CEA-R 3307 - ENGELMANN Charles

ANALYSE PAR ACTIVATION AUX PHOTONS γ

Sommaire. - Ce rapport se propose de résumer l'ensemble des connaissances indispensables pour l'utilisation des réactions photonucléaires à des fins analytiques.

Après quelques rappels concernant les propriétés élémentaires des réactions nucléaires induites par irradiation dans les photons. les principales caractéristiques des sources de rayonnement de freinage de haute énergie (E > 20 MeV) sont données.

Le principe de l'analyse par activation aux photons est rappelé. Des exemples concrets sur les possibilités analytiques sont développés, particulièrement en ce qui concerne la détermination de quantités très faibles (< à 10^{-6}) de C,

./.

CEA-R 3307 - ENGELMANN Charles

ACTIVATION ANALYSIS USING γ PHOTONS

Summary. - This report summarizes all the data required for using photonuclear reactions in the field of analysis.

After a brief review of the elementary properties of nuclear reactions induced by photon irradiation, the main characteristics are given of high energy (E > 20 MeV) bremsstrahlung sources.

The principle of activation analysis based on the use of photons is given. Actual examples of the analytic possibilities are described in detail, in particular in the case of the determination of very small quantities (< 10^{-6})

./.

N, O et F. L'influence des réactions nucléaires parasites est discutée.

1967 64 p.

Commissariat à l'Energie Atomique - France

---

of C, N, O and F. The influence of interfering nuclear reactions is discussed.

1967 64 p.

Commissariat à l'Energie Atomique - France

PREMIER MINISTRE

COMMISSARIAT A
L'ÉNERGIE ATOMIQUE

CEA-R 3307

ANALYSE PAR ACTIVATION AUX PHOTONS γ

par

Charles ENGELMANN

Rapport CEA - R 3307

CENTRE D'ETUDES
NUCLÉAIRES DE SACLAY

Les rapports du COMMISSARIAT A L'ENERGIE ATOMIQUE sont, à partir du n° 2200, en vente à la Documentation Française, Secrétariat Général du Gouvernement, Direction de la Documentation, 31, quai Voltaire, PARIS VIIème.

The C.E.A. reports starting with n° 2200 are available at the Documentation Française, Secrétariat Général du Gouvernement, Direction de la Documentation, 31, quai Voltaire, PARIS VIIème.

- Rapport CEA-R 3397 -

Centre d'Etudes Nucléaires de Saclay
Département de Métallurgie
Service de Recherches de Métallurgie
Physique et Chimique

ANALYSE PAR ACTIVATION AUX PHOTONS γ

par

Charles ENGELMANN

- Décembre 1967 -

ANALYSE PAR ACTIVATION AUX PHOTONS γ

L'analyse par activation aux photons γ est justifiée par de nombreuses considérations. On peut doser des traces infimes d'impuretés pour lesquelles les sections efficaces aux neutrons thermiques et rapides sont trop petites ou les périodes des nucléides créés trop courtes. Citons par exemple les métalloides C, N et O dont l'importance en métallurgie est bien connue. Rappelons pour mémoire les difficultés auxquelles se heurtent les méthodes analytiques courantes quand il s'agit de doser ces trois éléments à des teneurs inférieures à 10^{-6}, provenant des contaminations superficielles et des blancs. Par activation aux photons γ les échantillons sont décapés immédiatement après l'irradiation. La pellicule superficielle est éliminée. De plus, il n'existe pas de blanc dans cette méthode. On comprend pourquoi il est ainsi réellement possible de doser des teneurs inférieures à 10^{-6}. Nous aurons l'occasion dans la suite de ce chapitre de décrire sommairement les méthodes de séparation de ^{11}C, ^{13}N et ^{15}O qui permettent le dosage des impuretés associées en quelques minutes et cela pour des taux de concentration de quelques 10^{-9}. Ces performances ne sont pas limitées aux trois éléments ci-dessus. De nombreuses autres impuretés peuvent être dosées à des teneurs également aussi faibles. Pour la détermination des éléments légers C, N et O à l'état de traces infimes dans les matériaux de très haute pureté, l'activation aux photons γ est non seulement complémentaire des autres méthodes d'activation mais présente un caractère intrinsèque indéniable.

De plus, l'expérience montre que certaines matrices à fortes sections efficaces aux neutrons thermiques telles que Li, B, La, Eu, Gd, Dy, etc ... s'avèrent souvent peu sensibles aux irradiations γ. C'est ainsi qu'il est possible de doser le Zr dans le Hf avec une excellente sensibilité et cela d'une façon non destructive, de même l'oxygène, l'azote et le carbone dans Li, B, Be, l'oxygène et l'azote dans Na et Ca, le carbone dans Si et W. Beaucoup d'autres types d'analyses non destructives existent.

Tout cela confère à l'analyse par activation aux photons γ un intérêt sans cesse croissant justifiant la création de nombreux groupes de recherches auprès des accélérateurs d'électrons répartis dans le monde.

I - QUELQUES IMPORTANTES CARACTERISTIQUES PHYSIQUES DES REACTIONS PHOTONUCLEAIRES

Comme toute réaction nucléaire, une réaction photonucléaire est caractérisée par son seuil et sa fonction d'excitation expérimentale. Les éléments très légers mis à part, l'énergie de liaison moyenne d'un nucléon dans le noyau est voisine de 10 MeV. Les seuils des réactions avec éjection d'un seul nucléon doivent donc être de cet ordre de grandeur. De plus, en moyenne, ces seuils s'abaissent quand le numéro atomique Z croît. Cela découle évidemment de la forme même de la courbe de l'énergie de liaison moyenne des nucléons en fonction de Z . On ne peut toutefois dicter une règle générale précise puisque les propriétés de parité des nucléons dans le noyau entrent également en considération dans les valeurs des seuils.

Pour l'expulsion simultanée de plusieurs nucléons, le groupement de ceux-ci intervient. Ainsi, une réaction (γ, pn) ou (γ, dn) a toujours un seuil plus élevé que la réaction (γ, d) ou (γ, t) qui engendre le même isotope. Ce fait est encore plus accentué pour les éléments lourds où les seuils des réactions (γ, α) et (γ, α n) sont systématiquement inférieurs à ceux correspondant à l'éjection d'un seul nucléon. Il existe peu de données bibliographiques relatives aux sections efficaces de ces réactions déjà très complexes. On peut néanmoins admettre qu'elles doivent être très faibles pour des énergies inférieures à 30 MeV. De toute façon, leur existence même montre que les réactions photonucléaires sont surtout très simples à utiliser pour les dosages des éléments légers et qu'il faut être d'autant plus prudent que l'impureté à caractériser et la matrice ont des Z élevés et voisins. Ces quelques remarques importantes à savoir se dégagent du tableau I dans lequel on peut trouver quelques réactions photonucléaires et leur seuil [1].

Ces quelques valeurs montrent bien que pour les éléments de masses supérieures à environ 100, les réactions d'interférences deviennent de plus en plus importantes. Ainsi, il est absolument impossible de doser des traces de Gd et W à partir de leur isotope ^{159}Gd et ^{185}W en présence respectivement de Dy pour le premier, Re et Os pour le second. Une remarque s'impose encore. Très souvent, les seuils des réactions (γ, p) sont inférieurs à ceux des (γ, n) même pour les éléments légers. Mais ces réactions n'interviennent aucunement d'une façon directe au point de vue interférences.

Les variations des seuils des trois réactions (γ, n), (γ, t) et (γ, α n) en fonction du numéro atomique Z des noyaux irradiés apparaissent sur les graphiques des figures I-1, I-2 et I-3. On peut voir que ce sont les noyaux pairs tels que N = Z qui ont les seuils les plus élevés. Ex. : $^{4}_{2}$He, $^{12}_{6}$C, $^{16}_{8}$O, $^{20}_{10}$Ne, $^{40}_{20}$Ca. Cela découle des propriétés de parité des nucléons dans le noyau.

La fonction d'excitation des réactions photonucléaires a approximativement la même forme pour tous les éléments. C'est une courbe qui démarre au seuil S pour croître et passer par un maximum très large caractérisant la résonance géante. Au-delà, la section efficace croît à nouveau mais très lentement cette fois-ci en fonction de l'énergie. La figure I-4 donne l'allure générale d'une telle courbe d'excitation.

Le domaine qui nous intéresse se limite à la résonance géante, caractérisée par sa largeur à mi-hauteur Γ et l'énergie E_M correspondant au maximum de σ . Il existe des relations qui permettent de calculer E_M et Γ

$$E_M = k\, A^{-1/3} \text{ MeV} \qquad \text{et} \qquad \Gamma = k'\, A^{-2/3} \text{ MeV}$$

Les coefficients k et k' de l'ordre de quelques dizaines varient suivant les théories adoptées et sont compris approximativement entre 40 et 80 environ. De toute façon, ces relations montrent, et l'expérience le confirme, que l'énergie du maximum diminue quand la masse des noyaux irradiés augmente.

Rappelons que les seuils des réactions photonucléaires se calculent aisément à partir du bilan des masses mises en jeu. Si l'énergie des photons incidents et des particules éjectées est exprimée en unités de masse, on a :

$$Q = \sum \text{masses initiales} - \sum \text{masses finales}$$

La masse au repos du photon étant nulle, il en résulte que :

si $Q \geqslant 0$ $\qquad S = 0$

$Q < 0$ $\qquad S = -Q$

II - PRINCIPALES SOURCES DE PHOTONS DE GRANDE ENERGIE

A - GENERALITES

Les seuils des réactions (γ, n) sont de l'ordre de 10 MeV. Compte tenu de la forme de la résonance géante, il est indispensable pour pouvoir induire de grandes activités de disposer de faisceaux γ d'énergie très supérieure. Il ne saurait donc être question d'utiliser des radioéléments naturels ou artificiels dont les énergies γ sont toutes inférieures à 3 MeV. D'ailleurs, la nécessité de disposer de flux très puissants de l'ordre de 10^{14} à 10^{15} photons par cm^2 et par seconde les exclue d'office. Néanmoins, pour des applications très spéciales, ils peuvent être utiles. Citons les dosages de deutérium et de béryllium par comptage des photoneutrons [2]. Les seuils des réactions (γ, n) sur ces deux éléments sont en effet exceptionnellement bas (1).

$^{9}_{4}Be\ (\gamma, n)\ ^{8}_{4}Be \qquad S = 1,67 \text{ MeV}$

$^{2}_{1}D\ (\gamma, n)\ ^{1}_{1}H \qquad S = 2,23 \text{ MeV}$

Ainsi, avec une source émettant des γ d'énergie supérieure à ces seuils, on peut provoquer les réactions photonucléaires correspondantes. Parmi les isotopes radioactifs souvent utilisés comme sources on peut citer ^{24}Na, ^{124}Sb, ^{208}Tl.

Récemment, V. P. GUINN et H. R. LUKENS [3] ont utilisé le rayonnement de freinage des électrons de 3 MeV accélérés par un Van de Graaff pour doser le deutérium et le béryllium. Ils obtiennent des sensibilités de 0,6 ppm de Be dans un échantillon de 40 g et 0,07 ppm de deutérium pour un échantillon de 300 g.

Pour produire des rayons γ d'énergie supérieure à 10 MeV, on peut utiliser des réactions nucléaires spécifiques

Réaction nucléaire	Energie des γ émis
$^{3}H\ (p, \gamma)^{4}\ He$	19,8 MeV
$^{7}Li\ (p, \gamma)^{8}\ Be$	17,6 et 14,8 MeV
$^{11}B\ (p, \gamma)^{12}C$	15,9 MeV

Citons pour mémoire deux autres $^{13}C\ (p, \gamma)\ ^{14}N$ et $^{19}F\ (p, \alpha\ \gamma)\ ^{16}O$ ayant respectivement deux et cinq raies γ d'énergie maximale 7,5 et 8,1 MeV. Les seuils de ces réactions sont très bas, pratiquement nuls. De sorte qu'on peut irradier les cibles appropriées avec des protons de quelques centaines de KeV à quelques MeV. Pour des analyses particulières par irradiation aux photons γ , ces réactions sont évidemment toujours exploitables. Mais les flux de rayons γ que l'on peut produire restent faibles et limitent le champ d'application.

Des faisceaux très intenses de photons γ sont obtenus près des grands accélérateurs d'électrons, bétatron, synchrotron et accélérateur linéaire. Ce dernier type donnant les faisceaux les plus puissants. Mais en général, contrairement aux réactions nucléaires ci-dessus, on ne peut produire facilement que des spectres continus de photons γ d'énergie maximale égale à l'énergie cinétique des électrons. Un spectre de raie est néanmoins possible dans des conditions très particulières. Nous y reviendrons plus loin.

B - PRODUCTION DU RAYONNEMENT γ DE FREINAGE DE GRANDE ENERGIE

1. Principe

Lorsqu'un électron d'énergie totale E_o traverse le champ nucléaire existant autour de tout noyau, il subit une déviation et une accélération. La mécanique quantique montre qu'il en résulte une émission de photons. L'énergie emportée par ces photons est évidemment prélevée sur l'énergie cinétique de l'électron. L'émission d'un photon d'énergie $h\gamma$ est caractérisée par une certaine probabilité. L'énergie totale de l'électron deviendra alors $E_o - h\gamma$. On peut en effet négliger en première approximation l'énergie de recul du noyau. L'énergie maximale que l'électron peut perdre en un seul processus est égale à son énergie cinétique.

$$T_o = E_o - m_o C^2$$

Par conséquent, si on dispose d'un faisceau d'électrons d'énergie E_o, on pourra produire un spectre continu de rayonnement γ de freinage d'énergie maximale T_o. La théorie est très complexe. Nous nous limiterons à quelques considérations très élémentaires qu'il faut posséder.

2. Aperçu théorique

Lorsque des électrons traversent la matière, deux phénomènes principaux contribuent à leur ralentissement,

- l'interaction coulombienne avec les électrons atomiques

- le rayonnement de freinage.

Le premier est surtout très important aux basses énergies, le second aux énergies élevées. On peut définir une énergie critique pour laquelle les amplitudes des deux processus sont égales. A partir de la théorie de BETHE et HEITLER, on trouve la relation approximative suivante (4) :

$$E_c \simeq \frac{1600\ m_o C^2}{Z} \simeq \frac{800}{Z}\ \text{MeV}$$

Z étant le numéro atomique du matériau de cible.

En ce qui concerne la production du rayonnement γ de freinage, il est bien évident que la zone à considérer est celle au-delà de E_c, puisque pour des énergies inférieures à E_c une fraction trop importante de l'énergie cinétique des électrons est convertie en chaleur par l'intermédiaire des processus de collision, ionisation et excitation.

La relation ci-dessus ne donne que des ordres de grandeur de E_c. Des valeurs plus précises sont contenues dans le tableau II. Néanmoins, elle montre déjà que ce sont surtout les éléments lourds qui ont le meilleur rendement de conversion énergie cinétique de l'électron $\longrightarrow$ rayonnement γ de freinage. En effet la perte d'énergie par rayonnement est sensiblement proportionnelle à Z^2 et croît en première approximation linéairement avec l'énergie E_o, tandis que la perte d'énergie par ionisation est proportionnelle à Z et croît logarithmiquement avec E_o pour les énergies supérieures à 1 MeV environ. En-dessous de cette valeur, le pouvoir de ralentissement par action coulombienne $\frac{dE}{dx}$ décroît comme E^{-1}.

Le rapport de la perte d'énergie par rayonnement et par interaction coulombienne est approximativement le suivant pour des énergies supérieures à 1 MeV.

$$\frac{\left(\frac{dE_o}{dx}\right)\ \text{rayonnement}}{\left(\frac{dE_o}{dx}\right)\ \text{int. coulomb}} \simeq \frac{E_o\ Z}{1\,600\ m_o C^2} \simeq \frac{E_o\ Z}{800} \simeq \frac{E_o}{E_c}$$

Une autre grandeur très importante qui intervient souvent dans les calculs relatifs au rayonnement de freinage est la longueur de ralentissement. Nous avons indiqué ci-dessus que, pour les hautes énergies, la perte d'énergie par rayonnement croît linéairement avec E_o. En appelant T_o et T respectivement l'énergie cinétique de l'électron correspondant à l'énergie totale, E_o et E après un certain parcours dans la matière, on peut écrire que :

$$\frac{dT}{dx} = -kT$$

soit en intégrant

$$T = T_o\ e^{-kx}$$

on pose par définition $k = \frac{1}{\ell_R}$ de sorte que l'on obtient la relation fondamentale suivante :

$$T = T_o\ e^{-\frac{x}{\ell_R}}$$

ℓ_R est la longueur de ralentissement encore appelée longueur de radiation. Le tableau III contient quelques valeurs de ℓ_R en $g\ cm^{-2}$ (4).

Nous avons déjà indiqué que la perte par rayonnement de freinage est proportionnelle à Z^2. Cela est une conséquence du fait que l'accélération subie par l'électron dans le champ nucléaire est proportionnelle à $\frac{Ze^2}{m_o}$. Or, la perte d'énergie est proportionnelle au carré de

l'accélération. Il en résulte que la section efficace de production de rayonnement de freinage σ est proportionnelle à $\frac{Z^2 e^4}{m_o^2}$

Plus précisément, en première approximation, on peut écrire :

$$\sigma_{totale} \simeq \frac{Z^2}{137} \left(\frac{e^2}{m_o C^2} \right)^2$$

Le pouvoir de ralentissement peut alors également s'exprimer par une relation très simple

$$\frac{d T}{d x} \simeq N (T + m_o C^2) \sigma_{total}$$

T étant l'énergie cinétique de l'électron

N le nombre de noyaux ralentisseurs par cm^3.

Ces relations approximatives rendent compte de l'évolution des phénomènes. Elles montrent qu'au point de vue rendement global de production de rayonnement de freinage, ce sont toujours les éléments lourds qui sont les plus intéressants pour constituer les cibles de conversion. Elles mettent en évidence du fait de l'existence de la masse m_o au repos de la particule incidente au dénominateur que ce sont les électrons qui permettent d'obtenir les flux de rayons γ les plus importants à égalité d'énergie cinétique.

3. Distribution spectrale et angulaire

Sur les figures II-1 et II-2 sont représentées quelques courbes de distribution énergétique du rayonnement de freinage produit par des électrons de diverses énergies frappant une cible de conversion en platine d'épaisseur 6 mm. Ces spectres sont relatifs au rayonnement émis vers l'avant par stéradian dans la direction du faisceau d'électrons. Le rapport du nombre de photons émis vers l'avant au nombre de photons émis dans l'espace complémentaire en fonction de l'énergie E_γ pour des électrons de 30 MeV et une cible de platine de 6 mm, est donné sur la figure II-3. Cette courbe montre que les photons de grande énergie sont surtout émis vers l'avant. L'influence de l'épaisseur de la cible sur la distribution spectrale du rayonnement émis vers l'avant est mise en évidence sur la figure II-4 où nous avons deux courbes relatives à des électrons de 30 MeV et des épaisseurs de platine de 2 et 6 mm. On en déduit qu'il n'est pas toujours intéressant d'avoir des cibles épaisses, supérieures au parcours des électrons. Mais pour des cibles minces inférieures à ce parcours, on est obligé de dévier le faisceau d'électrons émergeant, sinon les échantillons sous irradiation placés directement derrière la cible seraient soumis à des dissipations thermiques excessives.

La perte de flux dans les cibles épaisses est essentiellement dûe à la diffusion multiple des électrons, ce qui entraine une augmentation très importante de l'ouverture angulaire du faisceau au fur et à mesure que les électrons pénètrent dans l'épaisseur de la cible. La courbe de la figure II-5 représente le parcours des électrons dans le platine en fonction de l'énergie. Elle pourra servir utilement pour déterminer l'épaisseur de cible à choisir pour absorber tout le faisceau d'électrons.

4. Données expérimentales sur le rayonnement de freinage

Les courbes ci-dessus sont déduites des calculs effectués par G. TAMAS et

C. SCHUHL du groupe des réactions photonucléaires de SACLAY. Ces chercheurs ont fait des mesures confirmant l'allule générale des courbes. Pour les grandes énergies, l'expérience donne des valeurs légèrement supérieures à la théorie.

Dans la littérature, il y a très peu de publications donnant des renseignements pratiques sur le rayonnement de freinage obtenu près des grands accélérateurs.

L. H. HANZL et A.O. HANSON [5] ont étudié la distribution angulaire du rayonnement de freinage produit par des électrons de 17 MeV environ, pour des cibles en or. Les flux de photons ont été mesurés avec des petites chambres d'ionisation. Les résultats expérimentaux qu'ils ont obtenus sont en excellent accord avec la théorie dans laquelle ils ont tenu compte de la diffusion multiple des électrons dans l'or. Les courbes ainsi déterminées sont données sur la figure II-6. Toujours pour des électrons de 17 MeV, ils ont également mesuré le rendement axial en fonction de l'épaisseur de la cible d'or. L'influence de la diffusion multiple est très nettement mise en évidence (Cf figures II-7 et II-8). Le faisceau axial diminue en effet très rapidement d'intensité dès que les épaisseurs sont supérieures à une valeur optimale qui, pour l'or et des électrons de 17 MeV, est voisine de 2 g cm^{-2}.

M.H. Mc GREGOR a également étudié la production des rayons γ avec un accélérateur linéaire [6]. L'énergie maximale des électrons utilisés est de 17 MeV. Les courbes expérimentales qu'il a déterminées sont données sur les figures II-9 et II-10. Elles traduisent respectivement :

- la variation relative de l'intensité axiale en fonction de l'énergie des électrons pour une cible de Z élevé et d'épaisseur optimale,
- l'intensité relative du faisceau axial en unités arbitraires pour 3 cibles en Au, Cu et Al d'épaisseurs supérieures au parcours des électrons en fonction de leur énergie.

