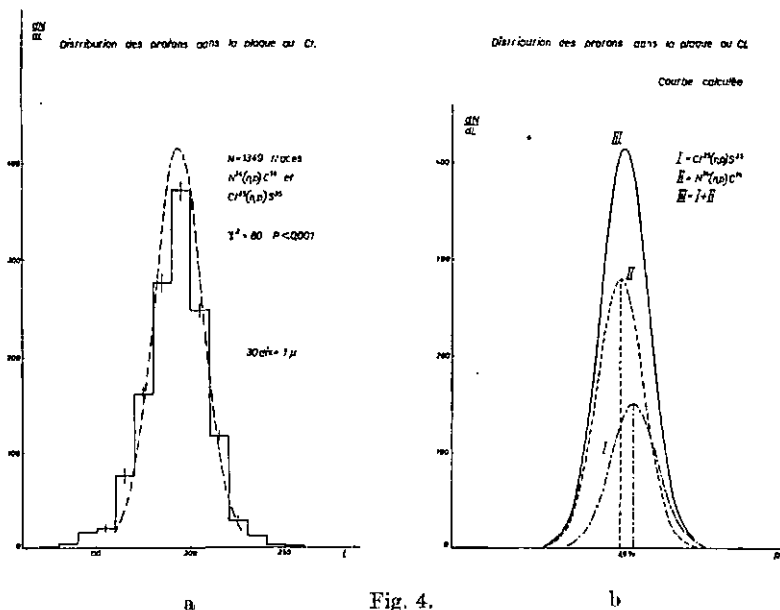


Fig. 4.

graphique 4b donne la courbe obtenue avec le décalage optimum de 3,6% et le graphique 4a cette même courbe reportée sur l'histogramme.

La variation attendue $\Delta R/R$ peut être déterminée à partir d'une relation de la forme $R = hE^k$ dans laquelle le coefficient k pour l'émulsion Ilford a été trouvé égal à 1,5. En prenant pour les protons de l'azote et ceux du chlore les valeurs $E_N = 0,584$ MeV et $E_{Cl} = 0,598$ MeV on obtient alors précisément $\Delta R/R = 3,6\%$.

Ceci démontre bien l'existence dans la plaque au Cl de deux groupes de protons et détermine l'écart d'énergie comme étant de 2,4%, ce qui est en excellent accord avec les valeurs calculées des Q .

IV. Etablissement de la courbe parcours-énergie pour les protons du domaine 0—1 MeV, dans l'émulsion au chlore.

L'établissement de la courbe parcours-énergie pour les protons dans l'émulsion au BrAg a fait l'objet de nombreux travaux (réf. 49 à 53). Dans le domaine d'énergie 0—1 MeV le calcul rigoureux du freinage dE/dx et par suite du parcours R est impossible.

Le fait que, dès que la vitesse de la particule atteint celle des électrons, les couches électroniques correspondantes cessent de participer au freinage, ainsi que l'apparition de phénomènes secondaires tels que la variation de charge de la particule nécessitent dans la formule de BETHE-BLOCH des termes correctifs pas encore calculés. Cette formule a cependant été utilisée de façon semi-empirique par M. BOGAARDT⁵⁴) pour établir la courbe relative aux α , de laquelle il a déduit celle des protons par la relation :

$$Rp = 1,007 R_{\alpha} (3,97E) - 1,2 \mu.$$

J. H. WEBB⁵³) a établi sa courbe en calculant le stopping power de l'émulsion par rapport à l'air, utilisant pour les pouvoirs de freinage (stopping power) des éléments constitutants les valeurs calculées par BETHE pour les α . L. VIGNERON⁵⁵) a calculé la courbe des protons pour des énergies supérieures à 1 MeV et inférieures à 0,4 MeV — utilisant les différents potentiels mesurés — et effectué le raccordement dans la zone intermédiaire.

Si l'on excepte la courbe de J. ROTBLAT⁵⁶) établie de façon purement expérimentale en joignant les différents points de mesure systématiquement déterminés, dans tous ces travaux ont été introduites des grandeurs déterminées pour les α : stopping powers relatifs à l'air ou potentiels d'ionisation et ceci dans un domaine d'énergie où la correspondance α -proton n'est pas parfaitement assurée.

Actuellement nous disposons d'un certain nombre de mesures de pouvoir de freinage de différents éléments *pour les protons*, dans le domaine des *basses énergies*. Il nous a semblé judicieux d'essayer d'établir la courbe parcours-énergie uniquement à partir de ces données et de la composition des émulsions.

Principe.

Les pouvoirs de freinage des éléments constitutants de l'émulsion sont considérés comme indépendants et additifs. A partir du dE/dx de chaque élément et de la composition de l'émulsion on a calculé la fonction dE/dx pour l'émulsion comme somme des contributions

partielles de chaque constituant. L'intégration de la fonction inverse donne la courbe $R = f(E)$. La méthode a d'abord été appliquée à l'émulsion Ilford C₂ dans le but de comparer la courbe ainsi obtenue aux courbes déjà établies. La correspondance des courbes peut être considérée comme un critère de la méthode et autoriser son emploi dans le cas de l'émulsion au chlore.

Les données expérimentales.

