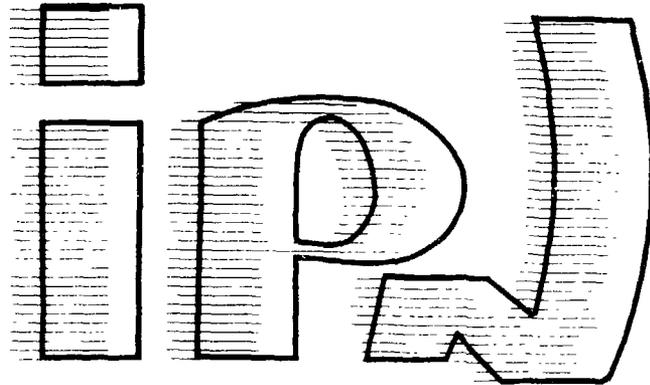


FR 90 01290

I.P.N. BP n°1 - 91406 ORSAY

institut de physique nucléaire  
CNRS - IN2P3 - UNIVERSITÉ PARIS - SUD



MISE EN EVIDENCE D'UNE STRUCTURE FINE  
DANS LA RADIOACTIVITE  $^{14}\text{C}$

L.Brillard, A.G.Elayi, E.Hourani, M.Hussonnois,  
J.F.Le Du, L.H.Rosier et L.Stab

Institut de Physique Nucléaire, 91406 Orsay, France

IPNO-DRE 89-30

MISE EN EVIDENCE D'UNE STRUCTURE FINE  
DANS LA RADIOACTIVITE  $^{14}\text{C}$

L.Brillard, A.G.Elayi, E.Hourani, M.Hussonnois,  
J.F.Le Du, L.H.Rosier et L.Stab

Institut de Physique Nucléaire, 91406 Orsay, France

IPNO-DRE 89-30

*In press in the Journal "C.R. Acad. Sci. Paris"*

## MISE EN EVIDENCE D'UNE STRUCTURE FINE

### DANS LA RADIOACTIVITE $^{14}\text{C}$

L. Brillard, A.G. Elayi, E. Hourani, M. Hussonnois, J.F. Le Du, L.H. Rosier et L. Stab  
*Institut de Physique Nucléaire, 91406 Orsay, France*

**Résumé :** La mesure de l'énergie des noyaux de  $^{14}\text{C}$  émis par  $^{223}\text{Ra}$  a été réalisée en utilisant une source intense de  $^{227}\text{Th}$ , le spectromètre à grand angle solide SOLENO et des détecteurs solides performants. Les différents spectres relevés présentent deux pics très nets dont les centroïdes correspondent à des transitions vers le niveau fondamental et le premier état excité du noyau résiduel  $^{209}\text{Pb}$ , ainsi que quelques événements que l'on peut attribuer à la transition vers le deuxième et/ou le troisième état excité. Ce résultat montre pour la première fois l'existence d'une structure fine en radioactivité  $^{14}\text{C}$  analogue à celle déjà connue en radioactivité  $\alpha$ . Les rapports d'embranchement des transitions vers l'état fondamental et le premier état excité sont de  $0,15 \pm 0,03$ , de  $0,81 \pm 0,06$  et de l'ordre de 0,04 pour l'ensemble des deux états suivants, ce qui conduit à des facteurs d'empêchement de, respectivement, 600, 3 et 3.

### EVIDENCE FOR A FINE STRUCTURE IN $^{14}\text{C}$ RADIOACTIVITY

**Abstract :** An experiment on the radioactivity of  $^{223}\text{Ra}$  by  $^{14}\text{C}$  emission has been performed, using an intense  $^{227}\text{Th}$  source of 150 MBq (4 mCi) and the spectrometer of large solid angle SOLENO. The measured energy spectrum of the emitted  $^{14}\text{C}$  nuclei clearly shows the presence of two peaks at the expected locations corresponding to transitions towards the ground state and the first excited state of the residual nucleus  $^{209}\text{Pb}$ . A few events fall on the second and/or the third excited state location. This result shows for the first time the existence of a fine structure in  $^{14}\text{C}$  radioactivity analogous to the one already known in  $\alpha$ -decay. The branching ratios of the transitions to the ground state and to the first excited state are  $0.15 \pm 0.03$  and  $0.81 \pm 0.06$  and the hindrance factors are 600 and 3, respectively.