Il n'existe malheureusement aucune donnée expérimentale intéressant directement l'analyse par activation, telle que la forme réelle du faisceau, le gradient d'activation longitudinal et transversal pour divers éléments à seuils échelonnés tels que N, O et C. Dans les paragraphes suivants où sont décrits les équipements d'irradiation existant près de l'accélérateur linéaire de SACLAY, quelques résultats expérimentaux concernant ces questions sont donnés. La connaissance précise de la distribution énergétique et angulaire du rayonnement de freinage produit par des électrons d'énergies comprises entre 15 et 45 MeV pour divers types de cibles en vue de l'application en analyse par activation, fait l'objet de nombreuses expériences en cours près de cet accélérateur.

5. Production de faisceaux de rayons γ mono-énergétiques

Il pourrait être intéressant de disposer de faisceaux de rayons γ mono-énergétiques de grande énergie. Pour cela, il n'existe actuellement qu'une seule technique qui a été proposée par C. TZARA [7] il y a quelques années. Il s'agit de l'annihilation en vol des positons. On utilise pour cela la cascade " électrons - photons de freinage - paires négatons positons " produite par des électrons de grande énergie dans une cible de Z élevé (platine, or, etc ...) comme source de positons.

A la sortie de ce convertisseur, on sélectionne à l'aide d'un système magnétique les positons ayant une certaine énergie E_+. Ces positons sont ensuite dirigés sur une cible de Z faible où ils s'annihilent en vol en deux photons. On obtient alors dans la direction du positon incident un photon d'énergie

$$E_{\gamma} = E_+ + \frac{1}{2} m_0 C^2$$

Le spectre de photons que l'on peut ainsi obtenir à partir d'un faisceau de positons mono-énergétiques a une largeur de $\frac{m_o C^2}{2}$. La figure II-11 représente la forme du spectre d'annihilation. Le spectre de freinage des positons y est également indiqué. L'énergie maximale des photons produits par ce dernier mécanisme est évidemment égale à l'énergie cinétique des positons soit

$$T_+ = E_+ - m_o C^2$$

Il faut néanmoins remarquer que les flux de photons mono-énergétiques que l'on peut obtenir sont très petits. Ils résultent en effet d'une réaction de 3ème ordre. Ainsi comparativement au rayonnement de freinage obtenu par les électrons incidents en considérant la même bande d'énergie, les flux de photons mono énergétiques que l'on sait produire sont 10^4 à 10^5 fois plus faibles.

Néanmoins, en utilisant des électrons primaires d'énergie beaucoup plus élevée que les positons que l'on désire produire et des intensités de faisceau de plusieurs centaines de μA, on pourrait espérer obtenir des flux de rayons γ mono énergétiques du même ordre de grandeur que ceux des spectres de freinage. Il faut bien remarquer qu'il faudrait des énergies de plusieurs centaines de MeV, ce qui avec les intensités de faisceaux nécessaires, constitue certainement un obstacle sérieux pour l'utilisation systématique de ces sources de photons mono énergétiques.

III - CALCUL DES ACTIVITES INDUITES

En principe, pour une cible donnée, un faisceau d'électrons de petites dimensions transversales, on peut calculer les activités induites connaissant la courbe de section efficace en fonction de l'énergie. Ce calcul sera d'autant plus précis que le diamètre du faisceau est petit et la cible mince comparativement à la longueur de radiation.

Si on désigne par

E_o	l'énergie des électrons
I	l'intensité du faisceau
N	le nombre de noyaux par cm^2 de la cible de conversion
ϕ	la section efficace de production du rayonnement de freinage
Ψ	sa fonction de distribution angulaire
n	le nombre d'atomes de la substance activée par cm^2
σ	la section efficace de la réaction nucléaire considérée
Ω	l'angle solide sous lequel l'échantillon est vu depuis le point d'impact des électrons
S	le seuil de la réaction

le nombre d'atomes transformés par unité de temps se calcule par la relation

$$A = \int_S^{E_o} dE \int_O^{\Omega} I \phi \Psi \sigma N n \, d\Omega$$

soit encore

$$A = I N n \int_S^{E_o} \sigma \, dE \int_O^{\Omega} \phi \, \Psi \, d\Omega \qquad (1)$$

Les fonctions ϕ et Ψ se calculent avec une bonne précision pour les cibles très minces où les phénomènes de diffusions multiples sont négligeables. Par contre, σ est le plus souvent donnée sous forme de courbe expérimentale. De plus en pratique, les conditions ci-dessus sont rarement satisfaites. Tout d'abord, le diamètre du faisceau n'est pas très petit. Ensuite, il peut évoluer dans le temps. De sorte que le point d'impact est en réalité une tache de dimensions transversales plus ou moins grandes à l'intérieur de laquelle existe un gradient. Enfin les cibles très minces sont rarement utilisées. La relation ci-dessus peut donc servir à vérifier grossièrement les résultats expérimentaux. Mais elle ne peut en aucun cas être exploitée à des fins analytiques.

Aussi, en analyse par activation, a-t-on toujours recours à l'utilisation de moniteurs de flux ou d'étalons d'irradiation. Si le moniteur de flux a les mêmes dimensions géométriques que l'échantillon et contient la même espèce d'atomes à doser, les activités seront proportionnelles aux concentrations respectives. Nous reviendrons plus loin sur ce problème de moniteur qui nécessite quelques précautions particulières.

Remarquons que, pour un échantillon irradié dans une zone où le gradient de la distribution volumique du rayonnement de freinage est négligeable, l'expression (1) ci-dessus se simplifie et devient :

$$A = n' \int_S^{E_o} \sigma \; \phi_E \, d\,E$$

n' est le nombre d'atomes contenus dans l'échantillon irradié

ϕ_E la fonction de distribution énergétique du rayonnement de freinage.

Une notion très intéressante, qui est souvent mentionnée dans les travaux des spécialistes des réactions photonucléaires, est la section efficace intégrée

$$\sum = \int_S^{E_o} \sigma \, d\,E$$

Il existe des relations qui permettent de calculer cette grandeur du moins dans le cas où σ représente la section efficace totale d'absorption des photons

$$\sigma_{abs} = \sigma_{\gamma,\gamma'} + \sigma_{\gamma,\,n} + \sigma_{\gamma\,,\,p} + \sigma_{\gamma,\,2n} + \sigma_{\gamma,\,pn} + \ldots$$

Dans le domaine d'énergie qui nous intéresse en analyse par activation, on peut écrire que

$$\sigma_{abs} \simeq \sigma_{\gamma,\,n} + \sigma_{\gamma,\,p}$$

Pour les éléments légers, ces deux termes étant d'ailleurs du même ordre de grandeur. Pour les éléments lourds, par suite de l'interaction de la barrière coulombienne

$$\sigma_{abs} \simeq \sigma_{\gamma, n}$$

la règle de somme de GELL-MANN, GOLDBERGER et THIRRING permet de calculer cette section efficace d'absorption intégrée par la relation

$$\int_0^{Q_\pi} \sigma_{abs}\, d E = 0,06\ \frac{N Z}{A} \left[1 + 0,1\ \frac{A^2}{N Z} \right] \text{ MeV. barn}$$

Q_π est le seuil de photoproduction du méson π .

Compte tenu de la forme des résonances géantes, cette formule donne des indications encore très utiles pour des énergies mêmes très inférieures à Q_π .

L. W. JONES et K.M. TERWILLIGER [8] proposent pour le calcul de la section efficace intégrée de la réaction (γ , n) la formule empirique suivante déduite d'un grand nombre de déterminations de résonances géantes sur divers éléments

$$\int_0^{27,5\ \text{MeV}} \sigma_{\gamma, n}\, d E = 5,2.10^{-4}\ A^{1,8} \text{ MeV.barn}$$

Cette relation, comme d'ailleurs celle plus théorique ci-dessus, montrent que les sections efficaces croissent en fonction du numéro atomique. Ce résultat est normal puisque l'énergie de liaison moyenne des nucléons dans le noyau diminue quand Z augmente. L'expulsion d'un neutron est donc plus facile.

Bien que ces formules ne donnent pas toujours des résultats très précis, elles sont très intéressantes puisqu'elles permettent de prévoir l'évolution des activités produites.

Quant aux valeurs expérimentales des sections efficaces intégrées des réactions (γ, n), (γ, p) etc ... qui sont souvent données dans les publications relatives aux études sur les résonances géantes et les états dipolaires des noyaux, à la photoproduction des neutrons, protons, deutons, etc ... elles permettent de prévoir la grandeur relative des activations avec une bonne approximation. Par exemple, si deux éléments ont des maxima de résonance et des seuils très voisins, les activations relatives sont directement proportionnelles aux $\sum$. De sorte que si l'on connait l'activité induite sur un élément A de section efficace intégrée $\sum_A$ celle que l'on obtient sur un élément B dont $\sum_B$ est connue sera

$$\frac{d N_B}{d t} = \frac{\sum_B}{\sum_A} \cdot \frac{d N_A}{d t}$$

Dans cette relation très simple, on tient naturellement compte dans les activités $\frac{d N}{d t}$ des durées d'irradiation respectives, des périodes des isotopes obtenus et de l'instant auquel les comptages sont faits après la fin des activations.

Rappelons que ces grandeurs sont liées à l'activité mesurée par la formule fondamentale suivante

$$\left(\frac{d N}{d t}\right)_t = A\ (1 - e^{-\lambda \tau})\, e^{-\lambda t}$$

$\left(\frac{d N}{d t}\right)_t$ est l'activité absolue en désintégrations par unité de temps à l'instant t

τ la durée d'irradiation

t le temps écoulé depuis la fin de l'activation jusqu'à l'instant de la mesure

λ la probabilité de désintégration encore égale à $\frac{0,693}{T_{1/2}}$

A le nombre d'atomes transformés par unité de temps

En plus des valeurs de sections efficaces intégrées données dans le tableau IV, il est intéressant de connaître aussi l'énergie du maximum de la courbe de résonnance E_M, la largeur à mi-hauteur Γ, et la section efficace à E_M. Toutes ces grandeurs sont ressemblées dans le tableau V pour les réactions déjà considérées ci-dessus.

Les variations de la section efficace $\sigma_{\gamma, n}$ en fonction de l'énergie E_γ des réactions dont il est question dans les deux tableaux précédents sont représentées graphiquement sur les figures III-1, 2, 3, 4, 5, 6, 7, 8 et 9.

A partir de ces courbes, si la distribution énergétique du rayonnement de freinage a également fait l'objet de mesures précises, les activités induites peuvent être calculées par intégration graphique. Il suffit en effet de subdiviser les deux graphiques expérimentaux ci-dessus en bandes de largeur 1 MeV par exemple et de sommer les produits respectifs $\phi_E\ \sigma_E$, où ϕ_E est la valeur du flux de rayons γ à l'énergie E et σ_E la section efficace de la réaction à la même énergie, depuis le seuil jusqu'à l'énergie maximale du spectre de rayonnement de freinage.

Avec les mêmes notations que plus haut, on obtient alors la relation

$$\left(\frac{dN}{dt}\right)_t = \left(\sum_S^{E_o} \phi_E\ \sigma_E \right) \quad n' (1 - e^{-\lambda \tau}) e^{-\lambda t}$$

Remarque sur l'utilisation des flux de photons mono énergétiques obtenus par annihilation en vol des positons.

Lors de la description de cette source de photons, nous avons indiqué que les flux de photons sont très faibles, compte tenu du rendement de la cascade " électrons - photons de freinage - paires négatons positons - annihilation en vol des positons". De plus, le spectre des photons a une largeur voisine de $\frac{m_o C^2}{}$. Dans la relation précédente, la somme $\sum \phi_E\ \sigma_E$ est donc remplacée par le terme $\phi_E^2\ \sigma_E$. Les activités spécifiques sont ainsi de 10^4 à 10^5 fois plus petites que celles que l'on obtient en irradiant dans le faisceau de freinage primaire. Fondamentalement intéressant pour des mesures précises de sections efficaces, ces sources de photons le sont beaucoup moins en analyse par activation. Les pertes de sensibilités s'avèrent trop importantes. Néanmoins, comme nous l'avons déjà dit, avec des accélérateurs ayant des intensités de faisceaux de plusieurs centaines de μ A, voire quelques mA, en courant moyen, on pourra reconsidérer le problème.

Le fait de pouvoir activer dans des bandes d'énergie étroites peut en effet présenter des intérêts spécifiques. Par exemple, nous verrons plus loin que, dans les dosages non destructifs de l'azote, le cuivre et le fer interfèrent par suite de la production d'isotopes de périodes voisines. Or, les maxima de section efficace pour le cuivre et le fer sont respectivement à 18,1 et 18,7 MeV, tandis que celui de l'azote se trouve à 24,2 MeV. Donc, en irradiant

les échantillons dans un faisceau de photons γ mono énergétiques de 24 MeV, les activités spécifiques de l'azote deviennent relativement aux deux autres éléments beaucoup plus grandes qu'en irradiant dans un faisceau de freinage dont la courbe de répartition spectrale même favorise l'activation de ces derniers. Ainsi, compte tenu de ce que l'énergie du maximum de la section efficace des réactions photonucléaires diminue quand Z croît, ce type de source sera d'autant plus intéressant qu'il s'agira d'activer dans une matrice de Z élevé une impureté de Z petit. Ce qui est le cas par exemple en ce qui concerne le dosage des éléments légers O, C et N dans les métaux.

IV - LES INSTALLATIONS D'IRRADIATION DE L'ACCELERATEUR LINEAIRE DE SACLAY

L'accélérateur linéaire de SACLAY se compose de trois sections d'accélération à ondes progressives de 3 m de longueur chacune. La longueur totale de la machine est donc voisine de 10 m, compte tenu de l'optique électronique d'injection. Les impulsions de faisceau ont des largeurs variables de 10 ns à 2 μ S. Les fréquences de répétition sont de 500, 250, 125 Hz et sous multiple jusqu'au coup par coup. A la sortie du guide 80 % du courant se trouve dans une aire de diamètre 8 mm. La puissance moyenne maximale du faisceau est de 7 KW. L'énergie maximale à courant nul 54 MeV. En régime permanent pour des impulsions de 1 et 2 μ S qui, seules, sont intéressantes pour l'activation, les courants de crête sont, respectivement, 90 mA à 45 MeV et 140 mA à 38 MeV, soit pour 1 μ S de largeur et une fréquence de répétition de 500 Hz respectivement 45 et 70 μ A de courant moyen.

A - Les équipements d'irradiation

La sortie directe de l'accélérateur est réservée aux expériences de physique nucléaire. Une déviation électromagnétique spécialement installée pour les irradiations déplace verticalement le faisceau pour le centrer sur le dispositif de positionnement des cartouches. Le tube pneumatique débouche dans la chambre des cibles perpendiculairement au faisceau d'électrons. Les cartouches qui contiennent les échantillons sont positionnées avec précision dans l'axe du faisceau de rayons γ de freinage par le montage d'irradiation. Les cibles sont interchangeables par télécommande. Elles sont refroidies par circulation d'eau. Pour les expériences d'analyse par activation une cible de platine d'épaisseur 6 mm est utilisée. Tout le faisceau d'électrons pour $E_o < 45$ MeV est donc absorbé. On évite ainsi les échauffements excessifs résultant de l'action directe du faisceau incident sur les matériaux environnants. Les cartouches pendant l'irradiation sont refroidies par un courant d'air comprimé. Ce qui n'empêche qu'au bout de plusieurs heures de fonctionnement continu, la température des échantillons peut atteindre 100°C. En effet, le flux très important de rayons γ donne naissance par effet Compton, photo-électrique, création de paires, réactions photonucléaires, à des faisceaux de particules secondaires, électrons, protons, etc... qui, outre la production éventuelle d'un nouveau rayonnement de freinage d'énergie moindre, sont ralenties (surtout les particules lourdes) par interaction coulombienne et de ce fait contribuent aux échanges thermiques. Ces phénomènes de cascade sont d'ailleurs très complexes et loin d'être négligeables.

Une liaison pneumatique relie la chambre des cibles au laboratoire d'analyse situé

à 200 mètres environ. Le temps de transit des cartouches est d'environ 20 sec. Dans le laboratoire, les cartouches peuvent être dirigées dans une cellule blindée de 5 cm de plomb ou directement dans une hotte ventilée en cas d'analyses rapides non destructives. Les cartouches d'irradiation sont en aluminium. Par irradiation aux photons γ on a les réactions suivantes sur l'aluminium :

^{27}Al (γ , n)^{26} Al	$T_{1/2}$ 6,5 sec.	et 7,4. 10^5 années
^{27}Al (γ , ^3He)^{24}Na	$T_{1/2}$ 15,4 h	
^{27}Al (n, p)^{27}Mg	$T_{1/2}$ 9,5 min.	

L'expérience montre que c'est surtout la formation de ^{26}Al $T_{1/2}$ 6,5 sec. qui est réellement importante. La période étant très courte, l'activité devient négligeable au bout de quelques minutes. La formation de ^{27}Mg est moindre. Quant à l'activité du ^{24}Na qui peut naturellement aussi être formé par la réaction ^{27}Al (n, α)^{24}Na, elle est relativement faible pour des irradiations de quelques minutes.

Dans la cellule blindée existe une enceinte de stockage constituée par une roue tournante pouvant contenir 32 cartouches. Après un tour complet, les cartouches sont de nouveau utilisées. L'expérience montre alors que pour des irradiations inférieures à quelques dizaines de minutes, l'activité des cartouches est telle qu'au bout de quelques heures elles sont manipulables sans précautions spéciales.

Remarquons que l'utilisation d'une déviation sur la sortie de l'accélérateur comporte des avantages et des inconvénients.

- Avantage

La déviation étant une optique électronique, le spectre en énergie des électrons sortants est beaucoup plus fin que sur la voie directe. Cela est intéressant pour des expériences où le front du spectre du rayonnement de freinage doit être raide.

Exemple : irradiation de plusieurs éléments simultanément, dont les seuils sont très voisins et dont on ne veut activer que certains.

- Inconvénient

L'affinement du spectre se fait naturellement aux dépens de l'intensité du faisceau. Le courant à la sortie d'une déviation est donc systématiquement inférieur à celui de la voie directe. Il en résulte une réduction du flux total des rayons γ de freinage.

B - Contrôle du faisceau

L'intensité du faisceau est mesurée par une ferrite à la sortie de l'accélérateur. De plus, le courant sur la cible de platine est également mesuré. Bien que peu précise par suite des phénomènes d'émission secondaire, cette dernière mesure donne toujours des renseignements utiles. Le diamètre du faisceau d'électrons à la sortie de la déviation est voisin de 10 mm. Les cibles de platine ont un diamètre de 20 mm. Pour une même indication de courant, le faisceau peut donc frapper la cible suivant des écarts par rapport à l'axe de symétrie de $\pm$ 5 mm. De plus, il est bien probable qu'à l'intérieur de la tache du faisceau existe un gradient fonctior de l'énergie. Ainsi, compte tenu des formes des courbes de distribution angulaire données plus haut, on peut obtenir des activités induites très différentes d'une expérience à l'autre si le point d'impact

du faisceau d'électrons évolue. C'est ce qui est effectivement constaté. Un exemple typique de graphique de variation des activités spécifiques à énergie et courant constants est représenté sur la figure IV-1. Il s'agit de disques de graphite d'épaisseur 1 mm irradiés à 35 MeV avec une intensité de faisceau de 25 μ A. On peut voir que les variations sont très importantes et peuvent atteindre un facteur 2 par rapport à la valeur moyenne.

Pour un contrôle efficace de la position du faisceau sur la cible, on peut utiliser un quartz placé juste devant cette dernière. La luminescence du quartz sous l'impact des électrons permet alors de repérer avec précision l'endroit où tombe le faisceau. Ce quartz peut, en outre, être déplacé longitudinalement suivant l'axe du faisceau. Ainsi il est possible de vérifier sa convergence sur la cible.

Après un déplacement, le recentrage du faisceau d'électrons est pratiquement impossible par des moyens propres à l'accélérateur. Pour conserver ce centrage très important en analyse par activation, le montage d'irradiation est raccordé au réseau pneumatique par une liaison souple. Deux moteurs télécommandés centrent alors, par des déplacements perpendiculaires suivant x et y, l'ensemble du montage avec la cible dans l'axe du faisceau. Les cartouches sont alors toujours irradiées dans les mêmes conditions. Avec ce dispositif l'expérience montre que la reproductibilité des activités mesurées sur des moniteurs du type ci-dessus est meilleure que quelques pour cent. La caméra de télévision placée dans la chambre des cibles pour ces mesures est naturellement équipée d'objectifs en verre stabilisé qui peuvent être irradiés sans altération importante pendant plusieurs dizaines d'heures. Les figures IV-2 et 3 donnent des représentations très schématiques de ces installations.

C - Forme du faisceau des photons γ de freinage

Il a déja été indiqué que de très nombreuses expériences sont réalisées à SACLAY pour déterminer les courbes de répartition spectrale et angulaire du rayonnement de freinage en fonction de l'énergie E_o des électrons et de la nature physique des cibles. Les courbes des figures IV-4, 5, 7 et 8 donnent une idée des gradients d'activation longitudinaux et transversaux que l'on peut rencontrer. Il s'agit d'expériences faites à l'accélérateur linéaire de SACLAY. Rappelons que, pour cette machine, le faisceau d'électrons à la sortie de la déviation électromagnétique est à l'intérieur d'une tache de diamètre environ 10 mm. Celui de la cible de platine d'épaisseur 6 mm est de 20 mm. Pour construire les deux premières courbes des disques de graphite d'épaisseur 1 mm et de diamètre 20 mm ont été irradiés dans des positions convenables suivant l'axe longitudinal du faisceau. L'origine de tous ces graphiques est confondue avec la face arrière de la cible.

Dans les conditions expérimentales précitées, les deux courbes de gradients longitudinaux montrent que, pour les premiers mm, ce gradient est de l'ordre de 3 % par mm. Pour les 10 premiers cm, on peut admettre très approximativement qu'il est constant et égal à un facteur 2 pour une translation de 3,5 cm. Une étude grossière du gradient transversal est réalisable en irradiant un ensemble d'échantillons concentriques judicieusement positionnés dans une cartouche tel que représenté sur la figure IV-6.