Elles sont le résultat d'une série d'investigations par les groupes de Chicago, de Californie, d'Ohio State University et de Copenhague. Dans le domaine d'énergie inférieure à 1 MeV, les mesures ont porté sur 21 éléments dont le Z varie de 1 à 83 (réf. 57 à 65)*).

Plusieurs éléments ont été étudiés par différents groupes, les uns avec une excellente concordance, les autres, tel Au, Ag avec des résultats loin d'être satisfaisants. Un certain nombre de valeurs avait déjà été rassemblé par ALLISON et WARSHAW⁶⁰) qui, dans le cas où ils ont pu expliquer les divergences obtenues, ont raccordé les valeurs des différents groupes.

a) Détermination du dE/dx pour les éléments constituant les émulsions.

Les constituants des deux émulsions sont : H C N O $\boxed{\text{S Cl Br}}$ Ag $\boxed{\text{I}}$. On n'a aucune indication sur le pouvoir de freinage des éléments encadrés. Quant aux autres, seul N a fait l'objet de mesures couvrant tout le domaine considéré. Il s'agit donc de trouver le dE/dx , d'une part pour les éléments non encore mesurés, d'autre part pour les domaines d'énergie non encore explorés des autres éléments.

Le premier problème a été résolu de la façon suivante: pour chaque énergie de 50 en 50 keV, entre 200 et 1000 keV, on a reporté les valeurs de dE/dx en fonction de Z et tracé une courbe moyenne, sur laquelle on a interpolé le dE/dx pour les éléments S, Cl, Br et I. On a pu construire ainsi le $dE/dx = f(E)$ pour chacun de ces éléments.

Après différents essais, nous n'avons retenu pour la construction des courbes d'interpolation que les points certains, c'est-à-dire ceux qui résultent de mesures cohérentes de la part de différents groupes. D'autre part, comme les courbes $dE/dx = f(Z)$ sont difficiles à tracer, surtout pour les grandes valeurs de Z , nous nous sommes bornés aux $Z < 50$.

*) Les graphiques construits sur ces données peuvent être communiqués sur demande aux lecteurs intéressés.

Aux basses énergies, et pour les grandes valeurs de Z , les points expérimentaux s'écartent d'une courbe monotone. Ceci peut s'expliquer en partie par les erreurs de mesures, celles effectuées sur un même élément par trois groupes différents peuvent différer de 20%. Par ailleurs le phénomène de freinage en lui-même peut présenter des discontinuités dans sa variation avec Z . La part qui revient à l'une et l'autre cause ne pourrait être déterminée que si l'on connaissait avec certitude la précision des mesures.

Le fait que pour une même énergie la variation du pouvoir de freinage avec Z puisse s'inverser (cas de N_2 et Ne et de A et Cu aux basses énergies) semble infirmer notre procédé d'évaluation du dE/dx pour les éléments non encore étudiés. Remarquons que ces anomalies se produisent seulement pour les énergies très faibles aux environs du maximum de dE/dx , dans un domaine où nous n'avons pas eu besoin de faire d'interpolation. Parmi les éléments de grand Z seul I nous intéresse. Même si nous commettons une erreur relativement grande sur le pouvoir de freinage de cet élément, le résultat final n'en est pas sensiblement affecté vu la très faible concentration d'iode dans l'émulsion.

Pour les éléments légers, aux énergies supérieures à 0,2 MeV notre évaluation empirique du dE/dx semble justifiée. On peut s'en rendre compte par le cas de C . Aucune mesure directe de pouvoir de freinage n'a été effectuée pour cet élément. Mais à partir des freinages moléculaires de CH_4 , C_2H_2 , C_2H_4 et C_6H_6 , mesurés pour des énergies comprises entre 30 et 600 keV, l'équipe de Californie a calculé le pouvoir de freinage de C , connaissant celui de H . Les résultats sont donnés de 100 à 600 keV. Pour les énergies comprises entre 600 et 1000 keV nous avons pris les valeurs données par interpolation sur nos courbes $dE/dx = f(Z)$ à chaque énergie. Ces deux séries de valeurs donnent des courbes qui se raccordent parfaitement.

Au-dessous de 200 keV les courbes $dE/dx = f(Z)$ ne peuvent plus être tracées de façon suffisamment précise; on a préféré extrapoler la courbe $dE/dx = f(E)$ pour l'élément considéré dans le domaine 100—200 keV — partie pointillée de chaque courbe. On connaît l'allure générale de $dE/dx = f(E)$: la courbe passe par un maximum pour une certaine énergie puis décroît quand l'énergie augmente. Rien ne permet de prévoir à quelle énergie se situe ce maximum. Cependant, on remarque pour les éléments légers et les gaz rares qui ont été étudiés jusqu'aux très faibles énergies, qu'il correspond toujours à une énergie inférieure à 150 keV. Il se place à 100 keV pour les quatre hydrocarbures étudiés par A. S. DUNBAR⁵⁸). Il semble que jusqu'à 100 keV on puisse extrapoler sans risque de commettre une grave erreur.

Pour obtenir le dE/dx de H_2 , au-dessus de 600 keV, on a utilisé la courbe donnant le parcours des protons dans l'hydrogène⁶⁶). Celui de O_2 a été déterminé à partir du pouvoir de freinage de l'air tiré de la courbe $R = f(E)$ des protons dans l'air⁶⁷). Le graphique 6 montre que les valeurs ainsi calculées se raccordent bien avec celles mesurées pour l'un et l'autre élément (fig. 5).