## ABRIDGED ENGLISH VERSION

Recently, the  $^{14}\text{C}$  radioactivity from  $^{223}\text{Ra}$  was discovered [1]. This has been followed by the identification of  $^{14}\text{C}$ ,  $^{24}\text{Ne}$  and  $^{28}\text{Mg}$  emissions from other nuclei([2],[3]). Several theoretical models have been developed([4],[5],[6]) for the interpretation of these results and the prediction of others. The performed experiments gave evidence for the type of the emitted particles and carried out their branching ratios relative to  $\alpha$  emission from the same parent nucleus. The energy resolution in these experiments was sufficient to identify the  $Q$  value of the decay but insufficient to determine whether transitions to excited states occur.

The present paper describes an experiment performed with a good energy resolution which gives evidence for a fine structure in  $^{14}\text{C}$  radioactivity, analogous to the one discovered, in 1929, by Rosenblum in  $\alpha$  emission [7]. In this experiment, we used the spectrometer with large solid angle SOLENO( described in our precedent papers ([8],[12]) ) to focus  $^{14}\text{C}^{6+}$  ions emitted from  $^{223}\text{Ra}$  on a single Si detector of large area (450 mm<sup>2</sup>). A thin intense source of  $^{227}\text{Th}$  was taken, in which the daughter  $^{223}\text{Ra}$  had an average activity during the measurement of 66 MBq (1.8 mCi). We used a single detector instead of a telescope because we estimated that the emitted particles from  $^{223}\text{Ra}$  have been well identified in previous works as being  $^{14}\text{C}$  nuclei; this allowed to obtain a high quality energy spectrum and an effective solid angle of 200 msr at the maximum of the transmission curve of SOLENO.

The experiment began by a calibration of the detector and the following electronic system with  $^{14}\text{C}$  beam from the 15 MV Tandem accelerator of Orsay. The scattered beam at 30° on a 50  $\mu\text{g}/\text{cm}^2$  Au target had the same energy as that of the  $^{14}\text{C}$  particles emitted by  $^{223}\text{Ra}$ . The energy resolution was of 110 keV with  $^{14}\text{C}$  beam and of 16-17 keV with an  $\alpha$  source.

After two days of background measurement which gave no event in the region of interest, several runs were carried out, in 11 days, with different currents of SOLENO. A resulting energy spectrum non-corrected for the transmission of SOLENO is displayed in figure 1. Two peaks are clearly present at the expected locations of the  $9/2^+$  ground state and the  $11/2^+$  first excited state of  $^{209}\text{Pb}$ . An enhancement at the locations of  $15/2^-$  and  $5/2^+$  states of  $^{209}\text{Pb}$  is also observed. This spectrum gives evidence for a fine structure in  $^{14}\text{C}$  radioactivity. In particular transition to first excited state is stronger than the one related to ground state, similarly to the situation in  $\alpha$  decay for odd emitters.

The analysis of the results (410 events of  $^{14}\text{C}$ ) took into account the transmission of SOLENO and the dependence on time of the activity of the source. A new precise branching ratio of  $(6.4 \pm 0.4) \times 10^{-10}$  was deduced for  $^{14}\text{C}$  radioactivity from  $^{223}\text{Ra}$  relative to  $\alpha$  emission. The branching ratio to ground state is  $(1.0 \pm 0.2) \times 10^{-10}$  relative to  $\alpha$  decay, instead of  $\approx 6 \times 10^{-10}$ , the value previously adopted for normalization in several predictional models.