Les courbes des figures IV-7 et 8 se rapportent à des ensembles en graphite placés tous les 2,5 cm dans une cartouche et irradiés respectivement à 35 et 25 MeV avec la même cible que ci-dessus. Pour ces deux irradiations, les courbes n° 1, 2, 3 et 4 sont relatives aux anneaux concentriques placés respectivement à 10, 35, 60, 85 mm derrière la face de sortie de la cible. Chaque courbe représente le gradient transversal existant à la position d'irradiation

correspondante. On peut voir que ce gradient diminue au fur et à mesure que l'on s'éloigne de la cible en même temps que le flux d'ailleurs. Les courbes de 25 MeV montrent en outre que le gradient transversal est particulièrement important les premiers 3 mm dans les quatre positions d'irradiation. Ce résultat s'explique en considérant d'une part le seuil relativement élevé de la réaction (γ , n) sur le carbone situé à 18,7 MeV et le fait que les photons γ les plus énergiques sont toujours dirigés vers l'avant. Cet effet est naturellement beaucoup moins sensible quand on utilise des électrons de 35 MeV. Mais, pour une réaction de seuil voisin de 30 MeV environ, les courbes de gradient seraient tout à fait identiques. Ces courbes montrent que le gradient transversal est d'autant plus petit que l'énergie est élevée comparativement à la position de la résonance géante de la réaction photonucléaire étudiée.

V - APPLICATION A L'ANALYSE PAR ACTIVATION

A - Généralités

Nous avons déjà indiqué à plusieurs reprises que les seuils des réactions photonucléaires sont de l'ordre de 10 MeV et même plus pour certaines. Les photons γ d'une telle énergie sont évidemment très pénétrants dans la matière. Ainsi pour un échantillon irradié de plusieurs g les dépressions de flux par absorption et par diffusion sont absolument négligeables. Donc l'impureté recherchée est irradiée au sein d'un échantillon partout de la même façon.

Dans le cas général de l'activation, le taux de comptage mesuré peut se représenter par une expression de la forme

$$A = \rho\, n' (1 - e^{-\lambda\tau}) e^{-\lambda t} \int_{E_s}^{E_p} \psi\, \phi_E\, \sigma_E\, d\,E$$

- ρ rendement de l'installation de comptage
- n' nombre d'atomes dans l'échantillon
- τ durée d'irradiation
- t temps écoulé depuis la fin de l'activation
- λ constante radioactive de l'isotope produit
- E_s seuil de la réaction nucléaire
- E_p énergie des particules incidentes
- ϕ_E flux du faisceau pour une bande d'énergie de 1 MeV. Pour les particules chargées ϕ_E est constant en première approximation. En ce qui concerne les photons γ , ϕ_E varie naturellement suivant la forme du spectre. Dans la relation ci-dessus, on suppose de plus que les gradients longitudinaux et transversaux sont négligeables pour les photons γ.
- σ_E est la section efficace de la réaction pour une bande d'énergie de 1 MeV
- ψ est la fonction de distribution de l'impureté à doser dans l'échantillon irradié.

Cette fonction est constante si l'impureté est distribuée homogènement. Cette hypothèse pourrait ne pas être vérifiée pour les teneurs très faibles, inférieures à 10^{-6} en va-

leur relative. Pour l'activation par des particules dont l'énergie diminue en pénétrant dans l'épaisseur de l'échantillon, on doit donc admettre à priori que Ψ est constante. Dans le cas contraire, le résultat d'analyse pourrait être entaché d'une erreur pratiquement impossible à chiffrer.

Pour les photons γ on n'a plus d'hypothèse à formuler sur la fonction Ψ , les impuretés étant activées uniformément dans toute la masse. Cela confère évidemment un intérêt tout particulier à l'activation par les photons γ pour les dosages de traces ultimes d'éléments légers C, N et O.

B - Courbes d'activation

Les possibilités de l'activation aux photons γ sont mises en évidence par les courbes d'activation qui traduisent graphiquement les variations en fonction de l'énergie des électrons, de l'activité induite. Ces mesures étant faites dans des conditions expérimentales bien précises. Les courbes d'activation des trois impuretés ci-dessus sont représentées sur les figures V-1a, 1b et 1c. On peut en trouver d'autres dans diverses publications [15] [16] relatives à des travaux effectués avec les installations de l'accélérateur linéaire de SACLAY.

En ce qui concerne les courbes des figures V-1, les moniteurs irradiés avaient des épaisseurs inférieures à 1 mm et un diamètre de 20 mm. Ils ont été positionnés à environ 10 mm derrière la face de sortie de la cible de platine de 6 mm. Il est indispensable de bien spécifier que ces courbes ne sont valables que dans les conditions expérimentales précitées. En irradiant des moniteurs plus petits ou dans une position différente, éventuellement avec une cible plus mince, il est à peu près certain que les courbes obtenues seraient différentes. Cette corrélation entre les activités induites et les circonstances expérimentales d'irradiation se comprend facilement d'après l'ensemble des propriétés du rayonnement de freinage produit par un accélérateur énumérées dans les paragraphes précédents.

Les courbes des figures V-1 montrent en outre que pour des énergies supérieures à environ 30 MeV, les activités spécifiques induites respectivement sur C, N et O croissent exponentiellement avec l'énergie en restant sensiblement parallèles. Cela est une conséquence directe de la largeur finie des résonances et de l'évolution des spectres de freinage avec l'énergie des électrons.

Ainsi, connaissant les valeurs des activités induites pour une énergie $E_o > 30$ MeV, celles pour des énergies plus élevées se déterminent par une relation du type

$$A_E = A_{Eo}\, e^{\frac{E - Eo}{C}}$$

La constante C dépendant des divers paramètres physiques et géométriques de l'ensemble cible échantillon ainsi que des dimensions du faisceau d'électrons. Pour les installations de l'accélérateur linéaire de SACLAY la constante C vaut 10,8 MeV.

C - Réactions nucléaires d'interférences

On peut grouper les diverses interférences dont il faut tenir compte en deux grandes catégories :

1. Celles concernant la formation du même radionucléide que celui utilisé pour le dosage par des processus primaires ou secondaires.

a. Processus primaires

On peut citer comme exemple le dosage du carbone par la réaction $^{12}C\ (\gamma, n)^{11}C$ dont les principales réactions d'interférences sont

$$^{14}N\ (\gamma, t)^{11}C \qquad \text{et} \qquad ^{16}O\ (\gamma, \alpha\, n)^{11}C$$

Leur élimination ne peut être obtenue que par un choix convenable de l'énergie d'irradiation en supposant que leurs seuils sont effectivement supérieurs de plusieurs MeV à celui de la réaction utilisée pour le dosage. Cette condition est assez facilement satisfaite pour les éléments légers C, N, O et F. On peut voir en effet d'après les valeurs du tableau VI que les écarts de seuil sont de plusieurs MeV dans les cas de ces quatre éléments.

Mais au fur et à mesure que l'on considère des éléments de plus en plus lourds, la décroissance progressive des seuils des réactions parasites (γ, p), (γ, d), (γ, t), (γ, tn), (γ, ^{3}He), (γ, α), (γ, α n), etc ... (cf tableau I et les courbes des figures I-1, 2 et 3) rend plus difficile la discrimination. Remarquons que les sections efficaces de ces réactions doivent être relativement faibles puisque l'importance de la barrière coulombienne croît, elle aussi, avec Z. Mais du fait que les seuils sont très bas et que la forme du spectre de freinage favorise l'activation aux basses énergies, ces réactions sur les éléments lourds sont loin de pouvoir être négligées.

Remarquons que pour certains éléments les interférences par des processus primaires du type mentionné dans les lignes précédentes n'existent pas. Parmi les exemples les plus intéressants, on peut citer :

- le dosage du fer par la réaction $^{54}Fe\ (\gamma, n)^{53}Fe$ de période 8,4 min,
- le dosage du nickel par la réaction $^{58}Ni\ (\gamma, n)^{57}Ni$ dont la période est de 37 h,
- le dosage du zinc par la réaction $^{64}Zn\ (\gamma, n)^{63}Zn$ de période 38 min,
- celui du krypton par la réaction $^{78}Kr\ (\gamma, n)^{77}Kr$ de période 1,2 h,
- il en existe d'autres qu'on peut repérer très facilement en consultant un tableau d'isotopes, qui concernent particulièrement les éléments suivants :

  Sr, Ru, Sn, Xe, Ba, Ce, Sm, Dy, Er, Yb, Hf, Hg et Pb.

b. Processus secondaires

Les particules éjectées lors des réactions (γ, p), (γ, d), (γ, ^{3}He), (γ, α), etc... peuvent à leur tour provoquer des réactions nucléaires sans compter celles produites par les flux très importants de neutrons rapides.

Si par exemple on irradie une matrice présentant une très grande section efficace pour la réaction (γ, p), on peut avoir des réactions d'interférences du genre

$^{11}B\ (p, n)^{11}C$)
$^{14}N\ (p, \alpha)^{11}C$) pour le dosage du carbone

$^{18}O\ (p, n)^{18}F$ pour le dosage du fluor

Il est évident que ces réactions d'interférences sont très difficiles à éliminer étant donné que, le plus souvent, les seuils des réactions (γ, p) sont inférieurs à ceux des (γ, n).

Dans la même catégorie on peut classer les réactions d'enchainement du type

$^{20}Ne\ (\gamma, p)^{19}F\ (\gamma, n)^{18}F$ interférant dans le dosage du fluor

Néanmoins, il faut bien remarquer qu'il s'agit déjà de réactions de second ordre dans ce qui précède. La section efficace totale par rapport au processus primaire est naturellement très petite dans le cas général. Mais il est nécessaire de ne pas les ignorer afin d'éviter dans des cas exceptionnels de très importantes erreurs analytiques.

En ce qui concerne les neutrons rapides, les flux sont toujours très importants. Aussi est-il indispensable d'en tenir compte. Les principales réactions nucléaires d'interférence qu'ils engendrent sont du type

$$(n, p) \quad (n, d) \quad (n, t) \quad \text{et} \quad (n, \alpha)$$

Par exemple le dosage du niobium par la réaction $^{93}Nb\ (\gamma, n)^{92}Nb$ peut être faussé par la présence de molybdène, par l'intermédiaire de la réaction $^{92}Mo\ (n, p)^{92}Nb$.

2. La seconde catégorie d'interférences est relative aux radionucléides de périodes sensiblement identiques simultanément formés par irradiation d'un échantillon contenant les impuretés correspondantes. Ce type d'interférences n'est donc à considérer que dans les dosages non destructifs.

Exemple :

$^{16}O\ (\gamma, n)^{15}O$	$T_{1/2}$ 2,1 min.	émetteur β^+ pur
$^{31}P\ (\gamma, n)^{30}P$	2,6 "	"
$^{32}S\ (\gamma, d)^{30}P$	2,6 "	"
$^{14}N\ (\gamma, n)^{13}N$	10,0 "	"
$^{54}Fe\ (\gamma, n)^{53}Fe$	8,4 "	émetteur β^+ et γ
$^{63}Cu\ (\gamma, n)^{62}Cu$	9,8 "	"
$^{12}C\ (\gamma, n)^{11}C$	20,3 "	émetteur β^+ pur
$^{107}Ag\ (\gamma, n)^{106}Ag$	24 "	émetteur β^+ et γ

Il peut en exister de très nombreuses. Afin de bien montrer l'importance de ce type d'interférences, le tableau VII groupe les principales réactions par irradiation aux photons aboutissant à des radioisotopes de périodes respectives voisines de 2, 10 et 20 minutes, interférant par conséquent dans les analyses non destructives de l'oxygène, de l'azote et du carbone. Si des comptages en coincidence sont faits sur les deux rayons γ d'annihilation des β^+, la majorité de ces réactions sont éliminées. Mais il en subsiste encore suffisamment qu'on ne peut éliminer par ce procédé. De toute façon, ce tableau montre qu'il est indispensable d'utiliser la technique de comptage ci-dessus. En utilisant une méthode de comptage β ou γ global, les causes d'erreurs analytiques sont trop nombreuses.

Ces réactions d'interférences peuvent naturellement être éliminées dans tous les cas en effectuant la séparation chimique du nucléide à compter.

Comme les photons γ sont souvent utilisés pour les dosages non destructifs de C, N et O, nous donnons, figures V-2, 3 et 4, des courbes qui traduisent graphiquement l'importance relative des interférences respectives de l'argent dans le dosage du carbone, fer et cuivre dans celui de l'azote, phosphore et soufre dans celui de l'oxygène, en fonction de l'énergie du faisceau d'électrons.

D - Teneurs minimales dosables

Deux cas doivent être considérés :

1. Celui des analyses non destructives où il est impossible de généraliser. En effet, la limite de détection dépend étroitement de la matrice et des autres impuretés présentes dans l'échantillon. Dans le tableau VIII sont résumés quelques exemples relatifs aux dosages non destructifs de C, N, O et F dans divers matériaux supposés de très haute pureté.

Ces valeurs de teneurs minimales dosables sont relatives à l'irradiation d'un échantillon pesant environ 1 g pendant une durée du même ordre de grandeur que la période de l'isotope produit dans un faisceau de rayons γ correspondant à un courant de 100 μ A moyen.

A titre d'exemple, quelques courbes de décroissance relatives au dosage non destructif de C, N, O et F dans du béryllium de très haute pureté sont données sur les figures V-5, 6, 7, 8 et 9. Il est bien entendu que, pour des analyses systématiques, on utilise pour les dépouillements les calculateurs électroniques qui, outre les valeurs des activités à l'origine des termes composants et les erreurs quadratiques moyennes dont elles sont entachées, fournissent la courbe de décroissance expérimentale et les droites composantes en coordonnées semi-logarithmiques naturellement. Il est ainsi possible avec un peu d'habitude de contrôler très rapidement l'exactitude du dépouillement.

Insistons sur le fait que les possibilités d'analyses non destructives ne sont pas limitées aux cas précis cités ci-dessus. Ainsi, on peut également doser le zirconium par la réaction $^{90}Zr\ (\gamma, n)^{89}Zr$ de période 79 h dans les matériaux dont il est question dans le tableau VIII de même que dans le hafnium par exemple. E. SCHWEIKERT et Ph. ALBERT (16) ont étudié de nombreux éléments Si, Ti, Cr, Mn, Fe, Co, Ni, Cu, Zn, Ga, As, Zr, Nb, Mo, Ag, Cd, Sb, Hf, Ta, W, Pt, Tl, Pb et Bi. Ils donnent des renseignements intéressants concernant les possibilités d'analyses non destructives relatives à ces éléments.

2. Celui des analyses avec séparation chimique des isotopes créés. La matrice et les autres impuretés n'interviennent évidemment plus dans la mesure où elles ne contribuent pas à la formation des mêmes nucléides que les éléments à caractériser. Dans la publication des auteurs ci-dessus on trouve des indications intéressantes concernant quelques éléments métalliques. Pour les éléments légers C, N, O et F, nous définissons les limites de détection comme étant la quantité d'impureté qui, à la fin des opérations chimiques, donne un taux de comptage effectif de 10 impulsions par minute.

Le dispositif de mesure est supposé avoir une efficacité de 10 %. Avec un ensemble de comptage en coincidences, on peut abaisser le bruit de fond à quelques impulsions par minute dans le pic à 0,51 MeV.

Les durées des séparations sont estimées à 20 minutes pour ^{11}C et ^{13}N par fusion oxydante et inférieure à 5 minutes pour ^{13}N et ^{15}O par fusion réductrice. La séparation du fluor 18 ne pose en principe aucun problème. De nombreuses méthodes sont utilisables et décrites dans les traités de chimie analytique. En effectuant par exemple cette opération par distillation de SiF_6H_2, il faut approximativement une trentaine de minutes.

Dans ces conditions, en irradiant à la saturation dans un faisceau de 100 μ A moyen on peut doser les teneurs minimales en fonction de l'énergie E des électrons incidents, portées dans le tableau IX.

Donc, en irradiant des échantillons de plusieurs g, ce qui est parfaitement possi-

ble, compte tenu de la pénétration des photons γ de grande énergie, on peut doser ces impuretés à des teneurs de quelques 10^{-3} ppm.

E - Installations de séparation rapide de ^{11}C, ^{13}N et ^{15}O.

Pour séparer ces isotopes après irradiation des échantillons à l'accélérateur linéaire en vue de doser C, N et O à l'état de trace, on peut utiliser :

1. La fusion oxydante pour séparer ^{11}C et ^{13}N. Pour augmenter l'efficacité d'extraction voisine de 90 %, on utilise un mélange fondant oxydant à base de Pb_3O_4 et B_2O_3. Les résultats s'avèrent également plus reproductibles. Le générateur HF de puissance nominale 4 KW doit avoir une fréquence élevée voisine de 5 MHz pour que le couplage sur le mélange fondant soit excellent [17].

2. La fusion réductrice pour séparer ^{13}N et ^{15}O. Le professeur V.A. FASSEL [18] a développé les méthodes de séparation de l'oxygène et de l'azote par fusion réductrice en creuset de graphite. Au laboratoire d'analyse par activation de SACLAY, ces méthodes sont directement transposées et adaptées à la séparation simultanée de ^{13}N et ^{15}O. Ces deux isotopes sont séparés par ces techniques en moins de quelques minutes. Les rendements d'extraction sont également voisins de 90 %.

Par les procédés de séparation ci-dessus, on obtient respectivement $^{11}CO_2$, $C^{15}O_2$ et $^{13}N_2$. Le CO_2 est piégé dans l'amiante sodée, l'azote sur tamis moléculaire refroidi entre - 70°C et 180°C. Les pièges sont directement placés entre deux compteurs à scintillations de grand diamètre 80 mm x 100 mm. Les schémas de principe de deux installations en exploitation à SACLAY sont donnés sur les figures V-10 et 11.

VI - PERSPECTIVES D'AVENIR DE L'ANALYSE PAR ACTIVATION AUX PHOTONS γ

Depuis quelques années, on voit apparaitre de plus en plus sur le marché mondial des accélérateurs linéaires de très grande souplesse d'utilisation. La plupart d'entre eux sont en effet prévus pour avoir une plage de fonctionnement stable de 2 à 3 MeV jusqu'à 25 à 30 MeV; les intensités de faisceau atteignant facilement 500 à 1000 μ A moyen. Avec de telles machines, en utilisant les méthodes de séparation rapide ci-dessus mentionnées, on pourra doser des teneurs aussi basses que 1 ppb de carbone, d'azote, d'oxygène, de fluor, en quelques minutes, ainsi d'ailleurs que de nombreuses impuretés métalliques peu sensibles aux neutrons avec des limites de détection du même ordre de grandeur.

De plus, H.R. LUKENS et al [19] avaient déjà montré que de nombreuses autres possibilités analytiques découlent de l'utilisation des réactions (γ, γ') en irradiant des échantillons à des énergies de quelques MeV seulement. Dans ce domaine d'énergie, on produit en effet surtout des isomères actifs. De nombreux dosages non destructifs sont possibles. D'après les travaux des auteurs ci-dessus, cette méthode semble particulièrement intéressante pour doser des impuretés comme Se, Y, Er, Hf, Ir et Au.

Plus récemment, G. H. ANDERSEN, V. P. GUINN et D. M. SETTLE [20] ont montré qu'avec l'accélérateur linéaire dont ils disposent ils peuvent doser d'une façon non destructive 0,1 ppm de plomb dans le sang par la réaction ^{204}Pb (γ, n)^{203}Pb dont la période est de

52 h. Cet exemple montre que l'activation aux photons γ n'est pas seulement intéressante pour les échantillons métallurgiques, mais aussi pour résoudre des problèmes d'analyses biologiques précises.

Enfin peu de travaux ont été faits sur l'utilisation des neutrons produits par irradiation aux photons γ de grande énergie. Bien que d'un emploi plus délicat à cause du fond γ très important, il pourrait, là aussi, y avoir des applications intéressantes.

Les possibilités que peut offrir un accélérateur linéaire d'électrons dans le domaine de la physique analytique semblent donc particulièrement immenses.

Pour terminer, nous présentons dans les figures suivantes (VI-1, 2, 3, 4, 5, 6, 7,) quelques photographies relatives aux équipements actuellement utilisés près de l'accélérateur linéaire de SACLAY.