Le cas le plus difficile est celui de Ag. En effet, cet élément qui fournit la plus grande participation au freinage est l'un de ceux pour lesquels les mesures ont donné les résultats les plus divergents :

ALLISON renonçait à raccorder les valeurs de WARSHAW et celles de MADSEN de 10% supérieures. Les mesures toutes récentes de CHILTON, COOPER et HARRIS⁶²⁾⁶³⁾ donnent des valeurs encore plus

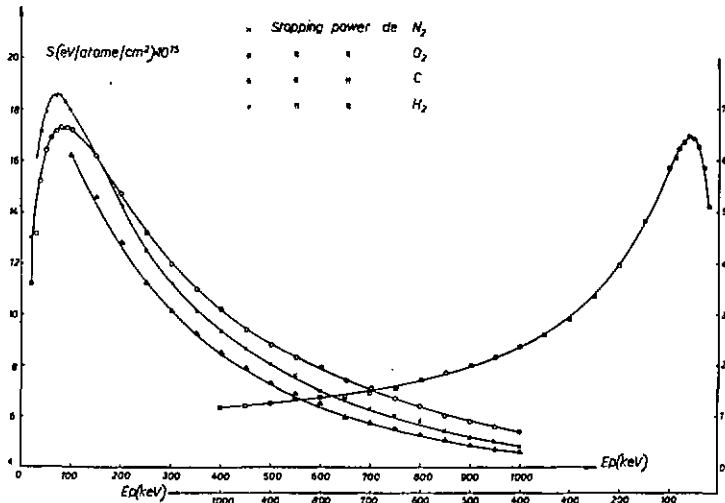


Fig. 5.

élevées. Dans notre travail, nous avons traité Ag comme un élément dont on ne connaîtrait pas le pouvoir de freinage et nous avons utilisé pour le calcul les valeurs déduites de nos courbes par interpolation. Les valeurs ainsi obtenues sont très proches de celles de COOPER, mais légèrement inférieures. Des mesures de WARSHAW, les seules pour les énergies inférieures à 300 keV, nous avons gardé les résultats suivants : le maximum de dE/dx se produit pour 150 keV et la valeur du pouvoir de freinage est sensiblement la même à 100 et à 200 keV. Signalons que c'est surtout la mauvaise connaissance du pouvoir de freinage de Ag qui limite la précision de la courbe finale. Le tableau II donne les valeurs de dE/dx employées dans le calcul pour chaque élément et à chaque énergie.

Tableau II.
Stopping power des constituants de l'émulsion.
 — valeurs adoptées pour les calculs —

<i>E</i> (keV)	100	150	200	250	300	350	400	450	500	550	600	650	700	750	800	850	900	950	1000
H	5,83	4,70	3,90	3,33	2,90	2,57	2,35	2,14	1,97	1,82	1,70	1,55	1,47	1,40	1,33	1,29	1,21	1,2	1,1
C	16,25	14,6	12,7	11,28	10,20	9,30	8,54	7,94	7,38	6,95	6,55	6,0	5,7	5,5	5,3	5,0	4,9	4,7	4,6
N	17,9	16,1	14,2	12,5	11,2	10,13	9,34	8,62	8,08	7,61	7,0	6,6	6,3	6,0	5,7	5,4	5,2	5,0	4,8
O	17,2	16,2	14,70	13,26	11,99	11,01	10,23	9,45	8,84	8,38	7,91	7,40	7,08	6,7	6,4	6,1	5,8	5,6	5,4
S	22	20,8	19,3	17,7	16,4	15,5	14,6	13,7	13,2	12,4	12	11,3	11,0	10,6	10,2	9,9	9,6	9,3	9,2
Cl	25,5	23,0	21,0	19,0	17,0	15,8	14,9	14,0	13,5	12,8	12,3	11,8	11,5	11,1	10,6	10,4	10,0	9,7	9,6
Br	32 30,3	30,9 30,4	29,2	27,0	25,2	23,6	22,4	21,2	20,3	19,2	18,4	17,8	17,2	16,5	15,8	15,2	14,8	14,4	14,0
Ag	33,0	34,0	33,0	31,2	29,5	28,0	26,6	25,2	24,0	22,8	21,8	20,6	19,8	19,0	18,2	17,6	16,8	16,4	16,0
I	40 30	37 34	35,0	33,0	31,0	29,8	28,2	27,0	25,4	24,2	22,8	21,8	21,0	20,0	19,2	18,4	17,6	17,0	16,5

Les doubles valeurs indiquées pour Br et I aux énergies 100 et 150 keV correspondent à deux extrapolations possibles.

