# LES NOYAUX SUPERLOURDS ET LES POSSIBILITES DE LEURS RECHERCHES A MADAGASCAR

par PAIC G.\*, RAOELINA ANDRIAMBOLOLONA, RAZANAJATOVO M., RANDRIANARIVONY E., RAKOTOSON G. et RATIARISON A.

Laboratoire de Physique Nucléaire et Appliquée Département de Physique Boîte Postale 4279 Etablissement d'Enseignement Supérieur des Sciences Université de Madagascar TANANARIVE – MADAGASCAR

(présenté à l'Académie Malgache lors de la séance du 16 Février 1978)

#### RESUME

Après avoir rappellé quelques méthodes expérimentales de recherche des noyaux superlourds dans la nature, nous donnons les résultats des mesures préliminaires du groupe du Laboratoire de Physique Nucléaire et Appliquée de l'Université de Madagascar. Les mesures ont été faites à partir de la spectrométrie gamma d'échantillon de monazite de Fort Dauphin (Madagascar) à l'aide d'un detecteur Ge(Li) et d'un analyseur à 1024 canaux. La limite supérieure pour l'existence des superlourds obtenus par cette méthode est de  $10^{-5}$  g/g. Le domaine d'énergie était de 20 à 4000 keV. Nous indiquons ensuite les voies de recherches futures du dit laboratoire dans le même domaine.

#### ABSTRACT

Some experimental methods in the search for the superheavy elements in Nature are reviewed briefly. Preliminary results obtained by the group of the Laboratory of Nuclear and Applied Physics are presented. The gamma spectra of Fort Dauphin monazite samples have been investigated with a Ge(Li) detector in conjunction with a 1024 channel analyser in the energy range 20 to 4000 keV. An upper limit of  $10^{-5}$  g/g for the existence of superheavy elements is deduced. The further efforts in the search for superheavy elements to be undertaken at the same laboratory are presented.

<sup>\*</sup> Professeur à l'Institut Ruder Boskovic, Zagreb, Yougoslavie, en mission d'expert de l'Agence Internationale de l'Energie Atomique auprès du Laboratoire de Physique Nucléaire et Appliquée.

#### I. - INTRODUCTION

Les données théoriques sur l'existence des noyaux superlourds bien qu'entachées d'une incertitude considérable, ne rejettent pas à priori l'existence de ces noyaux ayant un nombre de charge supérieur à 110. Il faut souligner que les calculs théoriques étudient seulement la stabilité de ces noyaux une fois formée et non pas leur formation. En supposant que la nucléosynthèse initiale ait pu trouver le moyen de former ces noyaux, les calculs de probabilité de désintégration nous affirment que certains de ces noyaux auraient des périodes de désintégration de l'ordre de l'âge de notre planète.

Pour de nombreux expérimentateurs, cette dernière propriété signifie que de tels noyaux pourraient exister dans la nature, ce qui a amené un grand nombre de laboratoires à pratique à la chasse aux superlourds. Les aspects théoriques de l'existence de ces noyaux ayant été présentés à l'Académie Malgache par M. RAOELINA ANDRIAMBOLOLONA[1], nous ne parlerons ici que des aspects expérimentaux de la recherche des noyaux superlourds dans la nature et plus spécialement des mesures en cours et ainsi que de celles qui sont envisagées à l'Université de Madagascar.

La recherche expérimentale doit faire un choix au départ pour déterminer les méthodes de mesure et les directions générales quant aux minerais à examiner.

En ce qui concerne les méthodes de recherche, celle la plus facile est l'exploitation des modes de désintégration.

Ces modes sont:

- a) les émissions alphas
- b) la fission spontanée

Pour le choix des minerais, on pourrait, dans une certaine mesure, adopter le point de vue que les noyaux superlourds suivraient la chimie et la fractionation géochimique de leurs homologues dans le tableau périodique. Toutefois, cette hypothèse n'est pas universellement valable. Il est vrai qu'on retrouve du zirconium dans les minerais de titanium (ilméite par exemple) [2]; mais il est sûr que les minerais d'étain ne sont pas un bon endroit pour rechercher son homologue supérieur - le plomb en l'occurence. A part la recherche dans les minerais terrestres, il est nécessaire de signaler que des recherches sont aussi effectuées dans les météorites et dans les rayons cosmiques.

# II. – LES DIFFÉRENTES MÉTHODES EXPÉRIMENTALES

Les méthodes expérimentales pour la mise en évidence des noyaux superlourds sont :

- la mesure de la multiplicité d'émission de neutrons lors de la fission spontanée.
  - l'étude des traces des fragments de fission spontanée
  - la mesure des spectres de rayonnement alpha et gamma

- l'excitation atomique
- la spectrographie de masse.