As it is usual in traditional  $\alpha$  decay analysis, we plotted in figure 2 the decimal logarithm of the half-life versus  $Q^{-1/2}$ , for  $^{14}\text{C}$  emission from radium isotopes. The data were deduced from measured branching ratios relative to  $\alpha$  emission. Transitions from even-even nuclei  $^{222}\text{Ra}$ ,  $^{224}\text{Ra}$  and  $^{226}\text{Ra}$  were assumed to lead to ground states of daughter nuclei, and for the only known even-odd one, i.e.,  $^{223}\text{Ra}$ , the results of the present work were taken. Data for emissions from even-even isotopes are on a straight line, whereas those from  $^{223}\text{Ra}$  are apart. Hindrance factors deduced for transitions from  $^{223}\text{Ra}$  to first excited and ground states of  $^{209}\text{Pb}$  are 600 and 3 respectively. Hindrance factors for possible transitions to either the second or the third excited state would be 3 and 2, respectively. Assuming hindrance factors equal to one for transitions by  $^{14}\text{C}$  emission from even-even  $^{222}\text{Ra}$ ,  $^{224}\text{Ra}$  and  $^{226}\text{Ra}$  to first excited states in the corresponding residual nuclei allows to predict for these transitions branching ratios of 0.001%, 2.5% and 0.1% respectively relative to the ground state.

## 1. Introduction

Récemment, Rose et Jones [1] ont découvert la radioactivité  $^{14}\text{C}$  de  $^{223}\text{Ra}$  caractérisée par un rapport d'embranchement d'environ  $6 \cdot 10^{-10}$  relativement à l'émission  $\alpha$  du même noyau. Depuis, des radioactivités  $^{14}\text{C}$ ,  $^{24}\text{Ne}$  et  $^{28}\text{Mg}$  avec des rapports d'embranchement plus faibles ont été découvertes à partir d'autres noyaux ([2],[3]). Toutes ces radioactivités conduisent au noyau doublement magique  $^{208}\text{Pb}$  comme noyau fils, ou à un noyau immédiatement voisin. Les expériences qui ont été effectuées se sont attachées à mettre en évidence ces radioactivités en identifiant les particules émises et en mesurant leurs rapports d'embranchement relativement aux émissions  $\alpha$ . Pour des raisons variées, aucune de ces expériences n'a pu aboutir à une mesure assez précise du spectre d'énergie des particules émises pour étudier l'existence d'une structure fine analogue à celle déjà connue en radioactivité  $\alpha$ .

Ces découvertes expérimentales ont été précédées et guidées par des prévisions théoriques ([4],[5]) basées sur des modèles simples de fission très asymétrique. Elles rendaient compte du type de particule émise et de l'ordre de grandeur de son rapport d'embranchement relativement à l'émission  $\alpha$ . Plus récemment, des modèles microscopiques [6] supposant une préformation de la particule émise dans le noyau émetteur ont été développés et ont déjà donné un accord satisfaisant avec les résultats expérimentaux.

Dans ce contexte expérimental et théorique, nous avons effectué une mesure précise de l'énergie des noyaux de  $^{14}\text{C}$  émis par  $^{223}\text{Ra}$  qui a mis en évidence l'existence d'une structure fine dans la radioactivité  $^{14}\text{C}$  de  $^{223}\text{Ra}$ , analogue à celle découverte en 1929 par Rosenblum dans les émissions  $\alpha$  [7]. L'interprétation de ce résultat par les modèles précités constituera sans doute un test de leur validité ou un guide vers leur affinement.

## 2. Méthode expérimentale

Plusieurs expériences ont déjà été réalisées concernant la mesure de la radioactivité  $^{14}\text{C}$  de  $^{223}\text{Ra}$ . Toutes ont conduit à l'identification soit en  $Z$  soit en  $A$  de la particule émise; la résolution en énergie était pauvre mais suffisante pour identifier la valeur du bilan  $Q$  de réaction par émission de  $^{14}\text{C}$ . Trois expériences ([1],[8],[9]) ont utilisé pour la détection un télescope  $E \times \Delta E$  de détecteurs  $\text{Si}$  permettant d'identifier les noyaux émis par  $^{223}\text{Ra}$  comme étant des ions de carbone. Une expérience [10] a utilisé un détecteur solide de traces avec, également, un pouvoir d'identification en numéro atomique. Enfin, une expérience [11] a effectué une mesure de  $E$ ,  $\Delta E$  et  $B\rho$  des particules émises par  $^{223}\text{Ra}$ , permettant leur identification en  $Z$  et  $A$  comme étant des noyaux de  $^{14}\text{C}$ .