Pour les énergies supérieures à 150 keV le dE/dx de l'émulsion a été calculé en supposant l'additivité des pouvoirs de freinage. Cette hypothèse peut être considérée comme justifiée au-dessus de 150 keV. Les travaux de DUNBAR, WENTZEL et WHALING dans leurs

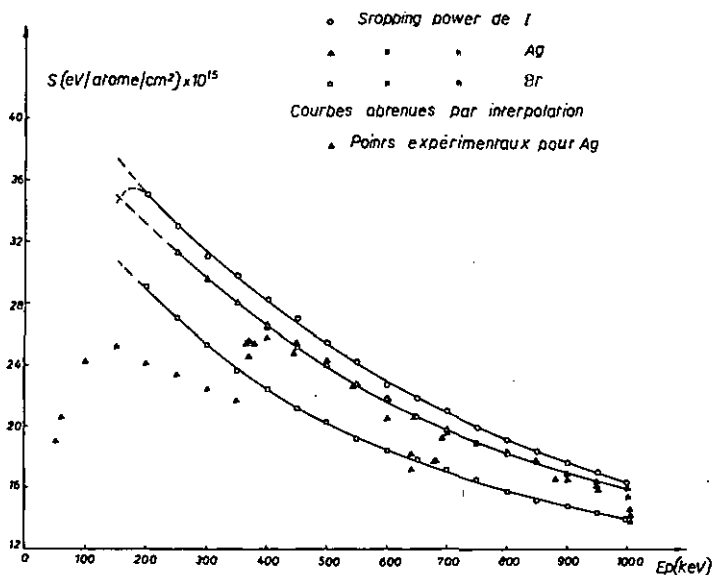


Fig. 6.

mesures déjà citées sur N_2O_2 , H_2O , NH_3 , NO_2 ont en effet montré qu'à 2% près, dans le domaine 150—600 keV, la règle de Bragg est vérifiée avec cependant une déviation non encore expliquée de 4% pour NO. Au-dessous de cette valeur les déviations peuvent atteindre 10%, le pouvoir de freinage de la molécule étant toujours inférieur à la somme des pouvoirs de freinage des constituants. C'est la raison pour laquelle nous n'avons pas déduit le dE/dx du chlore des valeurs données par la mesure de cette grandeur pour le tétrachlorure de carbone aux faibles énergies.

Un fait encore est à signaler: dans notre calcul, seuls interviennent la composition de l'émulsion et le pouvoir de freinage des constituants. Or, certains expérimentateurs ont signalé une différence de pouvoir de freinage entre les différents types d'émulsions Ilford: augmentation de 0,3% des E_1 par rapport aux C_2 et de 1% des G_5 par rapport aux C_2^{50}). Or, ces émulsions sont toutes de même com-

position chimique ce qui semblerait indiquer que non seulement cette dernière mais aussi les dimensions des grains jouent un rôle dans le freinage.

b) $R = f(E)$ pour les émulsions.

L'intégration des fonctions inverses n'est rigoureusement possible qu'à partir de 150 keV. On peut cependant, en première approximation, essayer d'extrapoler la courbe jusqu'à l'énergie 0, quitte à rajuster légèrement la courbe au moyen d'un point expérimental.

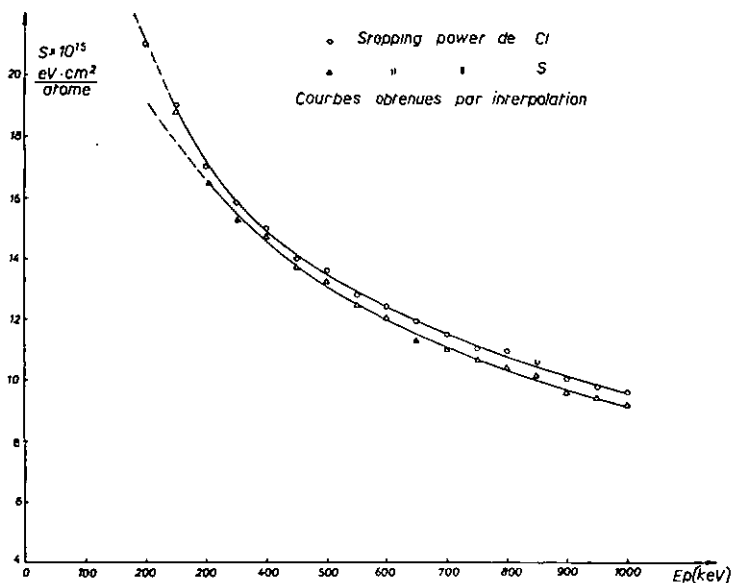


Fig. 7.

Remarquons d'ailleurs que cette erreur n'affecte de façon sensible que la région des très basses énergies où la courbe perd son intérêt pratique, car les traces ont alors des longueurs trop faibles pour être mesurées avec précision.

Les relations $R = f(E)$ déduites des courbes précédentes sont représentées sur les graphiques 8 et 9. Au-dessous de 150 keV, une courbe arbitraire a été tracée en pointillé. On voit que la courbe relative à l'émulsion au Cl serait située légèrement au-dessous de celle relative à l'émulsion Ilford pour les faibles énergies et au-dessus à partir de 500 keV.

c) *Points expérimentaux.*

Avant de placer les points de mesure des autres investigateurs, il convient de préciser les notions de *parcours* et de *trace*. Considérons d'abord le cas d'une seule particule chargée. Nous avons vu que le *parcours* correspond au trajet de la particule jusqu'à ce que son énergie soit devenue négligeable; la *trace*, qui est la grandeur accessible à la mesure, est liée aux propriétés ionisantes de la particule