# II.1. Mesure de la multiplicité d'émission de neutrons.

La méthode de mesure de la multiplicité des neutrons consiste à mesurer le nombre de neutrons émis lors de la fission spontanée. Lors de la fission, nous avons, outre l'émission de deux ou plusieurs fragments de fission, l'émission de plusieurs neutrons.

Ce nombre de neutrons émis est fonction de la masse du noyau fissionné. Pour les noyaux connus, le nombre de neutrons émis en moyenne par fission spontanée ne dépasse pas 3,75. Cependant, les calculs théoriques indiquent que les noyaux superlourds seraient susceptibles d'émettre un nombre beaucoup plus élevé de neutrons, aliant de 6 à 14 neutrons en moyenne.

La mesure consiste à entourer l'échantillon, qui peut être de plusieurs kilogrammes, par une couronne de détecteurs de neutrons. S'il y a émission de plusieurs neutrons, plusieurs détecteurs vont se déclencher simultanément. L'enregistrement du nombre de détecteurs activés permet d'effectuer la mesure du nombre de neutrons émis.

Cette méthode peut atteindre des limites de detection très faibles allant jusqu'à 10<sup>-14</sup> g/g[3]. Une telle masse de superlourds pourrait ainsi être décelée par cette méthode.

#### II.2. Étude des traces de fragments de fission.

Les fragments de fission peuvent, quant à eux, être détectés par des compteurs à gaz mais l'analyse des traces qu'ils laissent dans le site de production (dans le minerai lui-même) ou bien dans des plastiques recouvrant l'échantillon, est plus pratique.

# II.3 Mesure des spectres de rayonnement alpha et gamma.

La désintégration alpha entraîne avec elle aussi des rayonnements gamma provoqués par la désexcitation des noyaux qui sont formés non pas dans l'état fondamental mais dans un état excité.

Ces mesures sont assez faciles à faire avec un matériel relativement peu coûteux; elles consistent à chercher l'existence de raies alpha ou gamma, jusqu'ici, inconnues dans la nature.

#### II.3.1. Détection des raies alpha

Dans le cas de la détection des rayonnements alpha, on ne peut utiliser que de très petites quantités de matériaux à cause de la forte absorption des alpha dans le matériau de la source elle-même. Les quantités de matériau qu'on peut analyser ainsi ne dépassent pas quelques dizaines de milligrammes. Cependant, l'absence quasi-totale de bruit de fond permet d'effectuer des mesures disposant de spectromètres alpha de bonne résolution avec une très grande sensibilité. Une quantité de l'ordre de  $10^{11}$  atomes dans l'échantillon serait décelable si l'on supposait une période de  $10^{8}$  ans avec un taux de désintégration de quelques désintégrations par jour.

Exprimée en g/g, la limite serait de ∿10<sup>-9</sup>g/g

En se contentant d'un taux de comptage encore plus bas, on peut atteindre des sensibilités de l'ordre  $10^{-10}$  g/g.

La mesure des spectres alpha sera entreprise prochainement par le groupe de l'Université de Madagascar.

En outre, nous nous proposons d'effectuer encore une autre mesure en alpha susceptible, elle, de nous apporter des précisions sur le nombre Z.

Il s'agit d'utiliser les propriétés physiques d'un des éléments de la famille radioactive des superlourds. Si l'on examine la continuation hypothétique du tableau périodique des éléments, nous arrivons à la conclusion que l'élément 118 devrait être l'homologue du radon, correspondant aux gaz rares. Etant un gaz, il devrait, tout comme le radon s'échapper du minerai. Si nous supposons que les périodes radioactives seraient telles qu'on puisse détecter les descendants de ces émanations, on peut provoquer au moyen d'un champ électrique la déposition des aérosols sur lesquels se fixent habituellement ces derniers.

Cette deuxième méthode présente à nos yeux les avantages suivants :

- i) Elle permet dans le cas d'une observation positive d'affirmer la présence d'une émanation provenant d'une famille de superlourds.
  - ii) Toutes les raies alpha jusqu'à celles du radon sont éliminées.
- iii) Le fait qu'on collecte les produits radioactifs contenus dans l'air entourant l'échantillon permet d'utiliser des quantités considérables de mineraides dizaines de kilogrammes. Toutefois, elle présente d'une part un inconvénient qui provient du fait que nous connaissons mal les périodes radioactives, les incertitudes admises étant, de plusieurs ordres de grandeurs. Si la période radioactive de l'émanation était très courte, <0.1s, il serait très difficile pour le gaz de s'échapper de la roche avant de subir un processus de désintégration. D'autre part, avant d'entreprendre de telles mesures, il faut connaître, au moins pour les gaz radioactifs connus, les probabilités d'évasion du minerai.