Manuscrit reçu le 5 juillet 1967

BIBLIOGRAPHIE

(1) R.J. HOWERTON, D. BRAFF, W.J. CAHILL, N. CHAZAN
Tresholds for gamma induced reactions
UCRL 14 006, Sept. 14, 1964

(2) R.A. FAIRES, J.E. JOHNSTON, R.J. MILLETT
Nucleonics 12 - n° 10 - 48 - 1954

C.P. HAIGH
Nature 172 - 359 - 1953

(3) V.P. GUINN, H.R. LUKENS
ANS Transactions, vol. 9, n° 1, page 106, 1966

(4) J. BERNARD
Etude du rayonnement de freinage
Production de rayons γ par des accélérateurs d'électrons
Rapport CEA n° 1969 - 1961

(5) L. H. LANZL, A. O. HANSON
Physical Review vol. 83, n° 5, Sept. 1, 1951

(6) M. H. Mc GREGOR
Nucleonics Data Sheet n° 29, Feb. 1959

(7) C. TZARA
Rapport CEA n° 814, 1958

(8) L. W. JONES et K. M. TERWILLIGER
Physical Review, vol. 91, n° 4, Aug. 1, 1953

(9) J. MILLER
La résonance géante et les états dipolaires des noyaux légers
Rapport CEA R 2736, 1965

(10) J.N. BRADFORD
Photoneutron Cross section of ^{141}Pr, ^{16}O et ^{12}C
TID 4500, Janvier 1, 1965

(11) R. MONTALBETTI, L. KATZ, J. GOLDEMBERG
Physical Review, vol. 91, n° 3, Aug. 1, 1953

(12) R.J. HORSLEY, R.N.H. HASLAM, H.E. JOHNS
Physical Review, vol. 87, n° 2, Sept. 1, 1952

(13) C. SCHUHL
Mesure de sections efficaces de photoproduction de neutrons en valeur absolue
Rapport CEA, n° 2148, 1962

(14) K. STRAUCH
Annual Review of Nuclear Science, 105 - 128 - 2 - 1953

(15) Ch. ENGELMANN
Utilisation des particules autres que les neutrons en analyse par activation
Rapport CEA n° 2559 - 1964

Ch. ENGELMANN
Radiochemical Methods of Analysis, vol. 1 - I.A.E.A.
Proceedings of a symposium SALZBOURG 19-23 Oct. 1964

(16) E. SCHWEIKERT et Ph. ALBERT
Radiochemical Methods of Analysis, vol. 1 - I.A.E.A.
Proceedings of a symposium SALZBOURG 19-23 Oct. 1964

(17) P. BOILLOT, R. BOULIN, E. JAUDON
Chimie Analytique 47 - Mars 1965

I.R. GREEN, J.E. STILL, R.C. CHIRNSIDE
The Analyst 87 - Juillet 1962

(18) K.R. WINGE, V.A. FASSEL
Anal. Chem. 37 - 1 - 1965

V.A. FASSEL
IS 1500 - 1966
Iowa State University of Science and Technology, AMES Laboratory

(19) H.R. LUKENS, J.W. OTVOS, C.D. WAGNER
Intern. Journal of Appl. Radiation and Isotopes - vol. 11 - 1961

(20) G.H. ANDERSEN, V.P. GUINN, D.M. SETTLE
ANS Transactions, Vol. 9 , n° 1, 1966

LEGENDES DES FIGURES

Figure n°

I-1 Variation du seuil de la réaction (γ, n) en fonction du numéro atomique Z des noyaux irradiés

I-2 Variation du seuil de la réaction (γ, t) en fonction du numéro atomique Z des noyaux irradiés

I-3 Variation du seuil de la réaction (γ, α n) en fonction du numéro atomique Z des noyaux irradiés

I-4 Forme caractéristique de la courbe d'excitation d'une réaction photonucléaire

II-1 Distribution spectrale du rayonnement de freinage pour diverses énergies des électrons 20, 30, 40 et 50 MeV. N est le nombre de photons par bande de 1 MeV émis vers l'avant par stéradian pour 1 électron incident bombardant une cible de platine d'épaisseur 6 mm

II-2 Distribution spectrale du rayonnement de freinage pour des énergies voisines 24, 26, 28, 30 et 32 MeV. N a la même signification qu'en II-1

II-3 Distribution angulaire du rayonnement de freinage. η est le rapport du nombre de photons émis vers l'avant et du nombre de photons émis dans l'espace complémentaire, c'est-à-dire non vers l'avant. La cible de platine a une épaisseur de 6 mm et l'énergie des électrons est de 30 MeV.

II-4 Influence de l'épaisseur des cibles de platine pour des électrons de 30 MeV sur la distribution spectrale du rayonnement de freinage. N est le nombre de photons émis vers l'avant par bande d'énergie de 1 MeV pour 1 électron incident.

II-5 Parcours R en mm des électrons dans le platine en fonction de leur énergie en MeV

II-6 Distribution angulaire du rayonnement de freinage produit par des électrons de 17 MeV bombardant des cibles en or d'épaisseur

a. 51 mg cm^{-2} c. 967 mg cm^{-2}

b. 247 " d. 7250 "

$\frac{N_\Theta}{N_0}$ est le rapport de l'intensité du rayonnement émis dans la direction de l'angle Θ exprimé en degrés par rapport à l'intensité existant dans la direction du faisceau d'électrons $\Theta = 0$

II-7 Variation du rendement de production de l'intensité axiale du faisceau de photons en fonction de l'épaisseur des cibles pour des électrons de 17 MeV. ρ est le rendement axial en unités arbitraires et e l'épaisseur des cibles d'or en g cm^{-2}

II-8 Variation du rendement axial ρ de la figure II-7 au voisinage du maximum définissant la valeur optimale de l'épaisseur de la cible

II-9 Variation de l'intensité axiale Io en unités arbitraires pour une cible d'épaisseur optimale en fonction de l'énergie des électrons

II-10 Rendement de production du rayonnement de freinage en fonction de l'énergie des électrons pour des cibles en Au, Cu et Al. L'épaisseur des cibles est dans tous les cas supérieure au parcours des électrons. ρ est le rendement en unités arbitraires.

II-11 Spectre des photons produits par annihilation en vol de positons d'énergie E_+

a est le spectre d'annihilation
b est le spectre de freinage des positons dans la cible d'annihilation
N est le nombre de photons émis par bande d'énergie de 1 MeV.

III-1 Courbe d'excitation de la réaction $^{12}C(\gamma, n)^{11}C$ (9)

III-2 Courbe d'excitation de la réaction $^{14}N(\gamma, n)^{13}N$ (14)

III-3 Courbe d'excitation de la réaction $^{16}O(\gamma, n)^{15}O$ (9)

III-4 Courbe d'excitation de la réaction $^{19}F(\gamma, n)^{18}F$ (12)

III-5 Courbe d'excitation de la réaction $^{24}Mg(\gamma, n)^{23}Mg$ (9)

III-6 Courbe d'excitation de la réaction $^{40}Ca(\gamma, n)^{39}Ca$ (9)

III-7 Courbe d'excitation de la réaction $^{139}La(\gamma, n)^{138}La$ (13)

III-8 Courbe d'excitation de la réaction $^{181}Ta(\gamma, n)^{180}Ta$ (13)

III-9 Courbe d'excitation de la réaction $^{197}Au(\gamma, n)^{196}Au$ (13)

IV-1 Exemple de variation en fonction du temps des activations de disques de graphite pour une énergie constante de 35 MeV et un courant mesuré fixe de 25 µ A. La position du faisceau sur la cible n'a pas été contrôlée par le circuit de télévision

A activités mesurées en unités arbitraires
t temps en heures

Le diamètre des disques est de 20 mm, l'épaisseur 1 mm. Ils ont tous été irradiés pendant 1 minute à 10 mm derrière la face de sortie de la cible de platine

IV-2 Représentation schématique de l'accélérateur linéaire, de la déviation et du montage d'irradiation

1 canon à électrons
2 1ère section d'accélération
3 2ème section d'accélération
4 3ème section d'accélération
5 déviation électromagnétique
6 cible de platine refroidie à l'eau
7 montage d'irradiation

IV-3 Montage d'irradiation

1 fin de la déviation
2 double fenêtre en aluminium séparant le vide de l'accélérateur de l'air
3 quartz
4 changeur de cible télécommandé
5 tube pneumatique
6 cartouche en position d'irradiation

7 vérin pneumatique pour éjection de cartouche
8 platine de fixation du montage d'irradiation mobile suivant x y par l'intermédiaire de deux moteurs télécommandés

IV-4 Gradient longitudinal d'activation. L'épaisseur de la cible de platine est de 6 mm. L'énergie des électrons est 35 MeV.

A est l'activité des moniteurs en unités arbitraires
d la distance en cm par rapport à la face arrière de la cible

IV-5 Gradient longitudinal d'activation le long des premiers mm. L'origine O correspond à l'activité existante à 10 mm derrière la face de sortie de la cible.

A a la même signification qu'en IV-4 ;
d est en mm.

IV-6 Dispositions relatives des ensembles d'anneaux concentriques de graphite utilisés pour les déterminations des gradients transversaux

IV-7 Gradient transversal pour l'activation du carbone à différentes positions derrière la cible pour des électrons incidents de 35 MeV et une cible de platine d'épaisseur 6 mm

A est l'activité mesurée en unités arbitraires
r est la distance radiale comptée à partir de l'axe de la cartouche.

Courbe n°	Position des anneaux par rapport à la face arrière de la cible
1	10 mm
2	35 mm
3	60 mm
4	85 mm

IV-8 Gradient transversal pour des électrons incidents de 25 MeV. Les autres paramètres et définitions sont les mêmes que pour la figure IV-7

V-1a Courbe d'activation du carbone

dpm désintégration par minute pour une irradiation à saturation dans un faisceau de 100 µ A à t_o
E énergie du faisceau d'électrons

V-1b Courbe d'activation de l'azote
dpm et E mêmes significations que pour la figure V-1a

V-1c Courbe d'activation de l'oxygène
dpm et E mêmes significations que pour la figure V-1a

V-2 Variation du rapport des activités spécifiques argent sur carbone en fonction de l'énergie du faisceau d'électrons

$$\rho = \frac{\text{Activité } ^{106}Ag}{\text{Activité } ^{11}C}$$

V-3 Variation du rapport des activités spécifiques cuivre sur azote et fer sur azote en fonction de l'énergie du faisceau d'électrons

$$\rho_{\frac{Cu}{N}} = \frac{\text{Activité } {}^{62}Cu}{\text{Activité } {}^{13}N} \qquad \rho_{\frac{Fe}{N}} = \frac{\text{Activité } {}^{53}Fe}{\text{Activité } {}^{13}N}$$

V-4 Variation du rapport des activités spécifiques phosphore sur oxygène et soufre sur oxygène en fonction de l'énergie du faisceau d'électrons

$$\rho_{\frac{P}{O}} = \frac{\text{Activité } {}^{30}P}{\text{Activité } {}^{15}O} \qquad \rho_{\frac{S}{O}} = \frac{\text{Activité } {}^{30}P}{\text{Activité } {}^{15}O}$$

V-5 Courbe de décroissance relative à un dosage non destructif de l'oxygène et de l'azote dans du béryllium

t irradiation 2 minutes E = 28 MeV I moyen 50 µ A
cible de platine 6 mm

N est le nombre de coups comptés pendant 40 secondes avec un ensemble à coincidences équipé de cristaux NaI (Tl) de 1 3/4" x 2", l'efficacité de détection étant de 5 % environ

V-6 Courbe de décroissance relative à un dosage non destructif de l'oxygène dans du béryllium. La ' neur trop élevée en cuivre ne permet pas, dans ce cas, de déterminer avec précision celle en azote

Les paramètres d'irradiation sont les mêmes que pour la figure V-5. N a également la même signification

V-7 Courbe de décroissance relative à un dosage non destructif de l'azote dans du béryllium. Pour éviter les difficultés de décomposition pouvant provenir de l'activité du ^{11}C (cf fig. V-6) l'échantillon est irradié dans un flux d'énergie maximale 20 MeV

t irradiation = 10 minutes I moyen 50 µ A

N a la même signification que pour la figure V-5

V-8 Courbe de décroissance relative à un dosage non destructif du carbone dans le béryllium

t irradiation = 20 minutes, les autres grandeurs et définitions étant les mêmes qu'en V-5

V-9 Courbe de décroissance relative à un dosage non destructif du carbone et du fluor dans le béryllium. Les paramètres d'irradiation et les définitions sont identiques à ceux de la figure V-8

V-10 Installation de séparation rapide de l'oxygène 15 et de l'azote 13 par fusion réductrice en creuset de graphite

1 colonne de purification de l'hélium silica-gel ascarite et MnO_2
2 débitmètre
3 four à arc 15 volts 250 A
4 laine de quartz
5 four LECO Cu-CuO entre 400 et 600°C pour oxydation du CO en CO_2

6 piège à MnO_2

7 ensemble de comptage de l'ascarite pour le dosage de l'oxygène via CO_2 actif en ^{15}O

8 ensemble de comptage du tamis moléculaire refroidi entre - 70 et - 180°C pour le dosage de l'azote via N_2 actif en ^{13}N

V-11 Installation de séparation rapide du carbone 11 et de l'azote 13 par fusion oxydante

1 colonne de purification de l'hélium silica-gel ascarite et MnO_2

2 débitmètre

3 four HF, creuset contenant le mélange oxydant fondant et l'échantillon

4 laine de quartz

5 four LECO Cu-CuO entre 400 et 600°C pour oxydation du CO en CO_2

6 piège à MnO_2

7 ensemble de comptage de l'ascarite pour le dosage du carbone via CO_2 actif en ^{11}C

8 ensemble de comptage du tamis moléculaire refroidi entre -70 et -180°C pour le dosage de l'azote via N_2 actif en ^{13}N

VI-1 Montage d'irradiation installé dans la chambre des cibles de l'accélérateur linéaire. On peut voir très clairement :

a) les deux moteurs télécommandés qui permettent le centrage de l'ensemble dans l'axe du faisceau

b) le changeur de cible refroidi par circulation d'eau

c) le quartz télécommandé avec ses cercles de repérage. La tache d'impact du faisceau est visible

d) l'arrivée du tube pneumatique derrière les tuyaux d'eau reliés aux cibles .

VI-2 Cartouche d'irradiation pour des petits échantillons métallurgiques ou autres. Ils sont placés avec les moniteurs au fond du couvercle .

VI-3 Cartouche d'irradiation pour des échantillons volumineux. Ils sont introduits directement dans le corps de la cartouche.

VI-4 Cellule blindée de défournement. Dans la partie inférieure de cette cellule se trouve l'enceinte de stockage. Les cartouches sont récupérées par l'intermédiaire d'un vérin pneumatique qui les pousse dans la partie supérieure accessible de la cellule .

VI-5 Vue d'ensemble des équipements de spectrométrie γ . Les deux appareils au fond sont prévus pour faire des comptages de coincidences γ - γ d'annihilation des β^+. Tous les cristaux NaI (Tl) sont de grandes dimensions 80 mm x 100 mm.

VI-6 Ensembles de comptage automatiques pour dosages non destructifs de l'oxygène et comptage des périodes courtes en général. Chaque ensemble se compose de deux voies l'une pour l'échantillon, l'autre pour le moniteur irradié en même temps.

VI-7 Passeur automatique d'échantillons à 15 places. Le dispositif de comptage associé est à coincidences pour sélectionner les γ d'annihilation des β^+. Cet appareillage est utilisé pour les dosages non destructifs de N, C, F, etc ...

TABLEAU I

SEUILS DE QUELQUES REACTIONS PHOTONUCLEAIRES

Caractéristiques de l'isotope produit	Réaction de formation	Abondance isotopique en %	Seuil en MeV
^{11}C	^{12}C (γ , n)	98,90	18,72
$T_{1/2}$ 20,3 min.	^{13}C (γ , 2 n)	1,10	23,67
émetteur β^+ pur	^{14}N (γ , t)	99,63	22,73
	^{14}N (γ , dn)	-	29
	^{15}N (γ , tn)	0,37	33,57
	^{16}O (γ , α n)	99,76	25,88
^{13}N	^{14}N (γ , n)	99,63	10,55
$T_{1/2}$ 10,0 min.	^{15}N (γ , 2 n)	0,37	21,39
émetteur β^+ pur	^{16}O (γ , t)	99,76	25,02
	^{16}O (γ , dn)	-	31,28
	^{17}O (γ , tn)	0,037	29,18
^{15}O	^{16}O (γ , n)	99,76	15,67
$T_{1/2}$ 2,1 min.	^{17}O (γ , 2 n)	0,037	19,81
émetteur β^+ pur	^{19}F (γ , tn)	100	27,36
	^{20}Ne (γ , α n)	90,92	20,39
^{18}F	^{19}F (γ , n)	100	10,44
$T_{1/2}$ 1,7 h.	^{20}Ne (γ , d)	90,92	21,06
émetteur β^+ pur	^{20}Ne (γ , pn)	-	23,29
	^{20}Ne (γ , t)	0,26	21,56
	^{21}Ne (γ , dn)	-	27,82
	^{22}Ne (γ , tn)	8,82	31,95
	^{23}Na (γ , α n)	100	20,93
^{34}Cl	^{35}Cl (γ , n)	75,53	12,65
$T_{1/2}$ 32,4 min.	^{36}Ar (γ , d)	0,34	18,93
émetteur β^+ et γ	^{36}Ar (γ , pn)	-	21,16
$T_{1/2}$ 1,6 sec.	^{38}Ar (γ , tn)	0,063	33,31
émetteur β^+ pur	^{39}K (γ , α n)	93,10	19,86

TABLEAU I

(suite)

Caractéristiques de l'isotope produit	Réaction de formation	Abondance isotopique en %	Seuil en MeV
^{89}Zr	^{90}Zr (γ , n)	51,46	11,94
$T_{1/2}$ 79 h.	^{93}Nb (γ , tn)	100	25,31
émetteur β^+ pur	^{92}Mo (γ , ^3He)	15,84	17
$T_{1/2}$ 4,4 min.	^{94}Mo (γ , n)	9,04	14
émetteur β^+ et γ			
^{106}Ag	^{107}Ag (γ , n)	51,35	9,39
$T_{1/2}$ 8,3 j	^{108}Cd (γ , d)	0,87	15,36
émetteur γ pur	^{108}Cd (γ , pn)	-	17,59
$T_{1/2}$ 24 min.			
émetteur β^+ et γ			
^{108}Ag	^{109}Ag (γ , n)	48,65	9,18
$T_{1/2}$ 2,3 min.	^{110}Cd (γ , d)	12,4	15,86
émetteur β^+ et γ	^{110}Cd (γ , pn)	-	18,09
	^{111}Cd (γ , t)	12,75	16,57
	^{111}Cd (γ , dn)	-	22,83
	^{112}Cd (γ , tn)	24,07	25,87
	^{113}In (γ , α n)	4,28	12
^{159}Gd	^{160}Gd (γ , n)	21,90	7
$T_{1/2}$ 18,5 h.	^{162}Dy (γ , ^3He)	25,53	14,47
émetteur β^- et γ	^{163}Dy (γ , α)	24,97	0,19
	^{164}Dy (, n)	28,18	7,83
^{185}W	^{186}W (γ , n)	28,41	7,27
$T_{1/2}$ 74 j.	^{187}Re (γ , d)	62,93	10,82
émetteur β^- et γ	^{187}Re (γ , pn)	-	13,05
$T_{1/2}$ 1,7 min.	^{188}Os (γ , ^3He)	13,3	12,60
émetteur γ pur	^{189}Os (γ , α)	16,1	0
	^{190}Os (γ , α n)	26,4	5,19

TABLEAU II

ENERGIES CRITIQUES DE QUELQUES SUBSTANCES [4]

Cible	Z	E_c en MeV
H	1	340
He	2	220
C	6	103
Al	13	47
Ar	18	34,5
Fe	26	24
Cu	29	21,5
Pb	82	6,9

TABLEAU III

LONGUEURS DE RADIATION DE QUELQUES SUBSTANCES

Cible	Z	l_R en g cm^{-2}
H	1	58
He	2	55
C	6	42,5
Al	13	23,9
Ar	18	19,4
Fe	26	13,8
Cu	29	12,8
Pb	82	5,8

TABLEAU IV

SECTIONS EFFICACES INTEGREES DE QUELQUES REACTIONS PHOTONUCLEAIRES

Réaction photonucléaire	Limite supérieure d'intégration	Section efficace intégrée	Références
^{12}C (γ, n)^{11}C	25,5 MeV	29,4 ± 3 MeV mb	(9)
	28 "	39,2 "	(9)
	31 "	44 "	(10)
	40 "	55 "	(10)
	65 "	69 "	(10)
^{14}N (γ, n)^{13}N	25 "	15 "	(11)
^{16}O (γ, n)^{15}O	26,5 "	41,5 ± 2 "	(9)
	30 "	49 "	(10)
	62 "	70 "	(10)
^{19}F (γ, n)^{18}F	26 "	39 "	(12)
^{24}Mg (γ, n)^{23}Mg	24 "	55 "	(9)
^{40}Ca (γ, n)^{39}Ca	26 "	73 ± 7 "	(9)
^{139}La (γ, n)^{138}La	21,2 "	1910 "	(13)
^{181}Ta (γ, n)^{180}Ta	22 "	2970 "	(13)
^{197}Au (γ, n)^{196}Au	22 "	3000 "	(13)

TABLEAU V

PRINCIPALES CARACTERISTIQUES DE LA RESONANCE GEANTE DE QUELQUES REACTIONS PHOTONUCLEAIRES

Réaction photo-nucléaire	E_M en MeV	Γ en MeV	σ_M en mb pour $E_\gamma = E_M$	Références
^{12}C (γ, n)^{11}C	22,9	2,8	7,3 ± 0,7	(9)
^{14}N (γ, n)^{13}N	24,2		2,8	(11)
^{16}O (γ, n)^{15}O	24,2		11	(11)
^{19}F (γ, n)^{18}F	20	12,9	3,5	(12)
^{24}Mg (γ, n)^{23}Mg	19,4	5,8	9,8	(12)
^{40}Ca (γ, n)^{39}Ca	19,3	4,2	15	(12)
^{139}La (γ, n)^{138}La	15,6	4,4	350	(13)
^{181}Ta (γ, n)^{180}Ta	13,1 - 16,4	8,8	300 - 390	(13)
^{197}Au (γ, n)^{196}Au	14,2	5,3	480	(13)

TABLEAU VI

PRINCIPALES REACTIONS PHOTONUCLEAIRES PRIMAIRES INTERVENANT DANS LES DOSAGES DE C, N, O et F

Elément à doser	Réaction nucléaire utilisée pour le dosage	Seuil en Me V	Principales réactions d'interférences	Seuil en Me V	Périodes radio-actives
C	^{12}C (γ, n)^{11}C	18,7	^{14}N (γ, t)^{11}C	22,7	20,3 min.
			^{16}O (γ,αn)^{11}C	26	-
N	^{14}N (γ, n)^{13}N	10,5	^{16}O (γ, t)^{13}N	25	10 "
O	^{16}O (γ, n)^{15}O	15,7	^{19}F (γ, tn)^{15}O	27,4	2,1 "
			^{20}Ne (γ,αn)^{15}O	20,4	-
F	^{19}F (γ, n)^{18}F	10,5	^{20}Ne (γ, d)^{18}F	21,1	1,7 h.
			^{23}Na (γ,αn)^{18}F	21	-