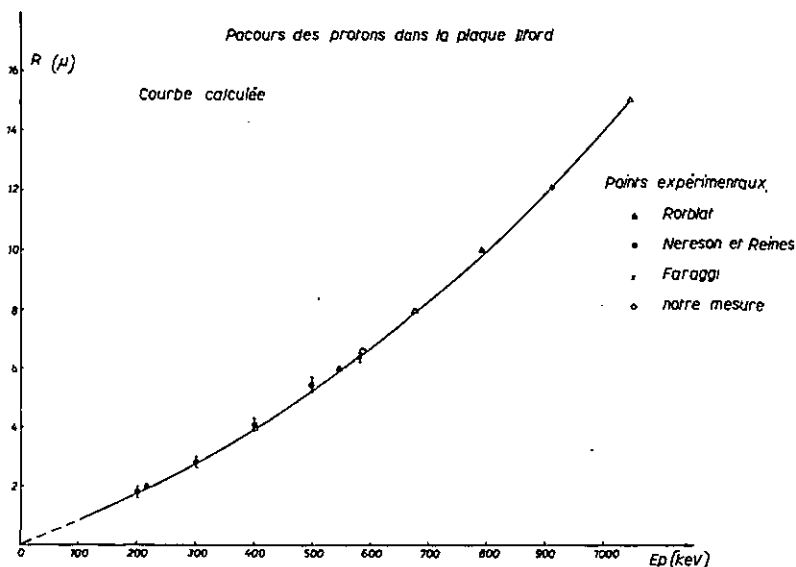


Fig. 8.

et définit le trajet qu'elle parcourt de la rencontre du premier grain sensible jusqu'au dernier grain qu'elle peut encore rendre développable.

L'équivalence parcours-trace n'est pas rigoureusement assurée et il est difficile d'établir une relation entre ces deux grandeurs. Dans les émulsions actuelles, aux grains très fins et très serrés, le cas où le parcours d'une particule isolée est plus long que la trajectoire visible par suite du manque d'un grain aux extrémités doit être relativement rare. La distance entre les centres des grains extrêmes pourrait alors être considérée comme la grandeur se rapprochant le plus du parcours de la particule. Nous avons déjà signalé que ces centres sont difficiles à repérer sur les traces observées au microscope, dont les grains, surtout en fin de trajectoire, sont souvent amalgamés et par conséquent indiscernables.

Lorsque, comme ici, la particule prend naissance dans l'émulsion, la trace visible comprend en outre la trajectoire du noyau de recul. Dans le cas de l'azote, celui-ci (C^{14}) a son origine dans la gélatine; dans le cas du chlore, S^{35} est formé à l'intérieur d'un grain sensible. Il est difficile de prévoir le parcours de ces noyaux. Une seule mesure a été tentée en 1951 par H. FARAGGI⁴⁸), par application de la délicate technique d'effacement partiel qui consiste à affaiblir la trace jusqu'à ce que la lacune qui se crée permette de situer l'origine de la transmutation. D'après ses mesures la trace du noyau de recul C^{14} serait $0,3 \pm 0,2 \mu$. S^{35} , emportant une énergie deux fois plus faible et une charge presque triple, aura un parcours dans l'émulsion d'autant plus restreint; on peut le considérer comme négligeable car il est très peu probable que S^{35} sorte du grain où il a pris naissance. On voit donc que la relation parcours-trace doit être étudiée pour chaque cas particulier. Il apparaît que pour les protons de l'azote la distance entre les tangentes aux grains extrêmes est voisine du parcours tandis que pour ceux du chlore, cette distance est vraisemblablement supérieure au parcours.

Tableau III.

Comparaison des points expérimentaux.

Références	E_p (MeV)	Longueur des traces (μ)
H. FARAGGI ⁴⁸)	0,59	$6,4 \pm 0,15$
	0,91	$12,1 \pm 0,06$
J. ROTBLAT ⁶⁶)	0,215	2
	0,40	4
	0,545	6
	0,675	8
	0,79	10
	1,045	15
N. NERENSON et F. REINES ⁶⁸)	0,2	$1,75 \pm 0,15$
	0,3	$2,85 \pm 0,15$
	0,4	$4,1 \pm 0,2$
	0,5	$5,5 \pm 0,2$
Notre mesure	0,59	$6,61 \pm 0,01$

La bonne concordance de la courbe pour l'émulsion Ilford et des points expérimentaux montre qu'on peut désormais construire les courbes $R = f(E)$ pour les protons dans les émulsions en utilisant seulement les données relatives à ces particules, ce qui aux faibles

énergies est la seule méthode correcte. A mesure que les déterminations de pouvoir de freinage se feront plus nombreuses et plus exactes, les courbes d'étalonnage pourront être précisées, ce qui permettra entre autres un contrôle expérimental rigoureux des énergies de réaction.