En raison de l'accord entre ces différentes mesures, nous avons estimé qu'il était inutile d'effectuer une identification supplémentaire des particules émises par  $^{223}\text{Ra}$ . C'est pourquoi, au lieu d'utiliser (comme dans nos expériences précédentes ([8],[12]) ) un télescope  $E \times \Delta E$  placé dans le plan focal du spectromètre à grand angle solide SOLENO, nous avons utilisé un seul détecteur Si à grande surface placé également dans son plan focal. Cela permet d'optimiser la qualité de la mesure en énergie des noyaux de  $^{14}\text{C}$  en vue de différencier les raies correspondant à des transitions vers le niveau fondamental et des niveaux excités.

### 2.1. Source radioactive

Une source de  $^{227}\text{Th}$  ( $T_{1/2}=18,7$  j) a été utilisée. Le thorium a été séparé et purifié à partir d'environ  $70 \mu\text{g}$  de  $^{227}\text{Ac}$  sur une colonne échangeuse d'ions en milieu nitrique. La source, d'un diamètre de 10 mm, a été préparée par dépôt électrolytique sur un disque de platine. Celui-ci a été monté dans un boîtier en aluminium fermé par une fenêtre de  $20 \mu\text{g}/\text{cm}^2$  de carbone. Immédiatement après sa préparation et à la fin de l'expérience, l'intensité et la résolution en énergie de la source ont été mesurées avec un détecteur Si dans une géométrie bien définie. L'activité initiale de  $^{227}\text{Th}$  était de 150 MBq (4mCi) et la résolution  $\alpha$  de 35 keV. Cette source a été utilisée environ 2 semaines après sa préparation, ce qui conduit à une activité relativement constante en  $^{223}\text{Ra}$  ( $66 \pm 2$  MBq) durant l'expérience.

### 2.2. Détecteurs

Trois détecteurs Si pour ions lourds de grande surface ( $450 \text{ mm}^2$ ) ont été sélectionnés. Ces détecteurs avec la chaîne électronique ont été étalonnés en énergie au début de l'expérience avec un faisceau de  $^{14}\text{C}$  (diffusé à  $30^\circ$  sur une cible d' Au de  $50 \mu\text{g}/\text{cm}^2$ ) de même énergie que les particules attendues à partir de  $^{223}\text{Ra}$ . Leur résolution en énergie était de 110 keV pour les ions de  $^{14}\text{C}$  et de 16-17 keV pour une source  $\alpha$ .

### 2.3. Spectromètre SOLENO

Les positions de la source et du détecteur sur l'axe du spectromètre SOLENO étaient similaires à celles utilisées dans nos deux expériences précédentes. Par contre, dans cette expérience, l'utilisation d'un détecteur à grande surface a permis d'obtenir un angle solide effectif source-spectromètre de 200 msr au sommet de la courbe de transmission. Cette dernière est assez large en rigidité magnétique pour permettre une transmission supérieure à 90% pour les ions  $^{14}\text{C}^{6+}$  émis par  $^{223}\text{Ra}$  et alimentant les quatre premiers niveaux de  $^{209}\text{Pb}$ . Jusqu'à une énergie d'excitation de 4 MeV la transmission est encore de 50%.

La réjection par le spectromètre d'environ 6 millions de particules  $\alpha$  émises par seconde par la source vers l'entrée du spectromètre était parfaite, puisque le détecteur ne

comptait que 150  $\alpha/s$  provenant pour l'essentiel du radon émanant de la source et de ses descendants.

### 3. Expérience et résultats

Après une mesure de 2 jours de bruit de fond qui n'a donné aucun événement dans la région d'inérêt, l'expérience, d'une durée de onze jours, a comporté plusieurs mesures. Différentes valeurs de courant de SOLENO ont été utilisées pour intervertir sur la courbe de transmission les emplacements des ions  $^{14}\text{C}^{6+}$  menant au fondamental et aux deux premiers niveaux excités, afin d'assurer une meilleure normalisation dans le calcul des rapports d'embranchement.