TABLEAU VII

PRINCIPALES REACTIONS PHOTONUCLEAIRES CREANT
DES ACTIVITES DE PERIODES VOISINES DE 2, 10 ET 20 MINUTES

Réaction	Période	Radioactivité	Seuil de la réaction en MeV
$^{16}O\ (\gamma, n)^{15}O$	2,1 min.	β^+	15,7
$^{29}Si\ (\gamma, p)^{28}Al$	2,3 "	β^- et γ	12,3
$^{30}Si\ (\gamma, d)^{28}Al$	2,3 "	β^- et γ	20,7
$^{31}P\ (\gamma, n)^{30}P$	2,6 "	β^+	12,3
$^{31}P\ (\gamma, {}^3He)^{28}Al$	2,3 "	β^- et γ	22,5
$^{32}S\ (\gamma, d)^{30}P$	2,6 "	β^+	19
$^{35}Cl\ (\gamma, \alpha n)^{30}P$	2,6 "	β^+	19,3
$^{54}Cr\ (\gamma, p)^{53}V$	2 "	β^- et γ	11,5
$^{54}Fe\ (\gamma, tn)^{50}Mn$	2 "	β^+	36,4
$^{76}Ge\ (\gamma, \alpha n)^{71}Zn$	2,2 "	β^- et γ	16,7
$^{76}Ge\ (\gamma, p)^{75}Ga$	2 "	β^- et γ	-
$^{100}Mo\ (\gamma, p)^{99}Nb$	2,4 "	β^- et γ	-
$^{109}Ag\ (\gamma, n)^{108}Ag$	2,3 "	β^+, β^- et γ	9,2
$^{110}Cd\ (\gamma, d)^{108}Ag$	2,3 "	β^+, β^- et γ	15,9
$^{113}In\ (\gamma, \alpha n)^{108}Ag$	2,3 "	β^+, β^- et γ	12
$^{120}Sn\ (\gamma, p)^{119}In$	2,3 "	β^- et γ	10,8
$^{124}Sn\ (\gamma, \alpha n)^{119}Cd$	2,7 "	β^-	10,8
$^{150}Nd\ (\gamma, d)^{148}Pr$	2 "	β^- et γ	-
$^{168}Yb\ (\gamma, \alpha)^{164}Tm$	2 "	β^+ et γ	0
$^{186}W\ (\gamma, n)^{185}W$	1,7 "	γ	7,3
$^{14}N\ (\gamma, n)^{13}N$	10 "	β^+	10,6
$^{30}Si\ (\gamma, {}^3He)^{27}Mg$	9,5 "	β^- et γ	24,3
$^{39}K\ (\gamma, n)^{38}K$	7,7 "	β^+ et γ	13
$^{40}Ca\ (\gamma, d)^{38}K$	7,7 "	β^+ et γ	19,2
$^{54}Fe\ (\gamma, n)^{53}Fe$	8,4 "	β^+ et γ	13,6
$^{58}Ni\ (\gamma, \alpha n)^{53}Fe$	8,4 "	β^+ et γ	20

TABLEAU VII

(suite)

Réaction	Période	Radioactivité	Seuil de la réaction en MeV
$^{61}Ni\ (\gamma, p)^{60}Co$	10,5 min.	β^- et γ	9,9
$^{63}Cu\ (\gamma, n)^{62}Cu$	9,8 "	β^+ et γ	10,8
$^{76}Ge\ (\gamma, d)^{74}Ga$	8 "	β^- et γ	18,6
$^{80}Se\ (\gamma, p)^{79}As$	9 "	β^- et γ	11,5
$^{96}Zr\ (\gamma, p)^{95}Y$	10,9 "	β^-	-
$^{124}Sn\ (\gamma,\alpha n)^{119}Cd$	11 "	β^-	-
$^{138}La\ (\gamma, 2n)^{136}La$	9,5 "	β^+ et γ	16,7
$^{138}Ce\ (\gamma, d)^{136}La$	9,5 "	β^+ et γ	14,7
$^{141}Pr\ (\gamma,\alpha n)^{136}La$	9,5 "	β^+ et γ	10,5
$^{144}Sm\ (\gamma, n)^{143}Sm$	8,8 "	β^+	10,7
$^{148}Nd\ (\gamma, p)^{147}Pr$	12 "	β^- et γ	-
$^{154}Sm\ (\gamma, {}^3He)^{151}Nd$	12 "	β^- et γ	17
$^{164}Dy\ (\gamma, p)^{163}Tb$	7 "	β^- et γ	-
$^{164}Er\ (\gamma, d)^{162}Ho$	11,8 "	β^+ et γ	12,7
$^{180}W\ (\gamma, d)^{178}Ta$	9,5 "	β^+ et γ	12,1
$^{192}Os\ (\gamma, p)^{191}Re$	9,8 "	β^-	-
$^{12}C\ (\gamma, n)^{11}C$	20,3	β^+	18,7
$^{54}Fe\ (\gamma, d)^{52}Mn$	21 "	β^+ et γ	18,7
$^{64}Zn\ (\gamma, tn)^{60}Cu$	24 "	β^+ et γ	-
$^{71}Ga\ (\gamma, n)^{70}Ga$	21 "	β^-	-
$^{72}Ge\ (\gamma, d)^{70}Ga$	21 "	β^-	17,1
$^{75}As\ (\gamma,\alpha n)^{70}Ga$	21 "	β^-	14,7
$^{81}Br\ (\gamma, n)^{80}Br$	17,6 "	β^+, β^- et γ	10,1
$^{82}Kr\ (\gamma, d)^{80}Br$	17,6 "	β^+, β^- et γ	17,8
$^{85}Rb\ (\gamma,\alpha n)^{80}Br$	17,6 "	β^+, β^- et γ	16,8
$^{85}Rb\ (\gamma, n)^{84}Rb$	21 "		10,5
$^{86}Sr\ (\gamma, d)^{84}Rb$	21 "		17,9
$^{96}Zr\ (\gamma, d)^{94}Y$	20 "	β^- et γ	16,3

TABLEAU VII

(suite)

Réaction	Période	Radioactivité	Seuil de la réaction en MeV
$^{108}Pd\ (\gamma, p)^{107}Rh$	23 min.	β^- et γ	9,8
$^{107}Ag\ (\gamma, n)^{106}Ag$	24 "	β^+ et γ	9,4
$^{116}Cd\ (\gamma,\alpha n)^{111}Pd$	22 "	β^- et γ	13
$^{116}Cd\ (\gamma, p)^{115}Ag$	21 "	β^- et γ	10,8
$^{120}Sn\ (\gamma, p)^{119}In$	18 "	β^- et γ	10,8
$^{128}Te\ (\gamma, d)^{126}Sb$	18,8 "	β^- et γ	-
$^{130}Te\ (\gamma, d)^{128}Sb$	19,7 "	β^- et γ	-
$^{145}Nd\ (\gamma, p)$	17,3 "	β^- et γ	8,2
$^{148}Nd\ (\gamma, d)$	25 "	β^- et γ	13,8
$^{144}Sm\ (\gamma, p)^{141}Pm$	20 "	β^+	6,5
$^{160}Gd\ (\gamma,\alpha n)^{155}Sm$	24 "	β^- et γ	8,3
$^{160}Gd\ (\gamma, p)^{159}Eu$	20 "	β^-	-
$^{168}Yb\ (\gamma, n)^{167}Yb$	17,7 "	γ	-
$^{179}Hf\ (\gamma, p)^{178}Lu$	22 "	β^- et γ	-
$^{202}Hg\ (\gamma, p)^{201}Au$	26 "	β^- et γ	8,5
$^{205}Tl\ (\gamma,\alpha)^{201}Au$	26 "	β^- et γ	0,06
$^{238}U\ (\gamma,\alpha n)^{233}Th$	22,4 "	β^- et γ	1,8

TABLEAU VIII

EXEMPLES D'ANALYSES NON DESTRUCTIVES

PAR IRRADIATION DANS LES PHOTONS γ

Impureté	Matériaux dans lesquels les dosages sont possibles	Energie maximale des photons	Teneurs minimales dosables en ppm
C	Li, Be, B, Si, W	30 MeV	0,05 à 0,5
N	Li, Be, B, W	30 "	0,5
	Ca, Na,	20 "	0,5 à 2
O	Li, Be, B	30 "	0,05 à 0,5
	Ca, Na	20 "	0,5 à 2
F	Li, Be, B, Si, W	30 "	0,02 à 0,2
	Ca, Na	20 "	0,2 à 2

TABLEAU IX

QUANTITES MINIMALES DOSABLES DE C, N, O et F

Energie en MeV	Oxygène $T_{1/2}$ 2,1 min.	Azote $T_{1/2}$ 10 min.	Carbone $T_{1/2}$ 20,3 min.	Fluor $T_{1/2}$ 1,7 h.
30	$0,05.10^{-6}$ g	$0,04.10^{-6}$ g	$0,02.10^{-6}$ g	$0,01.10^{-6}$ g
40	0,02 -	0,01 -	0,005 -	0,002 -
50	0,007 -	0,005 -	0,002 -	0,001 -