Sur la courbe $R = f(E)$ pour l'émulsion au chlore, est reporté notre point de mesure de la longueur de trace $l = 6,54 \mu$ correspondant aux protons d'énergie moyenne $0,59 \text{ MeV}$. Il n'y a pas lieu

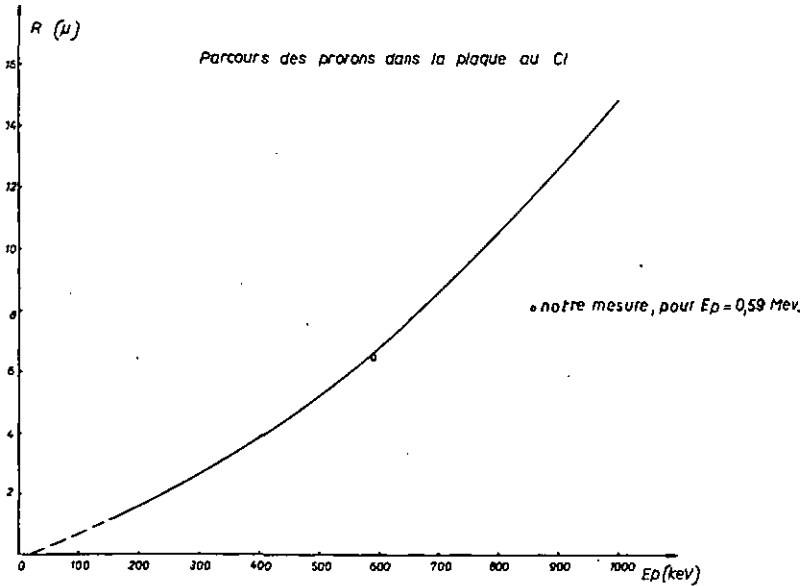


Fig. 9.

actuellement d'ajuster la courbe à ce point expérimental vu que la relation parcours-trace n'est pas connue de façon suffisamment précise (fig. 9).

V. Emulsions nucléaires.

a) Composition chimique.

Les résultats des microanalyses effectuées sur les émulsions dont nous nous sommes servis dans ce travail sont consignés dans le tableau suivant:

Plaque au Cl	H	C	N	O	Cl	Ag	
Emulsion non traitée .	1,00	6,70	2,49	5,42	20,55	62,55	%
	1,05	6,52	2,37	—	20,55	62,55	
Emulsion traitée . . .	—	—	—	—	20,45	62,16	
	6,58	49,22	—	—	—	—	

Plaque Ilford	H	C	N	O	S	Br	Ag	I
Emulsion non traitée. .	1,22	6,79	1,65	6,37	0,4	0,83	34,8	47,9
	1,13	6,70	1,68	—	—	0,87	34,6	48,4
Emulsion traitée . . .	6,93	49,12	14,64	25,95				
	—	—	14,44	—				

D'autres déterminations, sur des plaques au Cl de coulées différentes ont donné pour les sels d'Ag:

	Cl	Ag	Cl	Ag	Cl	Ag
en %	20,15	61,40	19,75	60,10	20,15	60,65
	20,15	61,40	19,65	60,75	19,75	60,15

Dans le cas des plaques Ilford, ces nombres peuvent être comparés aux valeurs indiquées par le fabricant pour l'émulsion dans les conditions du laboratoire et aux valeurs trouvées dans la littérature pour les émulsions complètement desséchées⁶⁹).

b) Degré hygroscopique.

Les données relatives aux plaques Ilford peuvent être trouvées dans BEISER⁶⁹). Une seule détermination a été faite pour les plaques au Cl par un laboratoire spécialisé et a montré que la perte en eau, lorsque l'émulsion prise initialement dans les conditions du laboratoire est desséchée sous vide, est de 1,83%.

c) Variation de masse au cours du développement.

La composition de l'émulsion telle qu'elle est donnée par le fabricant dans les conditions du laboratoire laisse prévoir qu'il resterait le 17% du poids initial après traitement complet de l'émulsion si on suppose que tous les sels d'Ag et eux seuls sont éliminés. Dans les différents essais qui ont été faits, la masse résiduelle obtenue est toujours inférieure à ce nombre:

15,18%	15,16%	15,23%	pour des D_1
12,75%	12,84%		pour des E_1

tandis que des C_2 , 30 μ de 2 coulées différentes ont donné respectivement 11,62 et 11,89%.

Dans les émulsions contenant une certaine quantité de glycérine ce produit est certainement entraîné lors du développement. On a constaté de plus que pour un même type de plaque, la variation de masse peut être très différente si les conditions de développement et en particulier les temps de fixation et de lavage, ne sont pas rigoureusement les mêmes⁷⁰).

d) *Coefficient d'affaissement de la nouvelle émulsion.*

Avec l'hypothèse faite ci-dessus, on peut s'attendre pour la nouvelle émulsion à un coefficient d'affaissement égal à $s = 2,02$. Les valeurs mesurées ont toujours été supérieures et ont donné comme moyenne $s = 2,17$. Ce coefficient peut être ramené à 1 par immersion pendant 1 heure à 20°C dans une solution à 10% de glycérine³⁹), mais les émulsions ainsi traitées se sont altérées au bout de quelques mois.

Les conclusions qui s'imposent sont les suivantes:

1^o La connaissance satisfaisante de la teneur d'une émulsion en un élément déterminé ne peut être obtenue que par une micro-analyse effectuée sur un échantillon de la plaque sur laquelle se font les mesures mêmes.

2^o Bien que cette exigence rende les microanalyses plus difficiles, celles-ci doivent se faire sur l'émulsion non traitée, avant irradiation, et non sur l'émulsion développée.

3^o Pour les éléments autres que H et O, on a intérêt à effectuer les analyses et les pesées d'émulsion lorsque celle-ci est complètement desséchée.