Sur la figure 1, les spectres en énergie résultant de plusieurs mesures sont additionnés sans correction de transmission. On y voit clairement la présence de deux pics. Ces pics correspondent aux énergies attendues (d'après l'étalonnage avec le faisceau de  $^{14}\text{C}$  du Tandem) pour des noyaux de  $^{14}\text{C}$  émis par  $^{223}\text{Ra}$  vers l'état fondamental et le premier état excité de  $^{209}\text{Pb}$ . Une transition vers le deuxième (et/ou le troisième) état excité est perceptible. Cette figure met donc en évidence l'existence d'une structure fine en radioactivité  $^{14}\text{C}$ , analogue à celle déjà connue en radioactivité  $\alpha$ . En particulier, on observe que la transition vers le premier état excité est plus intense que celle vers l'état fondamental, d'une façon analogue à ce qui est observé dans les émissions  $\alpha$  à partir de noyaux de A impair vers des états excités du noyau fils.

L'analyse des différents spectres obtenus, en tenant compte des normalisations et des corrections de transmission de SOLENO, donnent des rapports d'embranchement en  $^{14}\text{C}$  de  $0,15 \pm 0,03$  et de  $0,81 \pm 0,06$  pour l'état fondamental et le premier état excité, respectivement, et de l'ordre de 0,04 pour l'ensemble des deuxième et troisième états excités.

Dans cette expérience, nous avons détecté 410 noyaux de  $^{14}\text{C}$ . Nous avons déduit pour l'émission de  $^{14}\text{C}$  par  $^{223}\text{Ra}$  un rapport d'embranchement de  $(6,4 \pm 0,4) \cdot 10^{-10}$  relativement à l'émission  $\alpha$ , conduisant à une période telle que  $\log T \text{ (s)} = 15,19$ . En particulier, le rapport d'embranchement vers l'état fondamental est de  $(1,0 \pm 0,2) \cdot 10^{-10}$ , valeur à comparer à  $\approx 6 \cdot 10^{-10}$ , qui a été la base de normalisation pour plusieurs modèles théoriques.

Enfin, par analogie avec l'émission  $\alpha$ , nous avons représenté (Fig.2) les résultats expérimentaux en radioactivité  $^{14}\text{C}$  des isotopes du radium dans un diagramme, où l'on a porté le logarithme décimal de la période en fonction de  $Q^{-1/2}$ , Q étant le bilan énergétique. Les transitions à partir des noyaux pair-pair  $^{222}\text{Ra}$ ,  $^{224}\text{Ra}$  et  $^{226}\text{Ra}$  ont été supposées conduire aux états fondamentaux des noyaux fils; leurs points représentatifs déterminent bien

une droite. Les résultats connus du seul noyau pair-impair  $^{223}\text{Ra}$  proviennent de l'expérience présente. Leurs points représentatifs s'écartent de la droite donnant des facteurs d'empêchement de 600 et 3 respectivement pour les émissions  $^{14}\text{C}$  menant au fondamental et au premier état excité. Les facteurs d'empêchement pour les transitions vers le second ou le troisième état excité seraient 3 et 2 respectivement, valeurs nettement inférieures à celle relative au fondamental. D'autre part, en supposant égaux à un les facteurs d'empêchement des transitions à partir des noyaux  $^{222}\text{Ra}$ ,  $^{224}\text{Ra}$  et  $^{226}\text{Ra}$  vers le premier état excité du noyau fils, on peut prédire d'après la figure 2 pour ces transitions des rapports d'embranchement respectifs de 0,001%, 2,5% et 0,1% relativement à celles vers l'état fondamental.

#### 4. Conclusion

L'utilisation d'une source de  $^{227}\text{Th}$  mince et intense, du spectromètre à grand angle solide SOLENO et d'un système de détection performant a permis de mettre en évidence une structure fine dans la radioactivité  $^{14}\text{C}$  de  $^{223}\text{Ra}$ . Une transition favorisée vers le premier niveau excité de  $^{209}\text{Pb}$  a été trouvée montrant que la radioactivité  $^{14}\text{C}$  présente des similitudes avec l'émission  $\alpha$  dans la même région de la table de masse. Nos résultats ne correspondent à aucune prévision théorique.