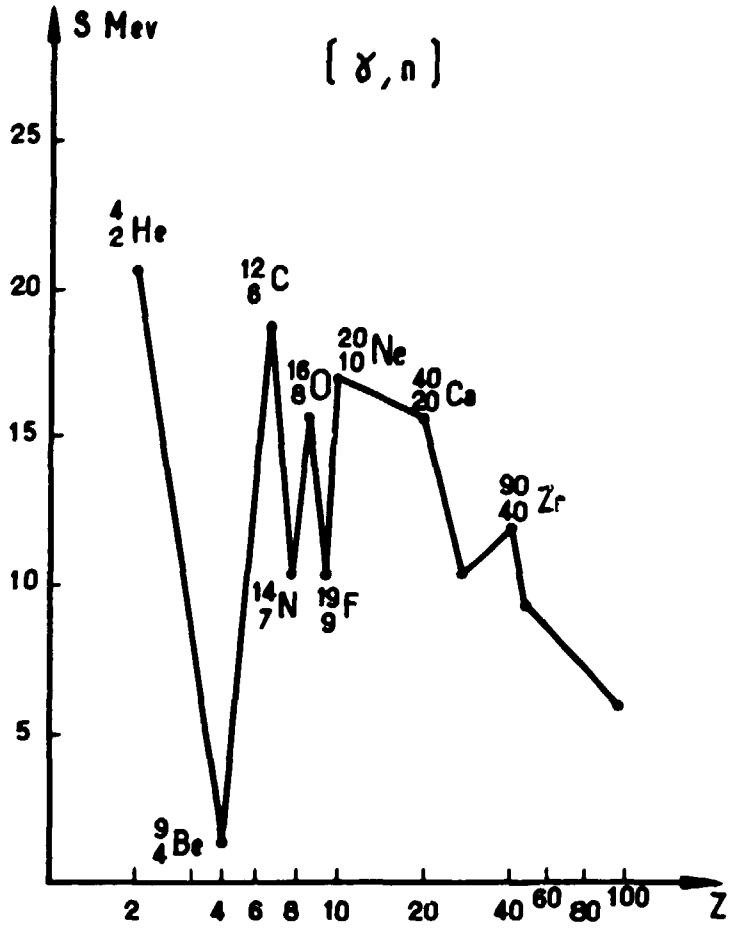


FIG. I - 1

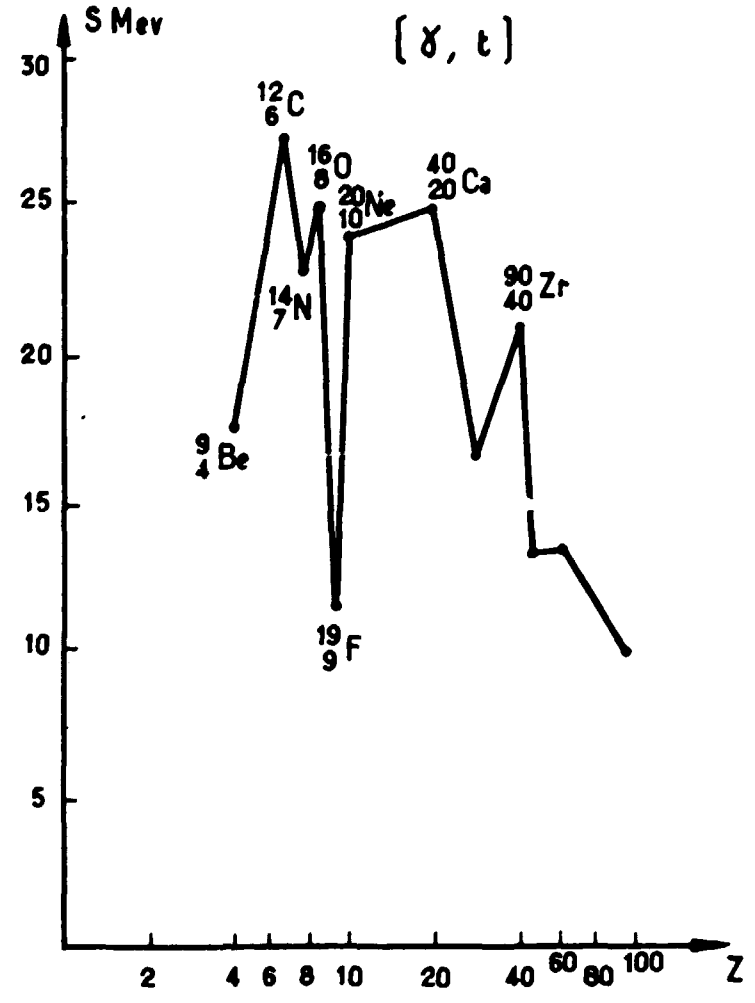


FIG. I - 2

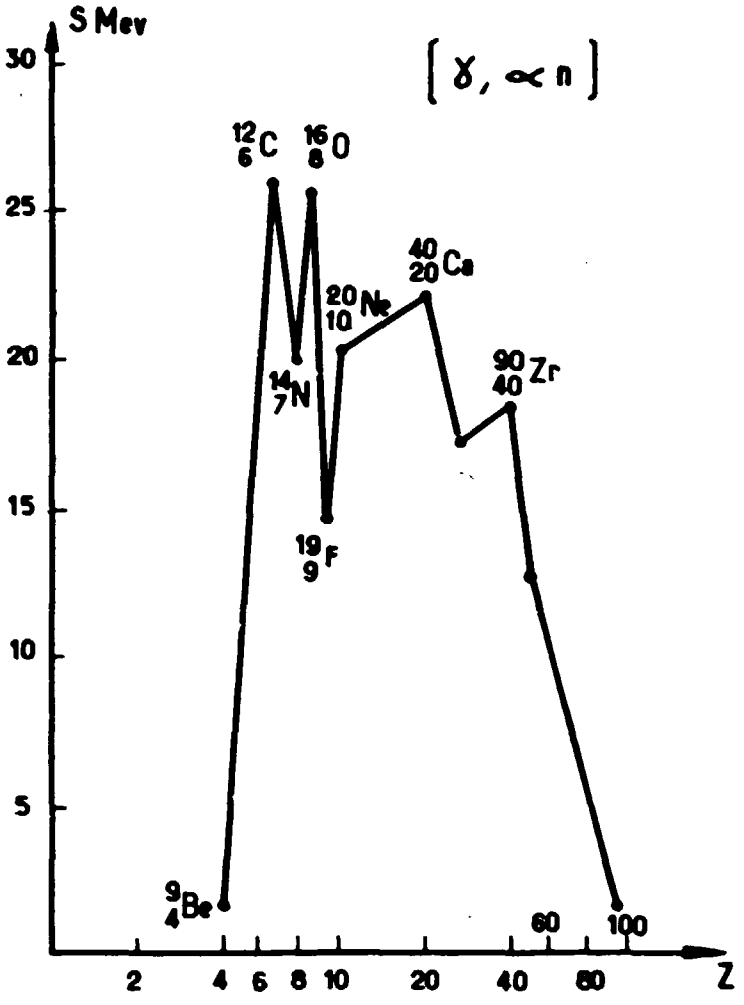


FIG. I - 3

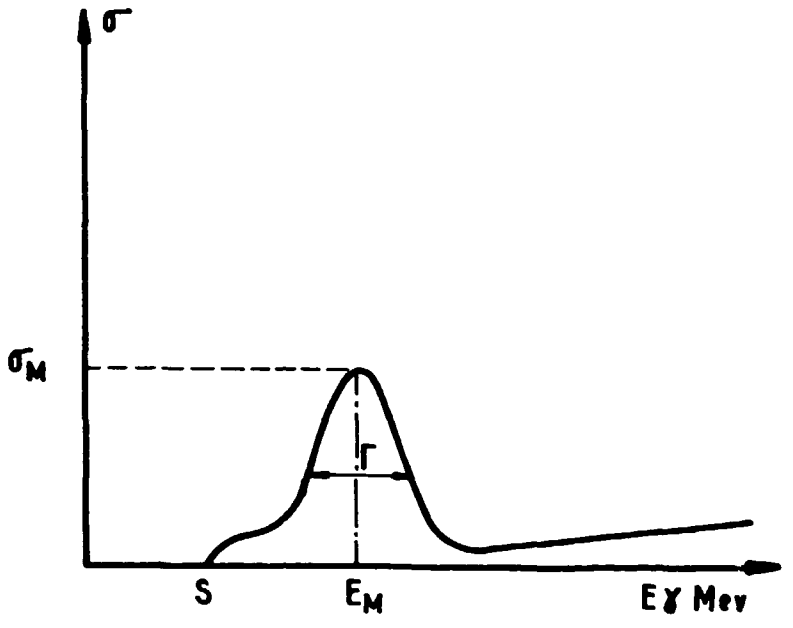


FIG. I - 4

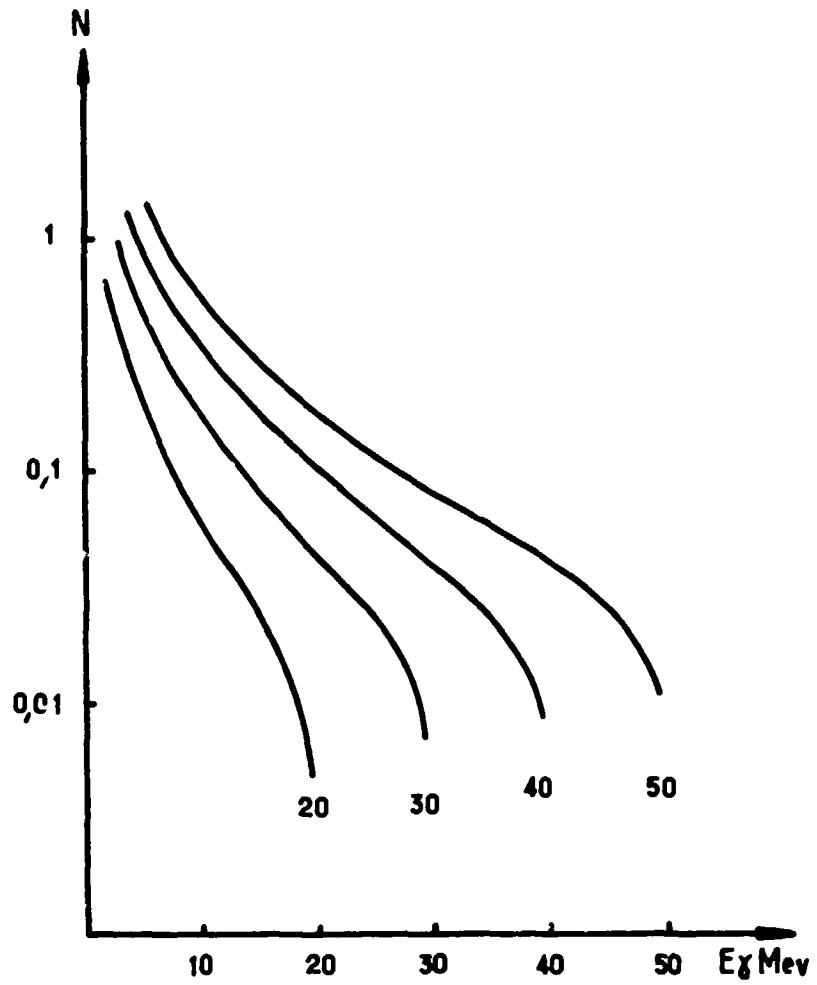


FIG. II - 1

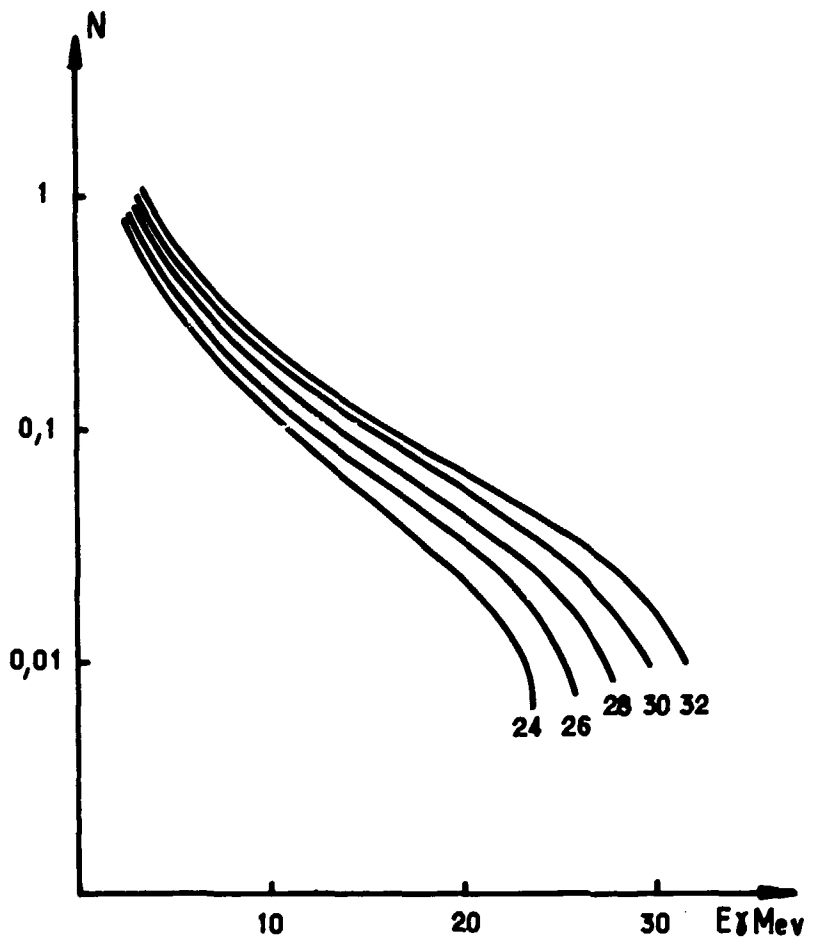


FIG. II - 2

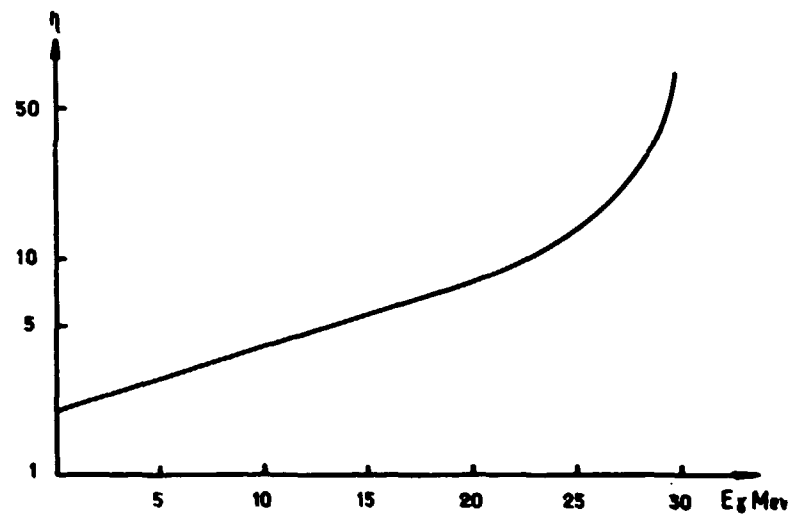


FIG. II - 3

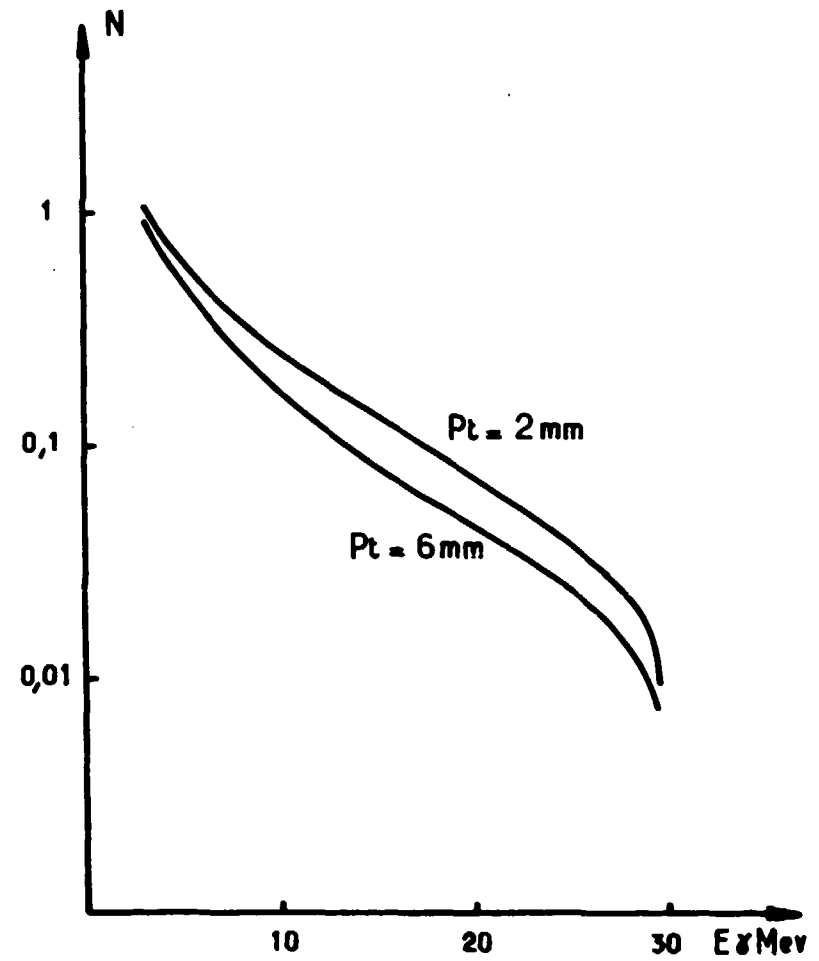


FIG. II - 4

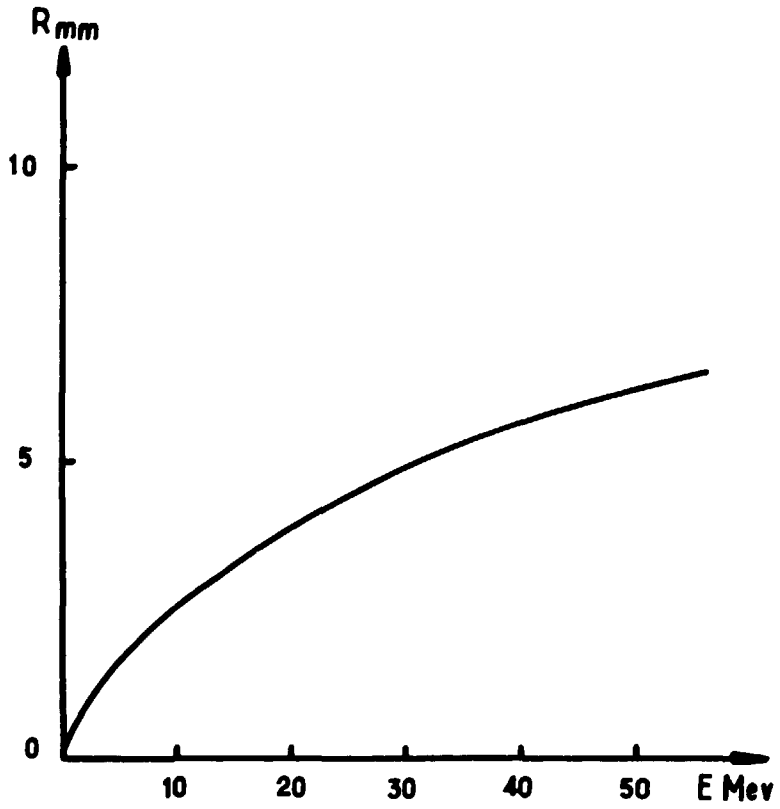


FIG. II - 5

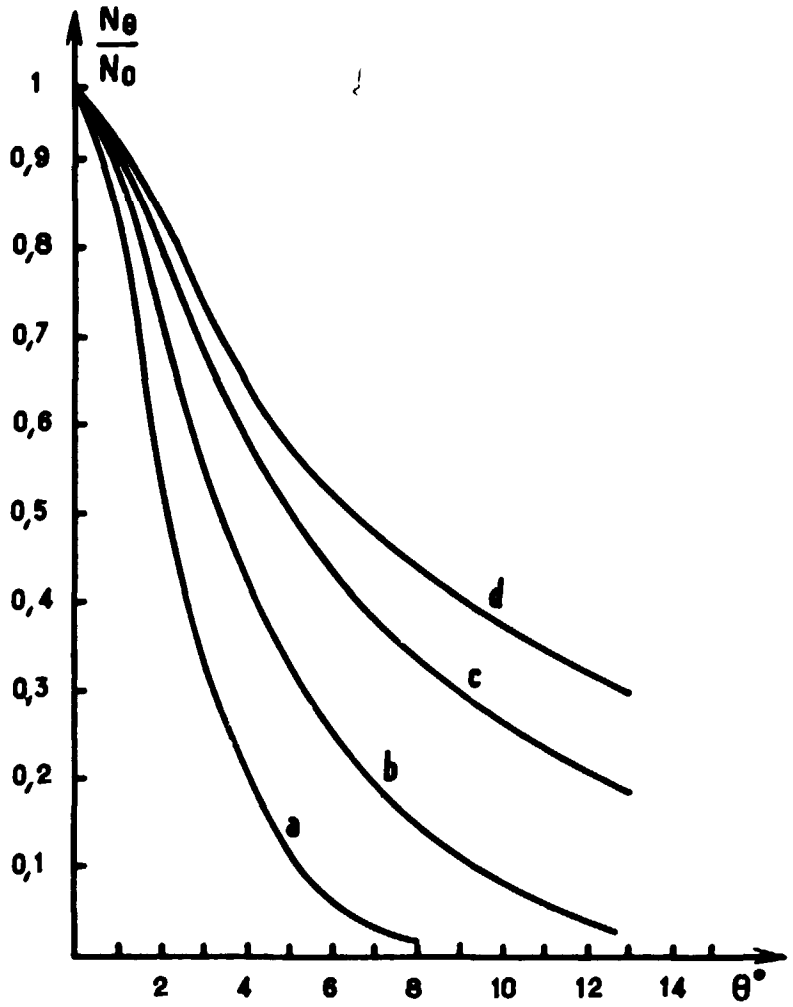


FIG. II - 6

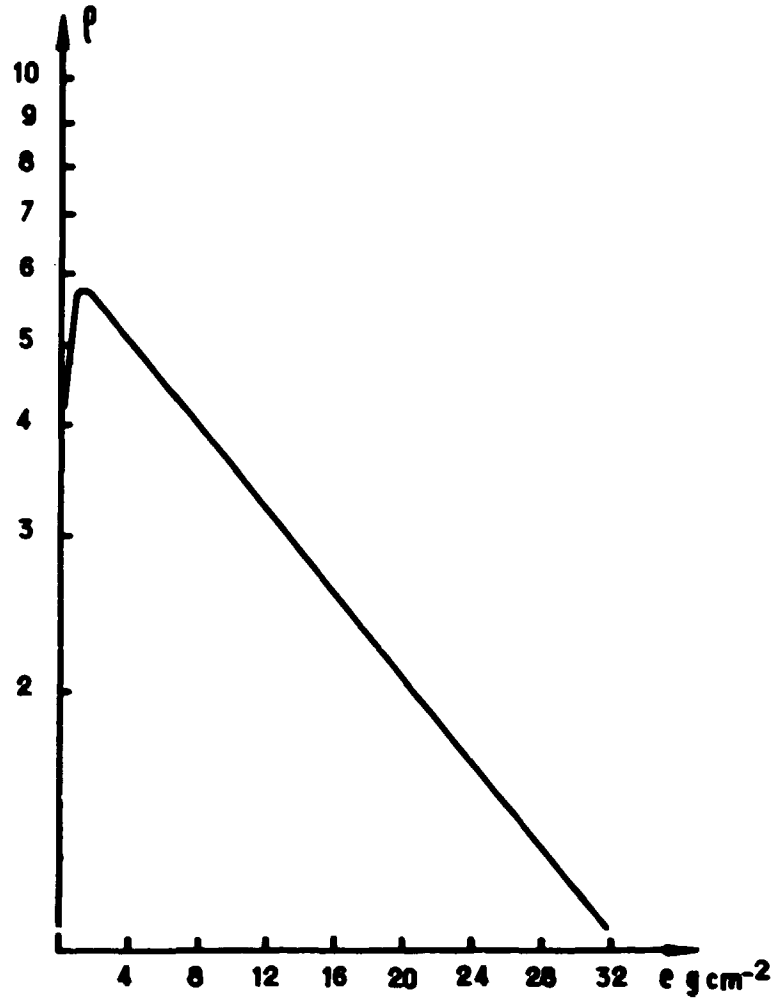


FIG. II - 7

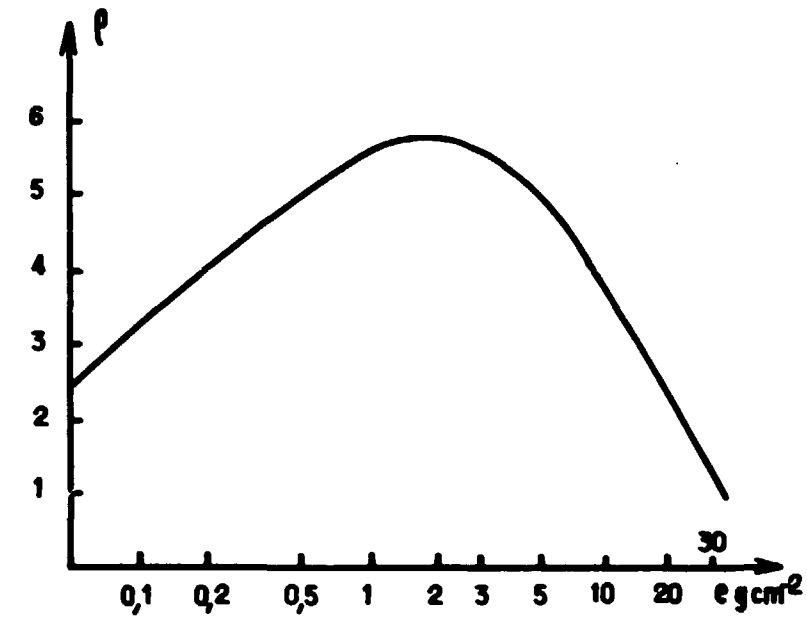