VI. Conclusions.

1^o L'utilisation d'une émulsion nucléaire spéciale contenant l'élément Cl d'une façon parfaitement homogène et dosable, a permis la première mesure précise de la section efficace de la réaction $\text{Cl}^{35}(n, p)\text{S}^{35}$ par comparaison avec la réaction $\text{N}^{14}(n, p)\text{C}^{14}$. Le résultat obtenu $\sigma = 0,30 \pm 0,01$ barn, pour des neutrons d'énergie moyenne $\bar{E} = 0,025$ eV, est en bon accord avec deux des trois mesures déjà publiées³⁴). Le rapport expérimental $\sigma(n, p)/\sigma(n, \gamma)$ et les données déjà connues sur le noyau Cl^{36} permettent une évaluation de la pénétrabilité de la barrière de potentiel qui favorise la valeur $r_0 = 1,30 \cdot 10^{-13}$ cm dans l'expression pour le rayon nucléaire $R = r_0 A^{1/3}$.

2^o La détermination expérimentale de l'écart des énergies de réaction Q de Cl^{35} et de N^{14} confirme les prédictions tirées soit des valeurs de masse soit de la limite du spectre β . Elle est également en accord avec la mesure directe du Q de N^{14} . Ainsi se trouve démontrée la cohérence des différentes déterminations de ces caractéristiques nucléaires.

3^o En faisant usage uniquement de données expérimentales sur le freinage des protons de faible énergie dans les éléments, une courbe de calibration énergie-parcours pour l'émulsion ordinaire Ilford est établie pour $100 < E_p < 1000$ keV. Ainsi est évité tout

recours aux données relatives au ralentissement des particules α , très contestable dans ce domaine d'énergie. Cette courbe est en accord complet avec les données expérimentales pour ces émulsions. Une courbe d'étalonnage est construite sur les mêmes bases pour la nouvelle émulsion au chlore.

4^o Une analyse chimique soignée des émulsions a fourni des résultats sur la base desquels il est possible de préciser les conditions les plus favorables d'emploi des plaques nucléaires pour la mesure de grandeurs qui dépendent de la concentration dans l'émulsion des divers éléments chimiques.

Je tiens à exprimer toute ma gratitude au professeur J. ROSSEL qui a bien voulu m'accueillir dans son laboratoire, me suggérer ce travail et m'aider constamment au cours de son élaboration.

J'exprime aussi mes remerciements à mes camarades de laboratoire et au personnel de l'atelier, à Mlle M. BERGER pour son aide précieuse dans l'exploration des plaques, à M. C. ZANGGER pour les discussions que nous avons eues ensemble ainsi qu'à la Commission Suisse de l'Énergie Atomique qui a financé ces recherches.

Institut de Physique, Université Neuchâtel.

Bibliographie.

- 1) M. D. KAMMEN, *Phys. Rev.* **60**, 537 (1949).
- 2) A. GIBERT, F. ROGGEN et J. ROSSEL, *Helv. Phys. Acta* **17**, 97 (1944).
- 3) L. SEREN, H. FRIEDLANDER et S. TURKEL, *Phys. Rev.* **72**, 888 (1947).
- 4) W. MAURER, *Z. Naturforsch.* **4a**, 150 (1949).
- 5) A. TOLLESTRUP, W. A. FOWLER et C. C. LAURITSEN, *Phys. Rev.* **78**, 372 (1950).
- 6) *Experimental Nuclear Physics*, Vol. 1, p. 745 (E. Segré), New York 1953.
- 7) L. M. LANGER, H. MOTZ et H. C. PRICE, *Phys. Rev.* **77**, 798 (1950).
- 8) P. M. ENDT et J. C. KLUYVER, *Rev. Mod. Phys.* **26**, 97 (1954).
- 9) H. BERTHET et J. ROSSEL, *Helv. Phys. Acta* **27**, 159 (1954).
- 10) *Experimental Nuclear Physics*, Vol. 1, p. 682.
- 11) *Nuclear Data*, N. B. S. Circular 499.
- 12) F. E. STENFLE et W. R. CHAMPION, *Nuovo Cim.* **12**, 549 (1954).
- 13) R. F. TASCHER, H. V. ARGO, A. HEMMENDINGER et G. A. JARVIS, *Phys. Rev.* **76**, 325 (1949).
- 14) D. J. HUGHES et C. EGGLE, *Phys. Rev.* **73**, 809 (1948).
- 15) J. H. KOON et R. A. NOBLES, *Phys. Rev.* **75**, 1358 (1949).
- 16) R. BATCHELOR, J. S. EPSTEIN, B. H. FLOWERS et A. WHITAKER, *Nature* **163**, 211 (1949).
- 17) R. W. KING, *Rev. Mod. Phys.* **26**, 327 (1954).
- 18) C. W. LI, W. WHALING, W. A. FOWLER et C. C. LAURITSEN, *Phys. Rev.* **83**, 512 (1951).
- 19) E. R. GRAVES et D. I. MEYER, *Phys. Rev.* **76**, 183 (1949).
- 20) D. M. VAN PATTEN et W. WHALING, *Rev. Mod. Phys.* **26**, 402 (1954).
- 21) W. FRANZEN, J. HALPERN et W. E. STEPHENS, *Phys. Rev.* **77**, 641 (1950).