Aussi, avons-nous entrepris d'abord la détermination du pouvoir d'évasion du radon des différents minerais de Madagascar.

Les méthodes qui sont susceptibles de l'augmenter sont l'attaque chimique et le broyage. Elles seront étudiées. Nous effectuons le travail de la manière suivante. Le minerai est scellé dans un vase en pyrex, le gaz radioactif est ainsi confiné. Il suffit alors d'enregistrer dans le temps l'augmentation de l'intensité des raies gamma appartenant aux descendants du radon. Dans le cas du radon de la famille de l'uranium 238, l'état d'équilibre radioactif se rétablit après une vingtaine de jours. La comparaison de l'intensité qui est alors atteinte et celle de l'état initial non confiné nous donne le pouvoir d'échappement du gaz dans le minerai en question.

La Fig. 1 donne les résultats obtenus à l'Université de Madagascar pour l'autunite avec des grains de l'ordre du millimètre de diamètre.

Ce minerai présente un pouvoir d'échappement du radon de \u20140 %.

Les mesures préliminaires sur la monazite - d'un intérêt capital pour la recherche des éléments superlourds, recherche qui a été provoquée par l'existence d'anneaux pléochroïques non expliquée dans les micas du Sud de Madagascar contenant des inclusions de grains de monazite, montrent que le pouvoir d'échappement est très faible. Nous allons donc être obligés d'augmenter ce dernier au moyen d'un broyage ou d'une attaque chimique avant de procéder à la mesure ci-dessus exposée.

#### II.3.2. Détection des raies gamma.

La désexcitation des noyaux superlourds provoqueraient aussi une émission gamma.

Le problème principal de cette mesure est la limite de détection qui est de loin supérieure à celles des méthodes précitées. En effet, la limite de détection provient du bruit de fond résultant de l'interaction des gamma avec le détecteur par l'intermédiaire de l'effet Compton. Le caractère statistique du bruit de fond exige donc une activité relativement importante pour qu'on puisse identifier une raie. Il est toutefois intéressant de faire remarquer que lors de l'expérience sur les éléments superlourds dans les micas de Madagascar, expérience qui a été très contestée depuis, les concentrations des superlourds seraient telles qu'il aurait été possible pour la recherche d'utiliser un spectromètre gamma.

C'est dans cet ordre d'idée que nous avons utilisé la monazite. La mesure a été effectuée à l'Université de Madagascar avec un détecteur Ge(Li). La résolution du détecteur est de 2.2 keV à 1.1 MeV. Nous avons enregistré les spectres avec un analyseur à 1024 canaux. La gamme d'énergies étudiée se situe dans la bande de 20 à 4000 keV.

Nous avons fait les mesures sur des échantillons de monazite et d'uranothorianite. Notre effort s'est porté principalement dans la détection des pics dans la monazite, pics qui n'existeraient pas pour l'uranothorianite. En effet, nous spéculons que l'uranothorianite ne contient d'autres éléments radioactifs que de l'uranium et du thorium.

A titre de comparaison, nous avons fait aussi des mesures sur des échantillors de thorium et d'uranium.

Les durées de l'expérience sont de plusieurs centaines d'heures. Les spectres n'ont révelé aucune anomalie dans la région de 20 keV à 4000 keV. Comme la sensibilité de cette méthode est estimée à  $10^{-5}$  g/g, nous pouvons donc affirmer que les noyaux superlourds, s'ils existaient dans le minerai, auraient une concentration inférieure à notre limite de détection.

#### II.4. Excitation atomique.

L'identification des éléments peut se faire à l'aide de la détection au rayonnement X caractéristique qui est émis après une excitation atomique. C'est la voie qui a été utilisée par Gentry et al [4] pour identifier les super-lourds dans les micas de Madagascar. Il est bien connu maintenant qu'il y ait eu des interférences nucléaires lors de cette expérience. Il n'en demeure pas moins que la méthode est importante et peut être utilisée pour des recherches futures.

#### II.5 Spectromètre de masse.

C'est une méthode classique pour la détermination de la masse des éléments. Toutefois, les problèmes techniques pour la mesure des éléments super-lourds sont considérables.

#### III. CONCLUSION

Etat de la recherche des éléments superlourds.