FIG. II - 8

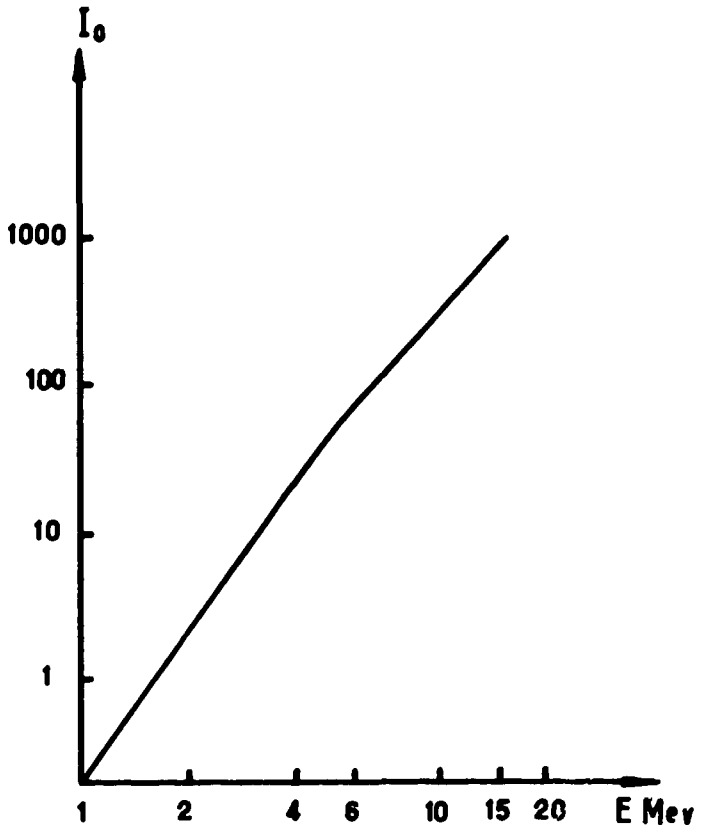


FIG. II - 9

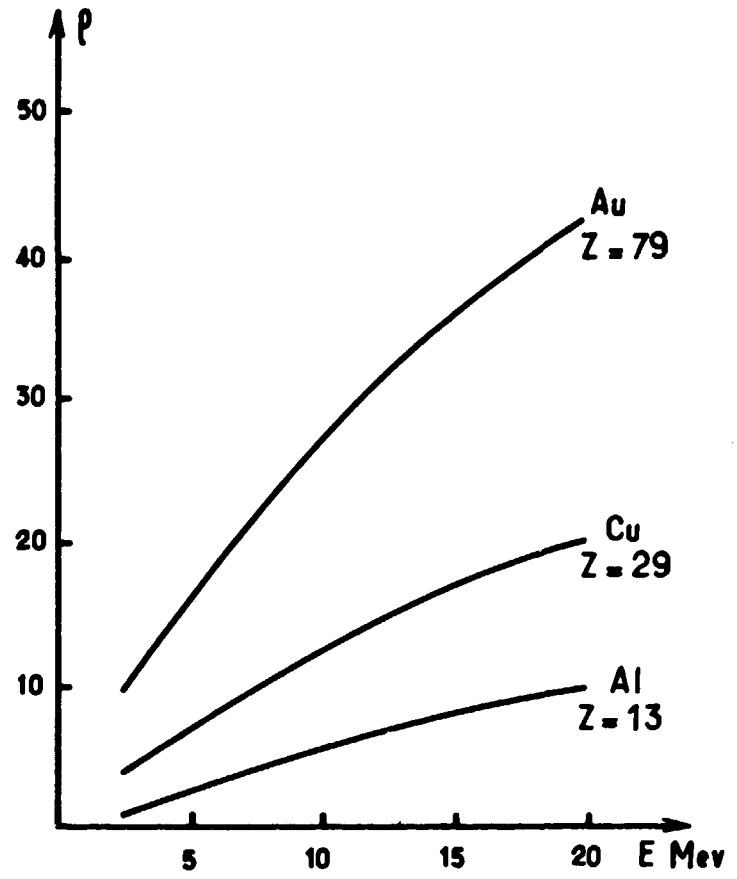


FIG. II - 10

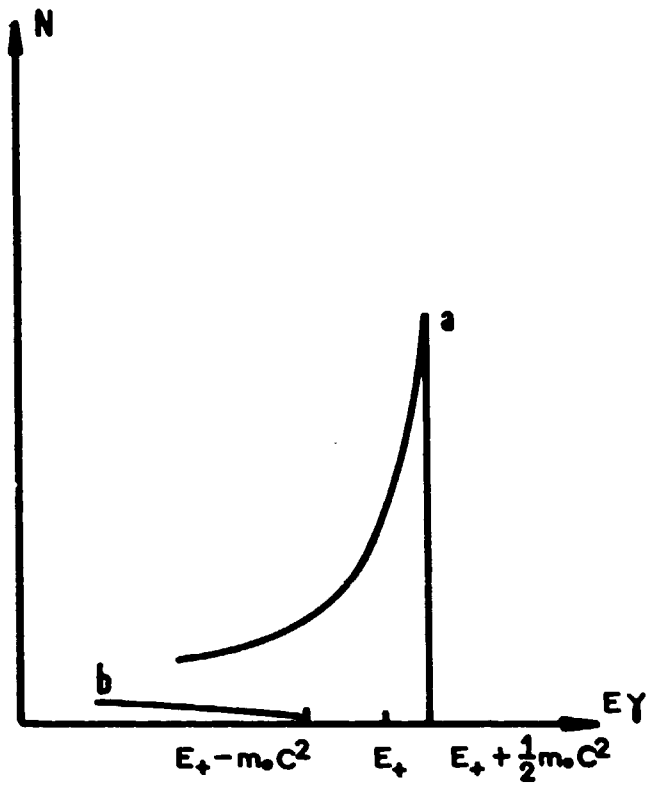


FIG. II - 11

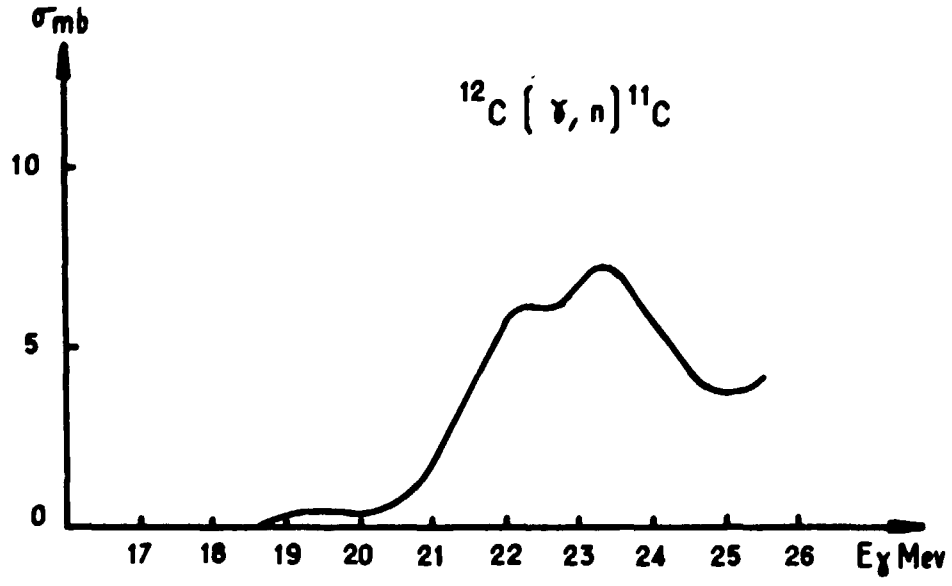


FIG. III - 1

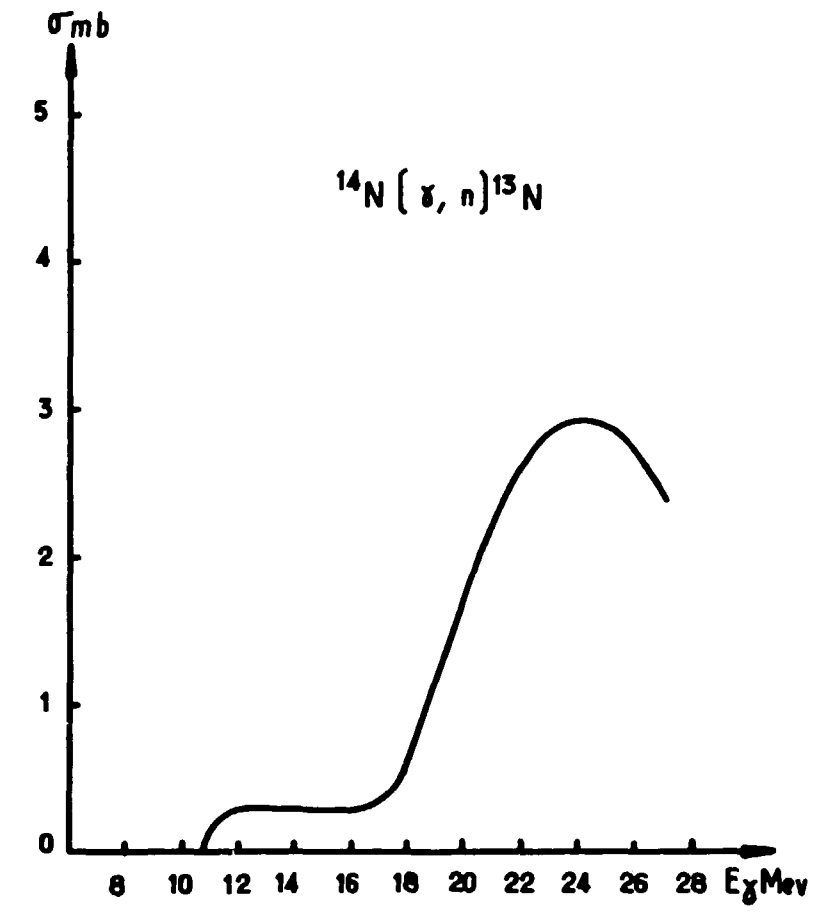


FIG. III - 2

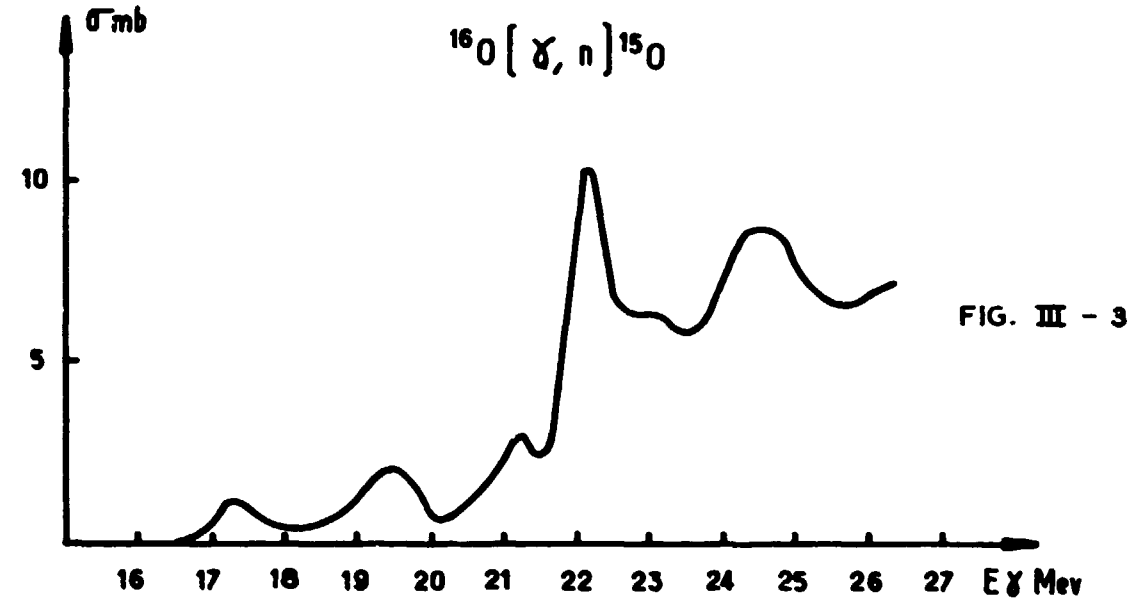


FIG. III - 3

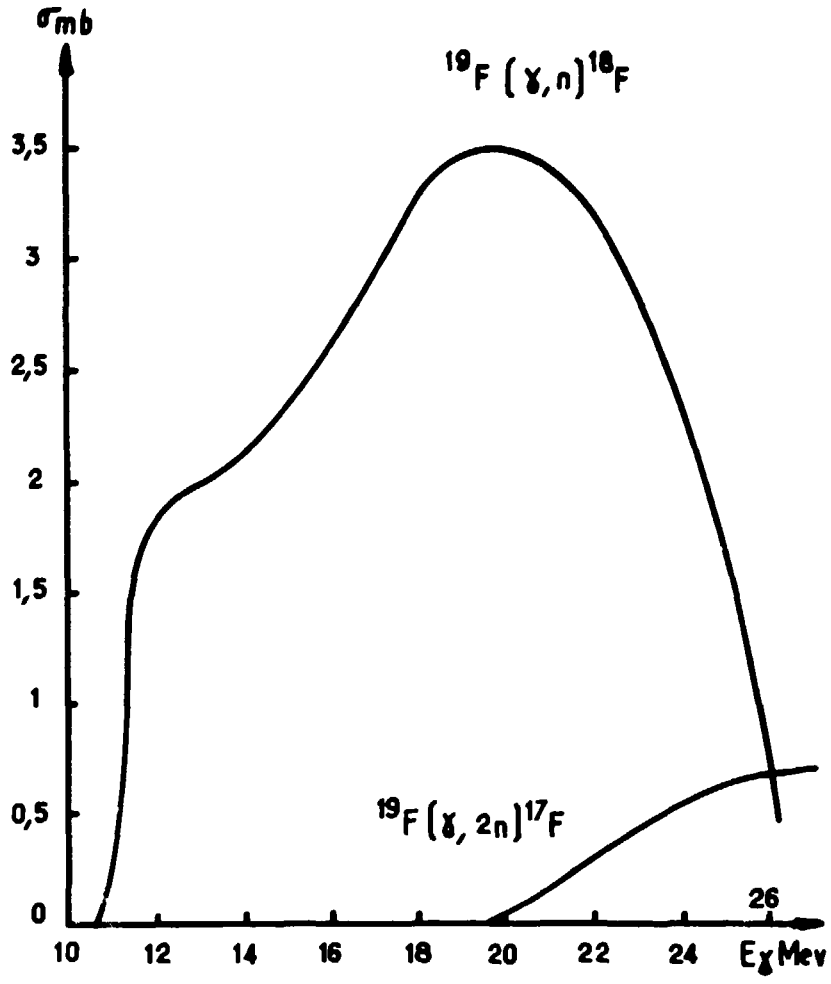


FIG. III - 4

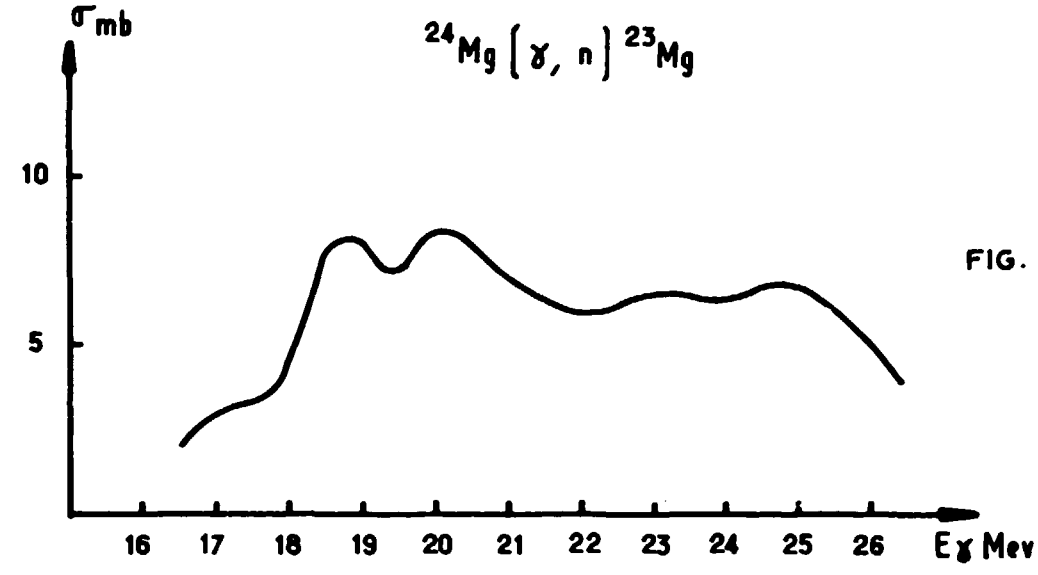


FIG. III - 5

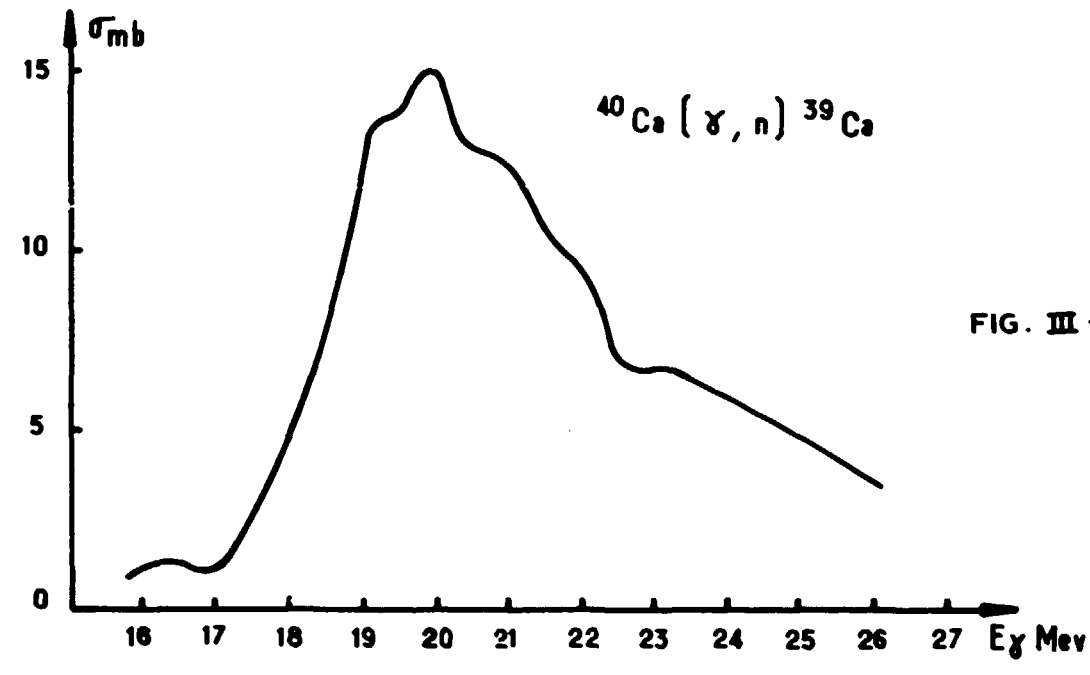


FIG. III - 6

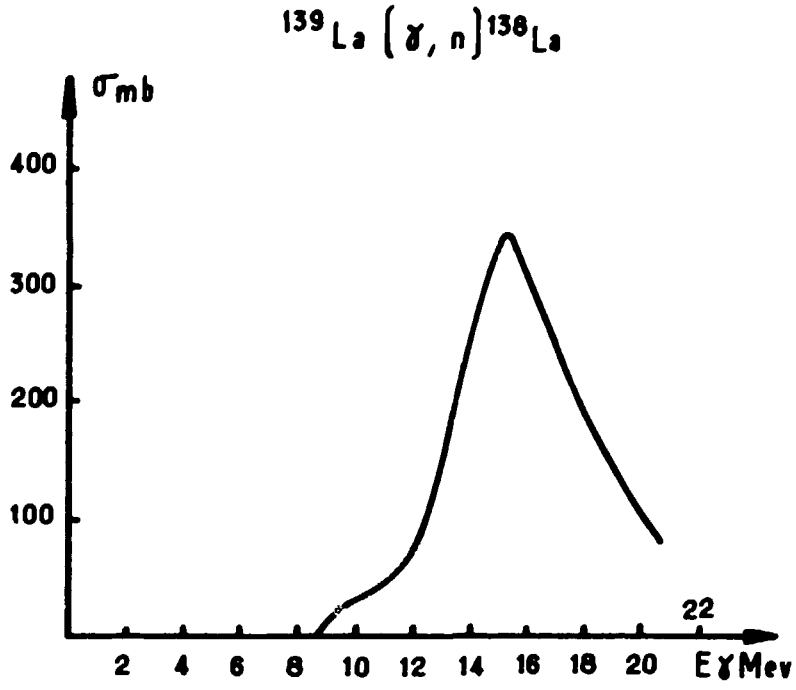


FIG. III - 7

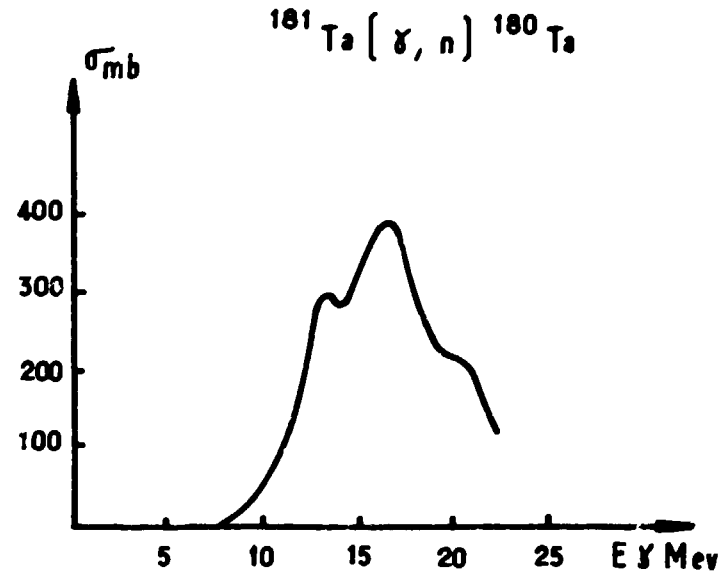


FIG. III - 8