- 22) P. MEYER, *Z. Physik* **128**, 451 (1950).
- 23) L. M. LANGER, J. W. MOTZ et H. C. PRICE, *Phys. Rev.* **77**, 798 (1950).
- 24) P. R. BELL et J. M. CASSIDY, *Phys. Rev.* **76**, 183 (1949).
- 25) T. WRSTERMARK, *Phys. Rev.* **88**, 573 (1952).
- 26) P. HUBER et A. STEBLER, *Phys. Rev.* **73**, 85 (1948).
- 27) E. C. ANDERSON et W. F. LIBBY, *Phys. Rev.* **81** 64 (1951).
- 28) W. E. SCHÖUPP, B. JENNINGS et K. R. SUN, *Phys. Rev.* **75**, 1 (1949).
- 29) F. C. W. COLMER et D. J. LITTLER, *Proc. Phys. Soc.* **63**, 1175 (1950).
- 30) P. CUER J. P. LONGCHAMP et S. GORODETZKY, *J. Phys. Radium* **12**, 6s (1951).
- 31) D. J. HUGHES, *Neutron Pile Research*, 1953, p. 353.
- 32) R. H. HENDRICKS, M. C. BRYNER, L. O. THOMAS et J. O. IVIE, *J. Chem. Phys.* **47**, 469 (1943).
- 33) C. F. G. DELANEY et J. H. J. POOLE, *Phys. Rev.* **89**, 529 (1953).
- 34) B. H. KETELLE, *Phys. Rev.* **80**, 758 (1950).
- 35) P. MACRLIN, L. FELDMAN, L. LIDOFKY et C. S. WU, *Phys. Rev.* **77**, 137 (1950).
- 36) H. FARAGOI, A. BONNET, J. A. COHEN, *Rapport C. E. A. n° 138* (1952).
- 37) A. BONETTI, G. TOMASINI, *Nuovo Cim.* **8**, 2 (1951).
- 38) A. BONETTI, C. C. DILWORTH, G. P. OCCHIALINI, *Bulletin Centre Phys. Nucl. Université de Bruxelles*, n° 13 b.
- 39) G. MEULEMANS et G. MIGNONE, *Sci. Industr. Photo* **23A**, 310.
- 40) Communication privée du centre de HARWELL.
- 41) C. T. HIBDON et C. O. MUEHLHOUSE, *Phys. Rev.* **79**, 44 (1950).
- 42) B. T. FELD, «*Experimental Nuclear Physics*», Segré, 1953.
- 43) A. BETHE et S. LIVINOSTONE, *Rev. Mod. Phys.* **9**, 166 (1937).
- 44) P. MORRISON, «*Experimental Nuclear Physics*», Segré, 1953.
- 45) C. N. MARTIN, *Tables de Physique Nucléaire*.
- 46) P. CUER, *J. Phys. Radium* **8**, 83 (1947).
- 47) R. LOUQUENEUX, *J. Phys. Radium* **11**, 144 (1950).
- 48) H. FARAGOI, *Ann. Physique* **6**, 325 (1951).
- 49) M. BOGAARDT et L. VIGNERON, *J. Phys. Radium* **11**, 652 (1950).
- 50) L. VIGNERON, *C. r.* **223**, 1121 (1946).
- 51) P. CUER et C. JUNG, *Sci. Industr. Photo* **22**, 401 (1951).
- 52) P. CUER, *C. r.* **223**, 1121 (1946).
- 53) J. H. WEBB, *Phys. Rev.* **74**, 511 (1948).
- 54) M. BOGAARDT, Thèse, Utrecht 1953.
- 55) L. VIGNERON, *J. Phys. Radium* **14**, 145 (1953).
- 56) J. ROTLAT, *Nature* **167**, 550 (1951).
- 57) J. A. PHILLIPS, *Phys. Rev.* **90**, 532 (1953).
- 58) D. N. F. DUNBAR, H. K. REYNOLDS, W. A. WENTZEL et W. WHALING, *Phys. Rev.* **92**, 742 (1953).
- 59) P. K. WEYL, *Phys. Rev.* **91**, 289 (1953).
- 60) S. K. ALLISON et S. D. WARSHAW, *Rev. Mod. Phys.* **25**, 779 (1953).
- 61) C. B. MADSEN et P. WANKATESWARLU, *Phys. Rev.* **74**, 1782 (1948).
- 62) A. B. CHILTON, J. N. COOPER et J. C. HARRIS, *Phys. Rev.* **93**, 413 (1954).
- 63) J. N. COOPER, Communication privée.
- 64) D. KAHN, *Phys. Rev.* **93**, 413 (1954).
- 65) S. D. WARSHAW, *Phys. Rev.* **76**, 1759 (1949).
- 66) H. A. BETHE, *Rev. Mod. Physics* **22**, 218 (1950).
- 67) M. C. WALSKE et L. EYGES, cité dans «*Experimental Nuclear Physics*», p. 196.
- 68) N. NERESON et F. REINES, *Rev. Sci. Instr.* **21**, 534 (1950).
- 69) A. BEISER, *Rev. Mod. Physics* **24**, 273 (1952).
- 70) A. J. OLIVER, *Rev. Sci. Instr.* **25**, 326 (1954).

CURRICULUM VITAE.

Né le 21 août 1923 à Villard-sur-Boège (France).
Etudes primaires à Lyon, secondaires à Thonon, Uni-
versitaires à Lyon. Préparation du doctorat à l'Institut
de Physique Neuchâtel sous la direction du Professeur
J. ROSSEL.