*Nous adressons nos remerciements à MM. A. Le Goff, G. Iltis et G. Renou pour avoir assuré la bonne marche de la cryogénie du spectromètre SOLENO. Nous remercions également M. G. Lalu d'avoir préparé le système d'acquisition et Mme R. Bzyl pour la préparation d'un détecteur Si. Nous sommes aussi reconnaissants au personnel de l'accélérateur Tandem d'Orsay pour la fourniture du faisceau de  $^{14}\text{C}$ .*

## REFERENCES

- [1] H. J. ROSE et G. A. JONES, *Nature*, 307, 1984, p. 245-247.
- [2] *Particle Emission from Nuclei, Vol. II*, CRC Press, Boca Raton Florida, Eds D. N. POENARU et M. IVASCU, 1988.
- [3] E. HOURANI, M. HUSSONNOIS et D. N. POENARU, *Ann. Phys. Fr.*, 14 n°3, 1989, p.311-346. Voir références incluses.
- [4] D. N. POENARU, M. IVASCU, A. SANDULESCU et W. GREINER, *Phys. Rev.*, C32, 1985, p.572-581.
- [5] Y. J. SHI et W. J. SWIATECKI, *Phys. Rev. Lett.*, 54, 1985, p. 300-301.
- [6] R. BLENDOWSKE et H. WALLISER, *Phys. Rev. Lett.*, 61, 1988, p. 1930-1933.
- [7] S. ROSENBLUM, *C. R. Acad. Sci. Paris*, 188, 1929, 1401-1403.
- [8] S. GALES, E. HOURANI, M. HUSSONNOIS, J. P. SCHAPIRA, L. STAB et M. VERGNES, *Phys. Rev. Lett.*, 53, 1984, p. 759-762.
- [9] D. V. ALEXANDROV, A. F. BELYATSKY, YU. A. GLUHOV, E. YU. NIKOLSKY, B. V. NOVATSKY, A. A. OGLOBIN et D. N. STEPANOV, *Pis'ma Zh. Eksp. Teor. Fiz.*, 40, 1984, p. 152-154.
- [10] P. B. PRICE, J. D. STEVENSON, S. W. BARWICK et H. L. RAVN, *Phys. Rev. Lett.*, 54, 1985, p. 297- 299.
- [11] W. KUTSCHERA , I. AHMAD , S. G. ARMATO III, A. M. FRIEDMAN , J.E. GINDLER, W. HENNING, T. ISHII, M. PAUL et K. E. REHM, *Phys. Rev.*, C32, 1985, p. 2036-2042.
- [12] E. HOURANI , M. HUSSONNOIS , L. STAB , L. BRILLARD , S. GALES et J. P. SCHAPIRA , *Phys. Lett.*, 160B, 1985, p. 375-379.

## LEGENDE DES FIGURES

Fig.1- L'histogramme représente le spectre d'énergie des noyaux de  $^{14}\text{C}$  émis par le  $^{223}\text{Ra}$ . Les flèches indiquent les positions de l'état fondamental et des premiers états excités du  $^{209}\text{Pb}$  obtenues dans un étalonnage en énergie avec un faisceau de  $^{14}\text{C}$ . Un canal correspond à 100 keV, après que les canaux du spectre aient été regroupés par 20.

Fig.1- The histogram is the energy spectrum of  $^{14}\text{C}$  particles emitted by  $^{223}\text{Ra}$ , measured in this work (100 keV per channel). The arrows indicate the positions of the ground state and the first excited states of  $^{209}\text{Pb}$ , obtained in the energy calibration with  $^{14}\text{C}$  beam. This spectrum is for a sensitivity range of 4 MeV in excitation energy, corresponding to 50% transmission of SOLENO.

Fig.2- Représentation, pour des isotopes du radium, du logarithme décimal de la période en fonction de  $Q^{-1/2}$ ,  $Q$  étant le bilan de réaction. Les données pour les isotopes pair-pair de radium s'alignent sur une droite, alors que celles relatives au  $^{223}\text{Ra}$  se situent hors de cette droite.