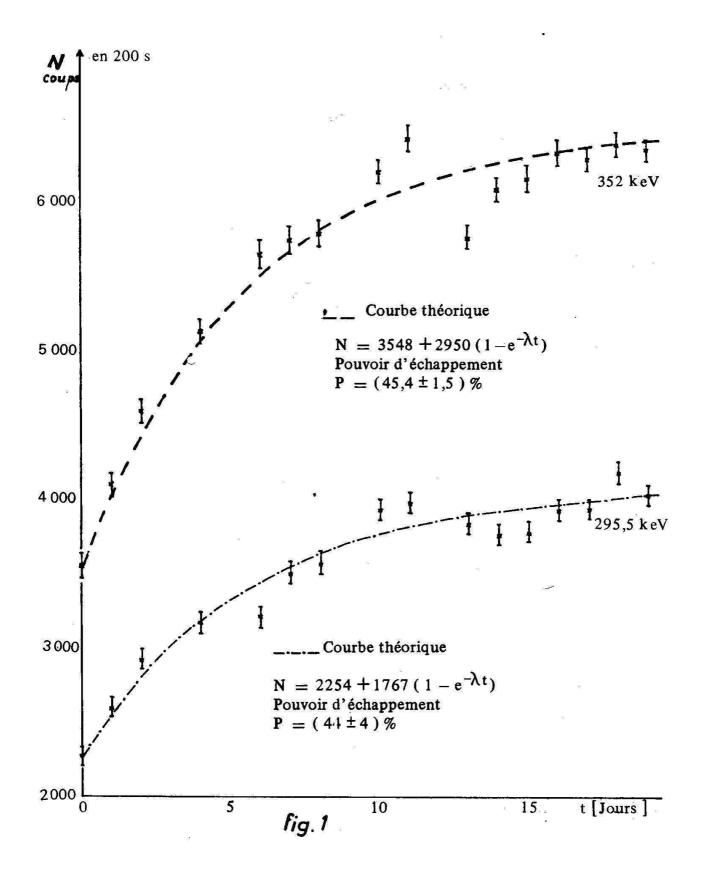
Depuis 10 ans, diverses expériences ont été effectuées pour la recherche des éléments superlourds appartenant à ce qu'on appelle « l'îlot superlourd » dans le tableau périodique des éléments. Durant ces dix dernières années, maintes fois les navigateurs intrépides ont cru entrevoir la terre mais chaque fois ils se sont aperçus que ce n'était qu'un mirage. Actuellement, il n'existe à notre connaissance que deux expériences faites en 1977 qui n'ont pas encore été contestées. La première est celle du groupe de Flerov en URSS qui a trouvé une multiplicité de neutrons supérieure à celle connue dans les noyaux transuraniques. Le groupe de Flerov a effectué son expérience sur un échantillon provenant de la météorite Allende [5]. La seconde expérience a été faite par un groupe de Strasbourg sur des monazites de Madagascar. En mesurant les raies alpha, les auteurs affirment avoir identifié une raie alpha de 11.5 MeV inconnue jusqu'à maintenant [6].

Dans un certain sens, on peut comparer certains aspects de la recherche des superlourds à la chasse à l'abominable homme des neiges. Dans ce dernier cas, on court après ses empreintes dans les neiges de l'Himalaya; dans celui des superlourds, on s'active autour des anneaux pléochroïques géants dans les micas de Madagascar comme une preuve possible d'existence. Mais n'est-ce pas l'essence même de la recherche de faire des investigations dans l'inconnu pour qu'il ne le soit plus?

Le laboureur de la Fable de la Fontaine savait qu'il n'y avait pas de trésor enfoui et pourtant ses fils n'ont-ils pas récolté les fruits de la recherche de ce trésor inexistant?

Nous tenons à remercier l'Agence Internationale de l'Energie Atomique dont l'aide a rendu possibles les recherches que nous avons entreprises jusqu'à maintenant et que nous comptons poursuivre. Nous tenons aussi à remercier M.M. RANOHARISON Maurice et RAZAKABOAY Benjamin de leur assistance technique qui a grandement facilité les mesures effectuées.

# Variation de l'intensité en fonction du temps des raies de 295,5 KeV et 352 KeV pour un échantillon de Carnotite scellé



# **BIBLIOGRAPHIE**

- [1] RAOELINA ANDRIAMBOLOLONA, Bull. Acad. Malg. t. 54, 1/2, 1976 (1978)
- [2] J. MANAMBELONA (Communication Privée)
- [3] G. HERMANN Physica Script. 10A (1974) 71
- [4] R.V. GENTRY, T.A. CAHILL, N.R. FLETCHER, H.C. KAUFMANN, L.R. MEDSKER, J.W. NELSON, R.G. FLOCCHINI. Phys. Rev. Lett. 37 (1976) 11.
- [5] G.N. FLEROV, G.M. TER AKOPIAN, A.G. POPEKO, B.V. FEFILOV, V.G. SUBOTIN, Iadernaia Fizika 26 (1977) 449
- [6] A. CHEVALLIER, J. CHEVALLIER, A. PAPE et DEBEAUVAIS, Journal de Physique Lettres 38 (1977) L. 331