Fig.2- Plot, for  $^{14}\text{C}$  emission from Ra isotopes, of the decimal logarithm of the half-life versus  $Q^{-1/2}$ . Data for emissions from even-even isotopes are on a straight line, whereas those from  $^{223}\text{Ra}$  are apart.

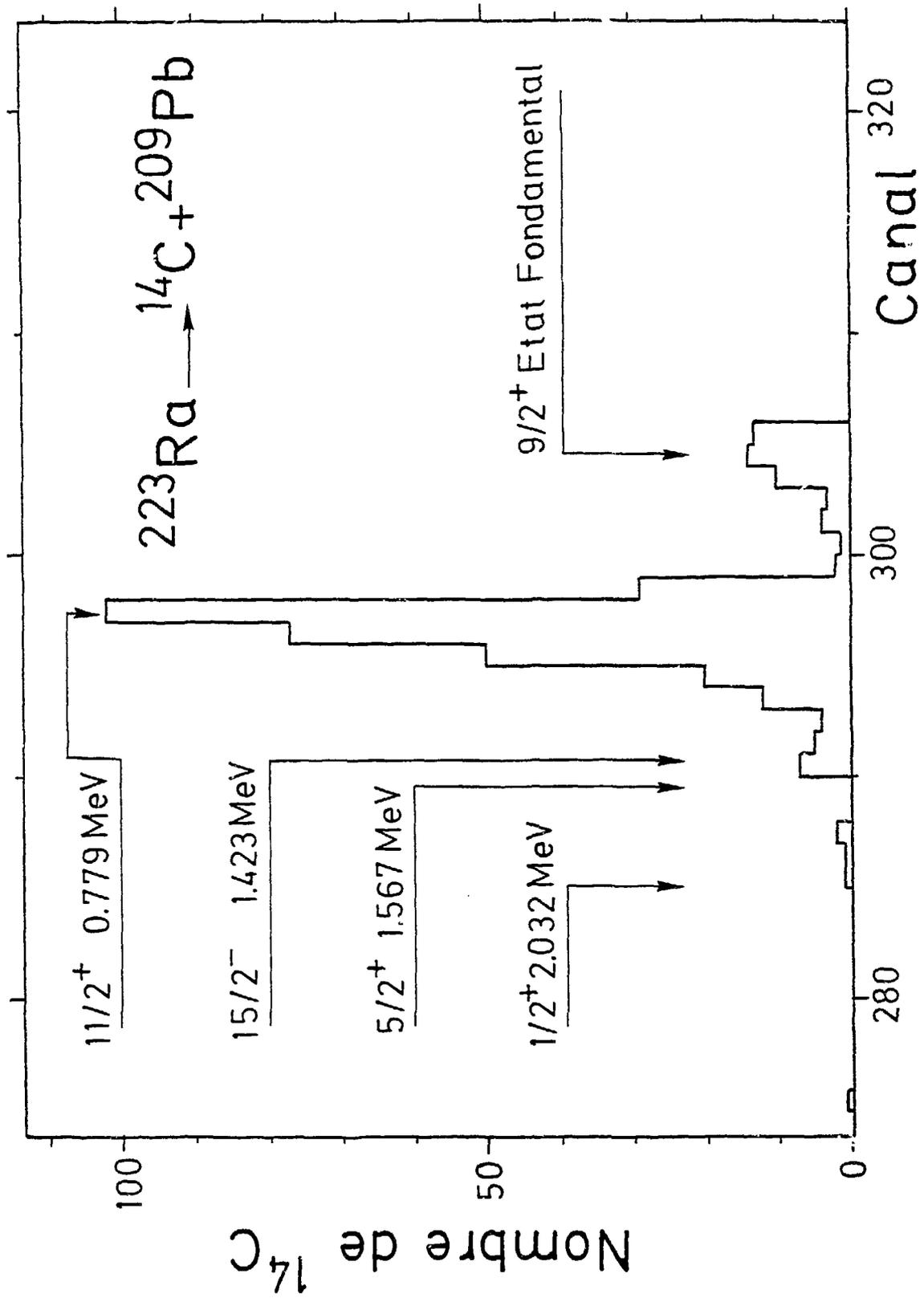


Fig. 1

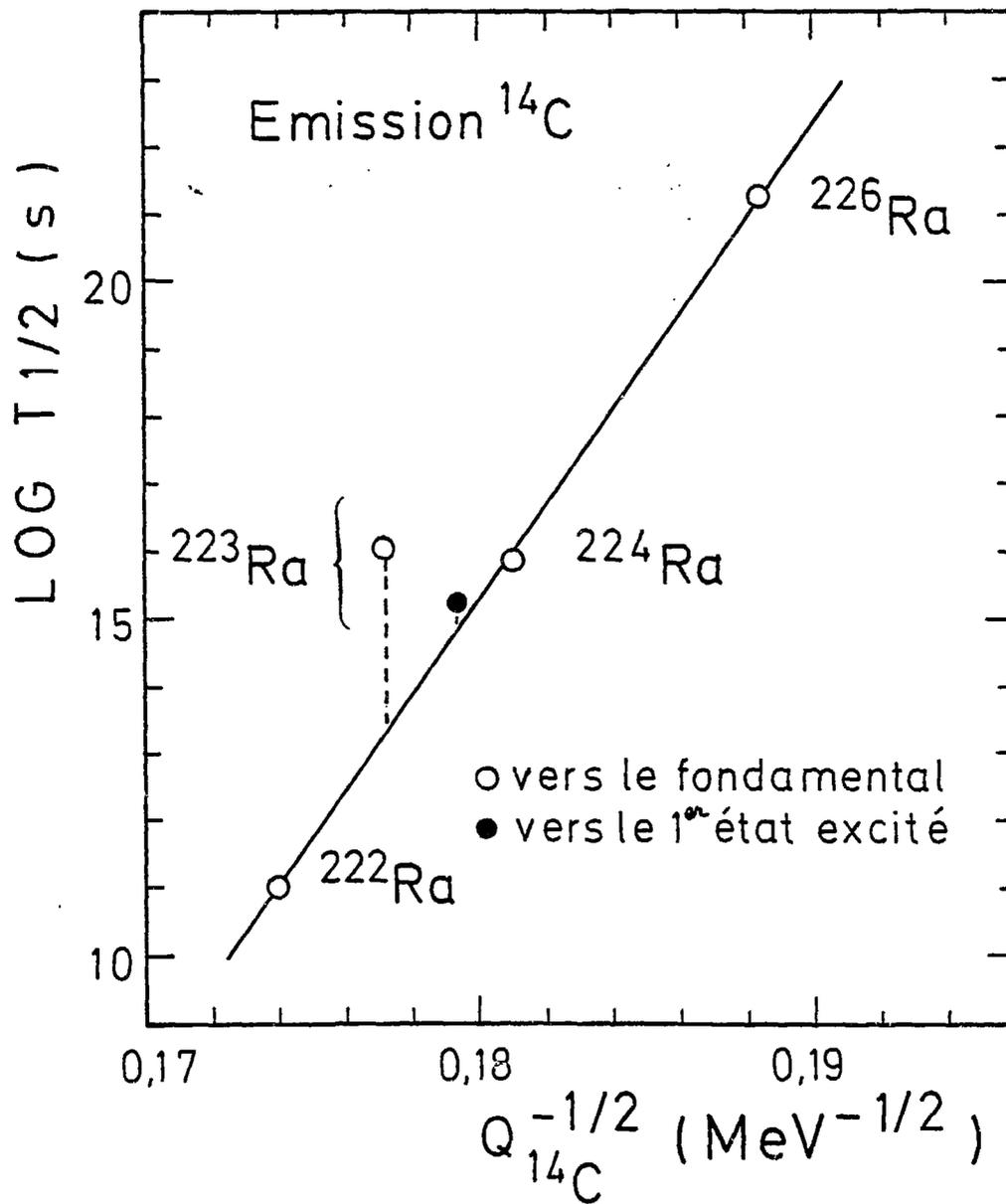


Fig. 2