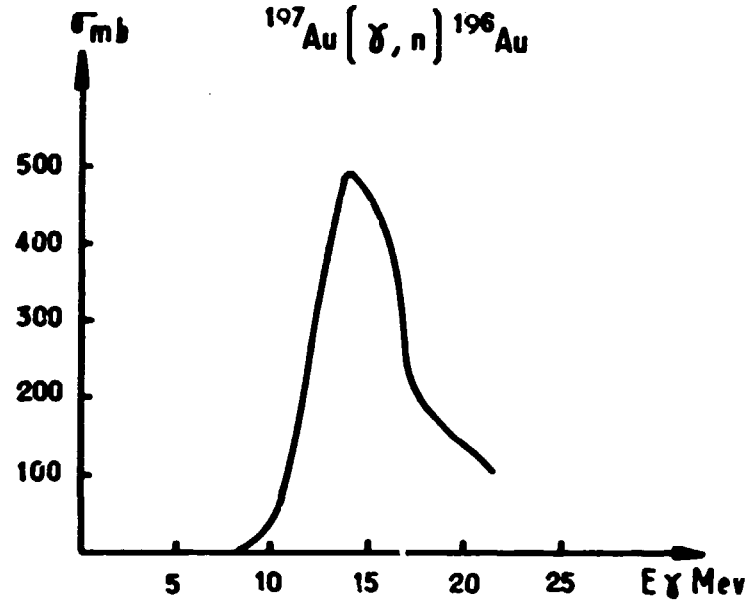


FIG. III - 9

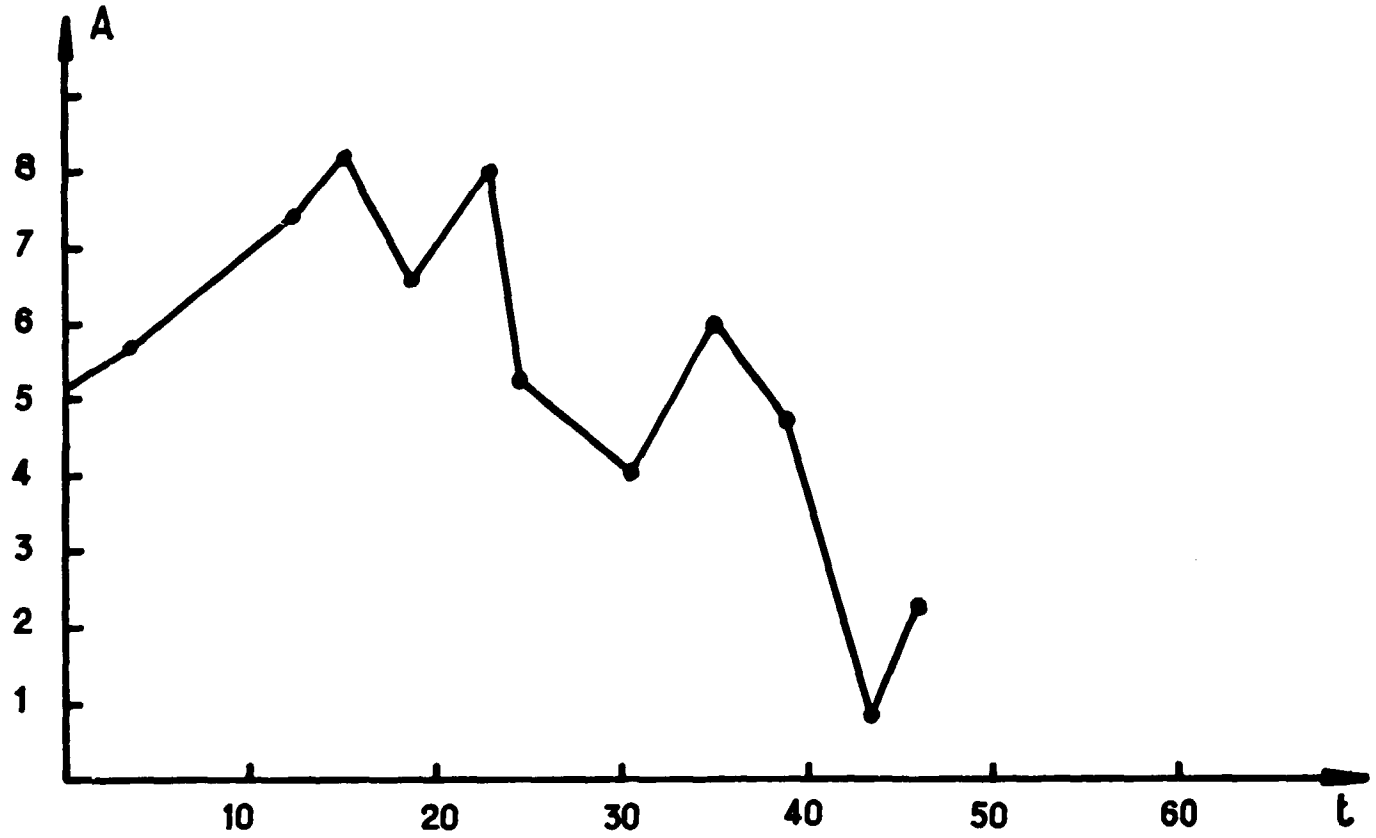


FIG. IV - 1

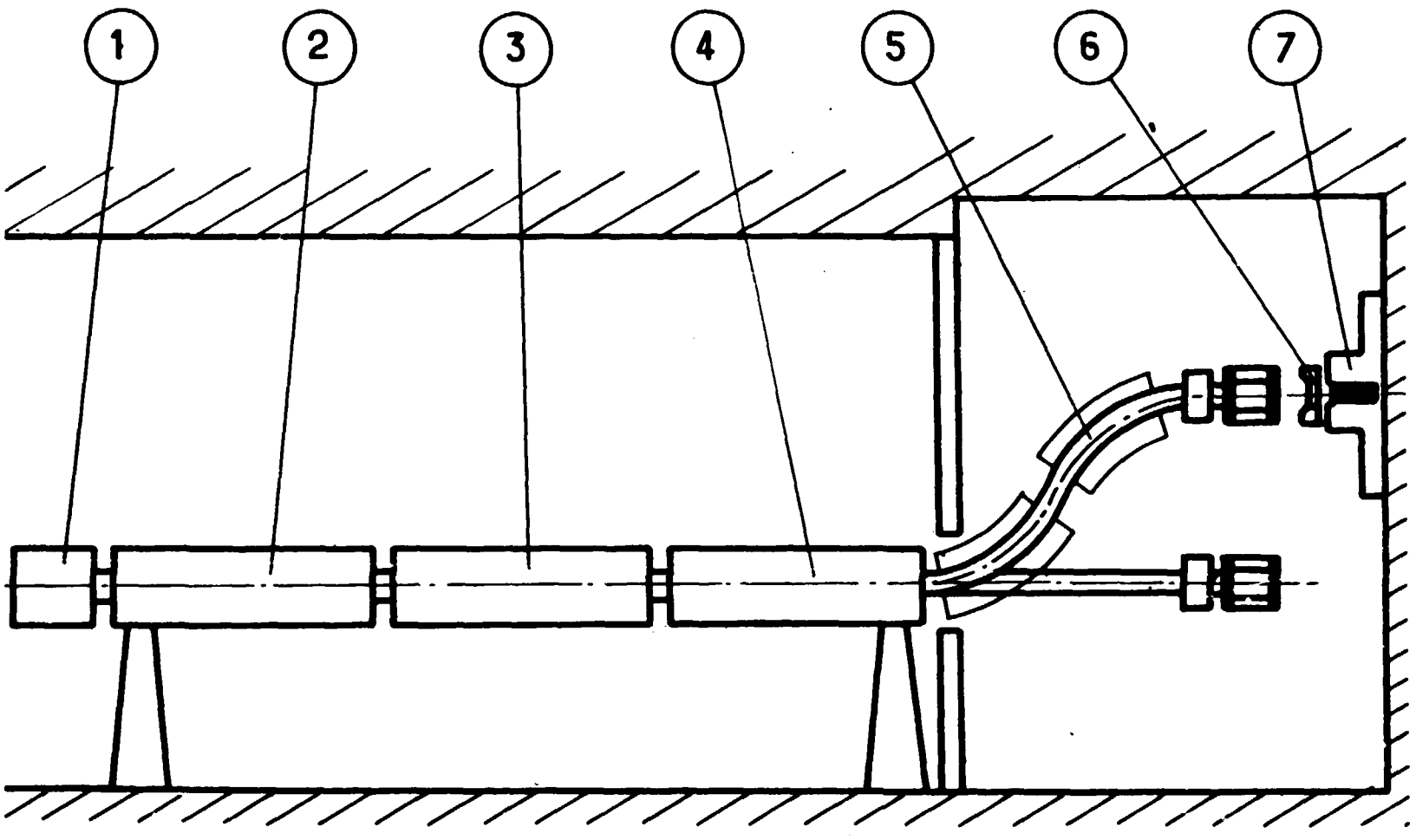


FIG. IV - 2

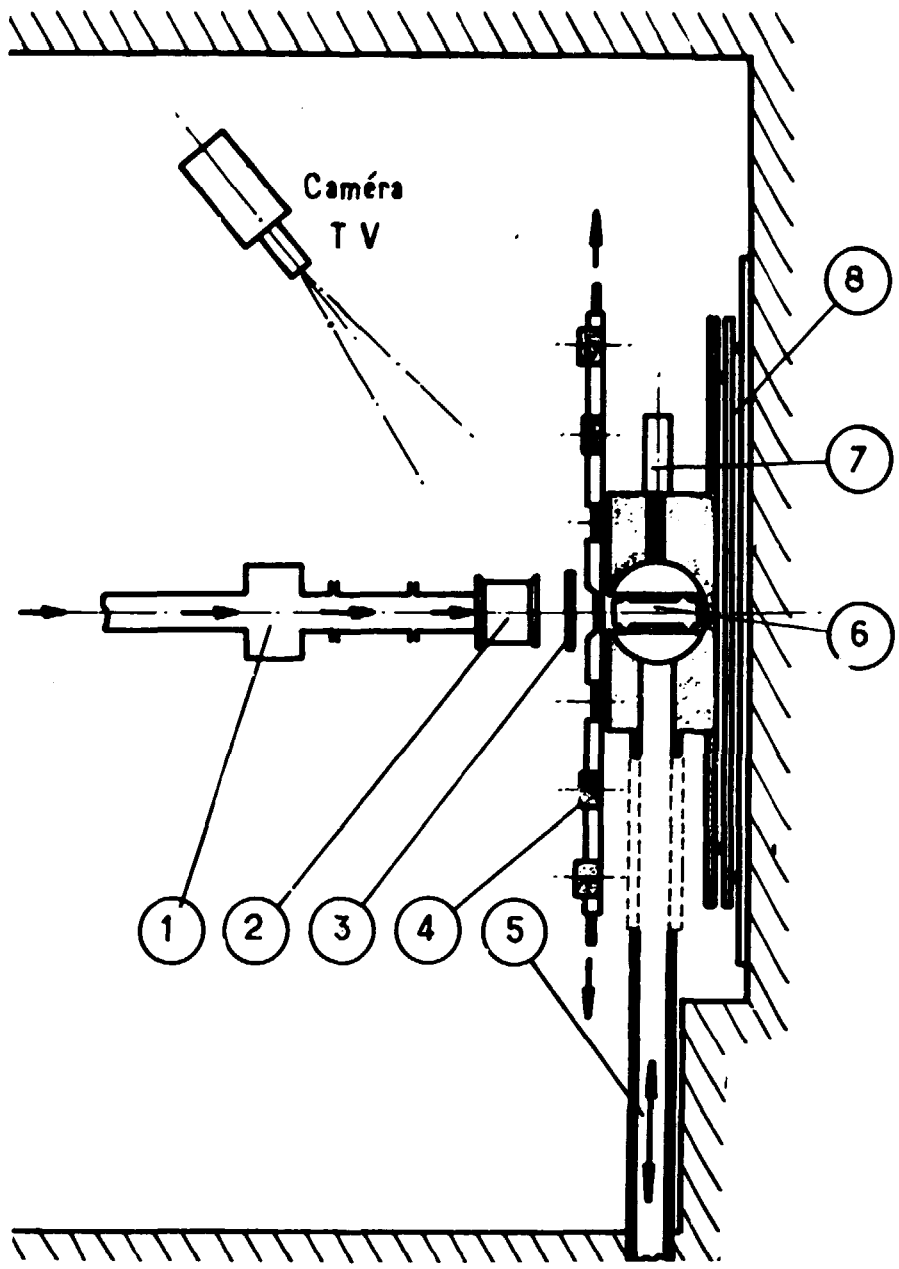


FIG. IV - 3

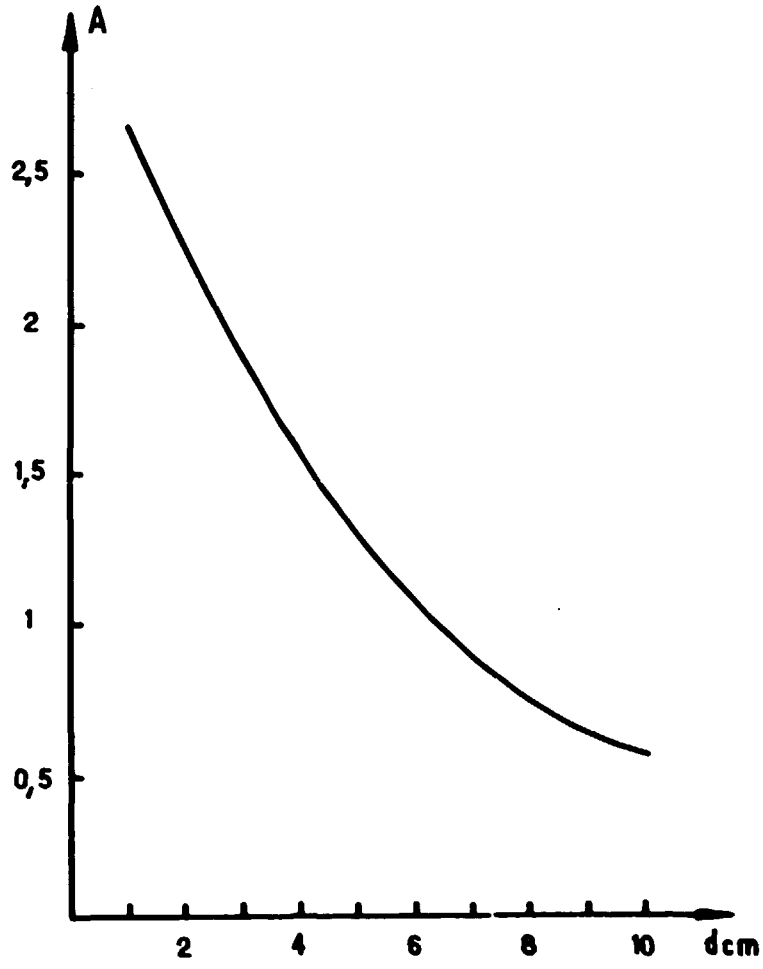


FIG. IV - 4

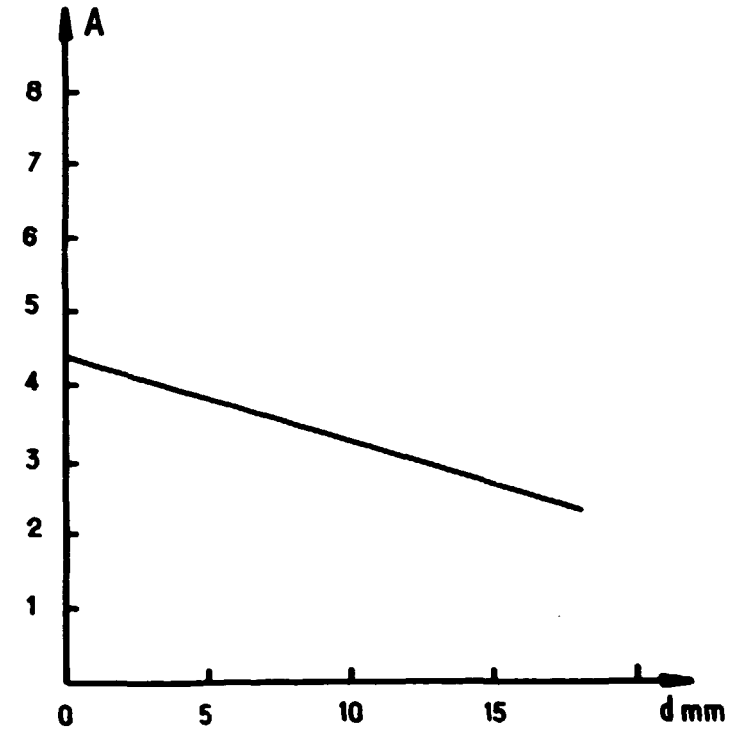


FIG. IV - 5

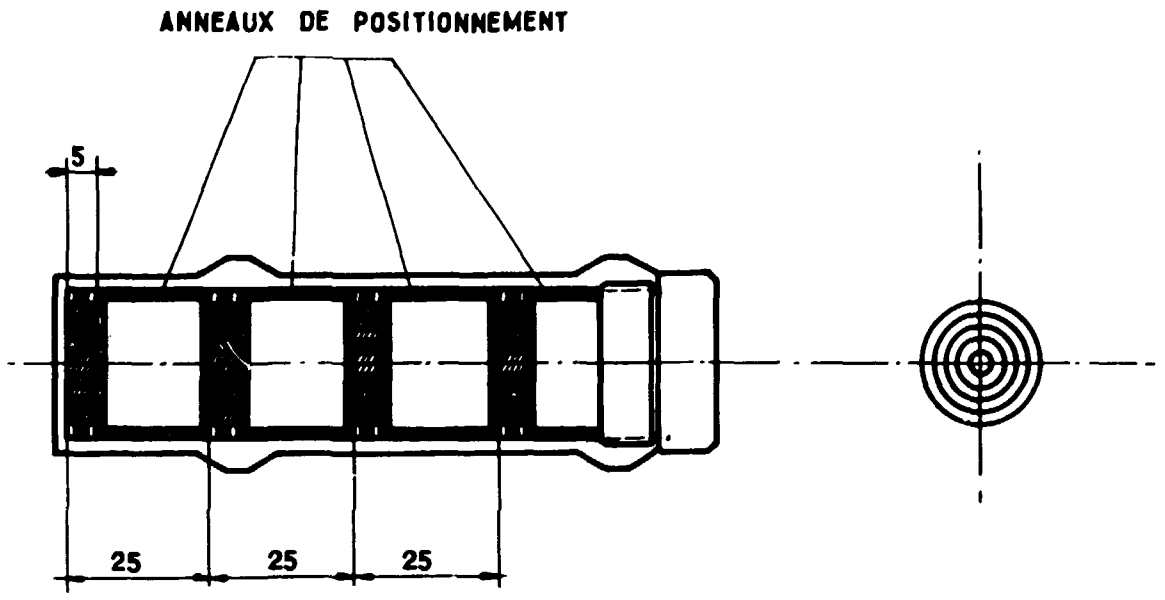


FIG. IV - 6

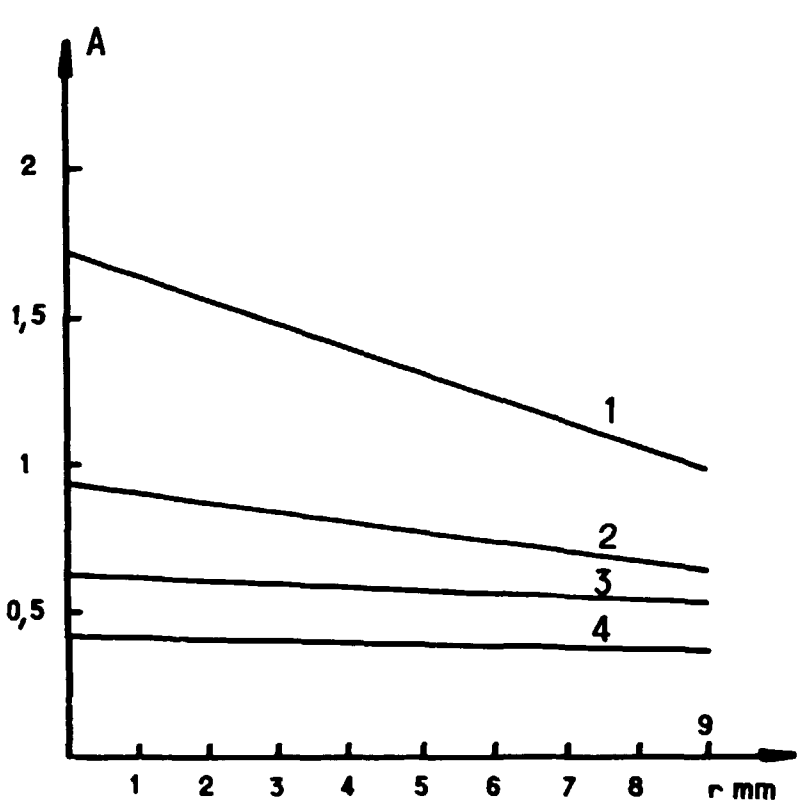


FIG. IV - 7

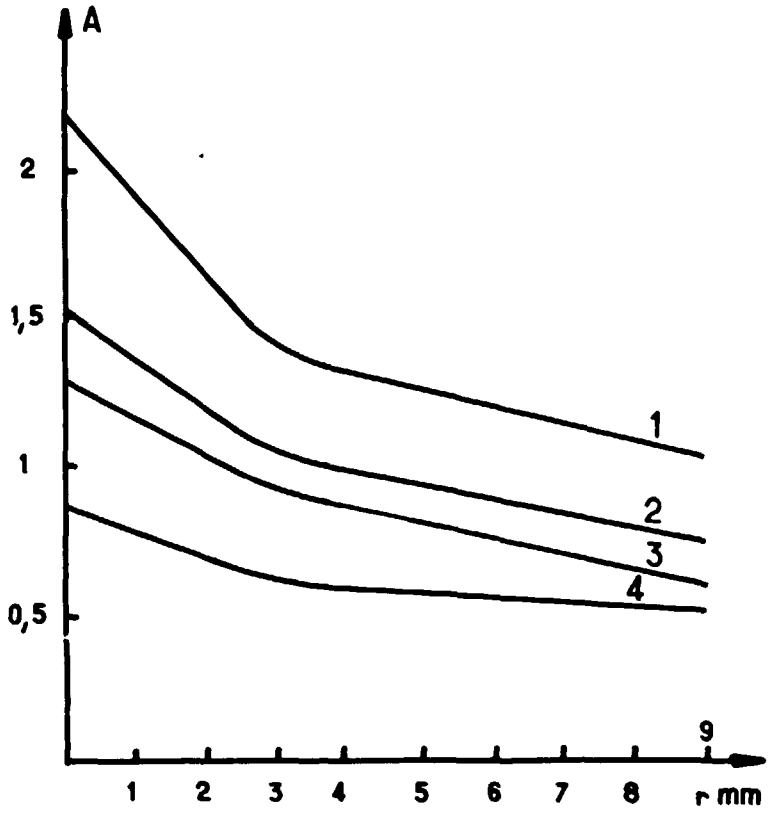


FIG IV - 8

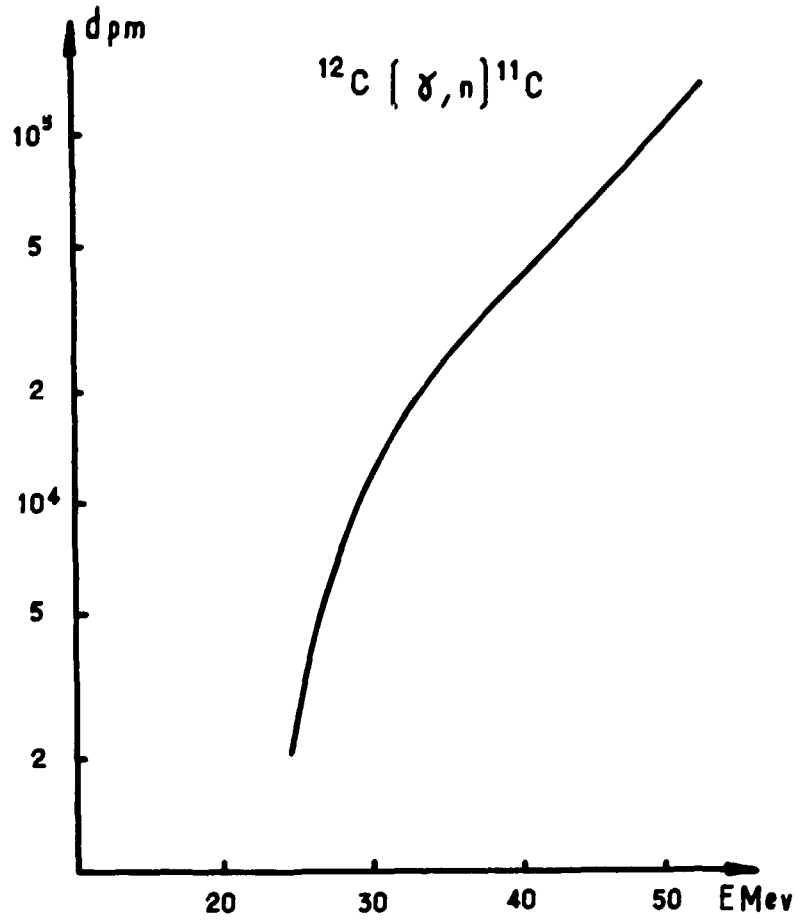


FIG. V - 1a

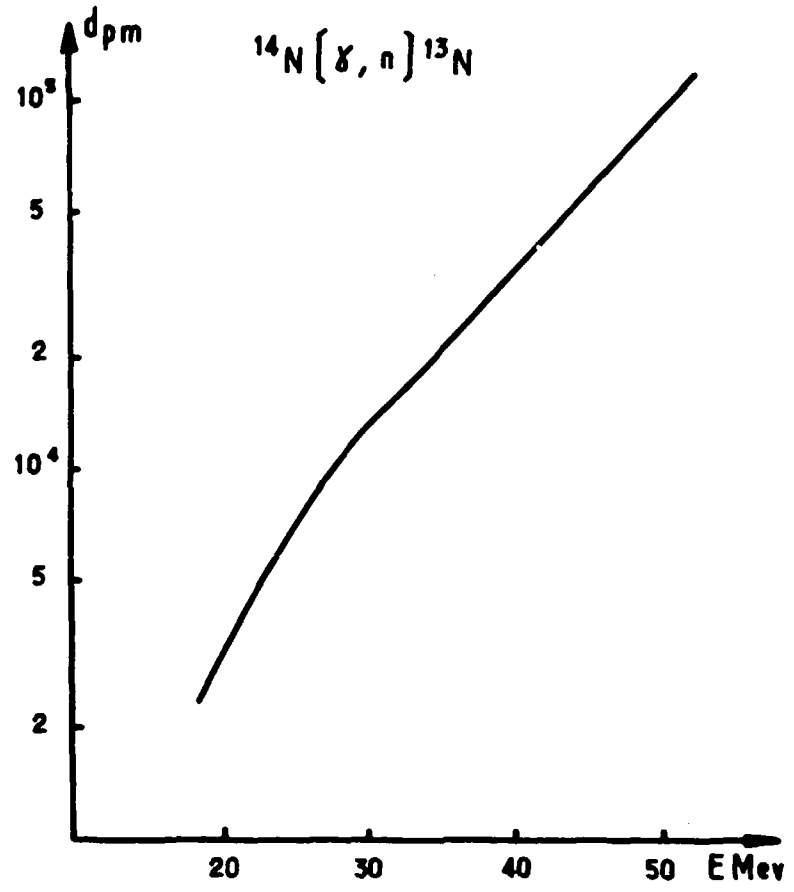


FIG. V - 1b

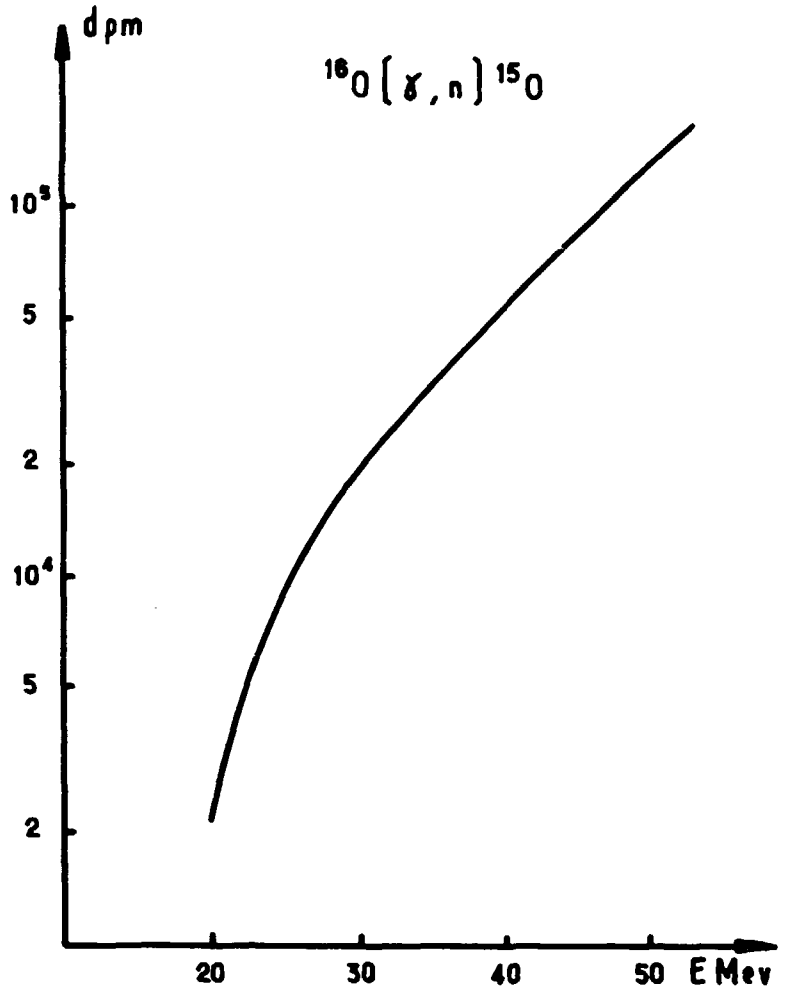


FIG. V - 1c

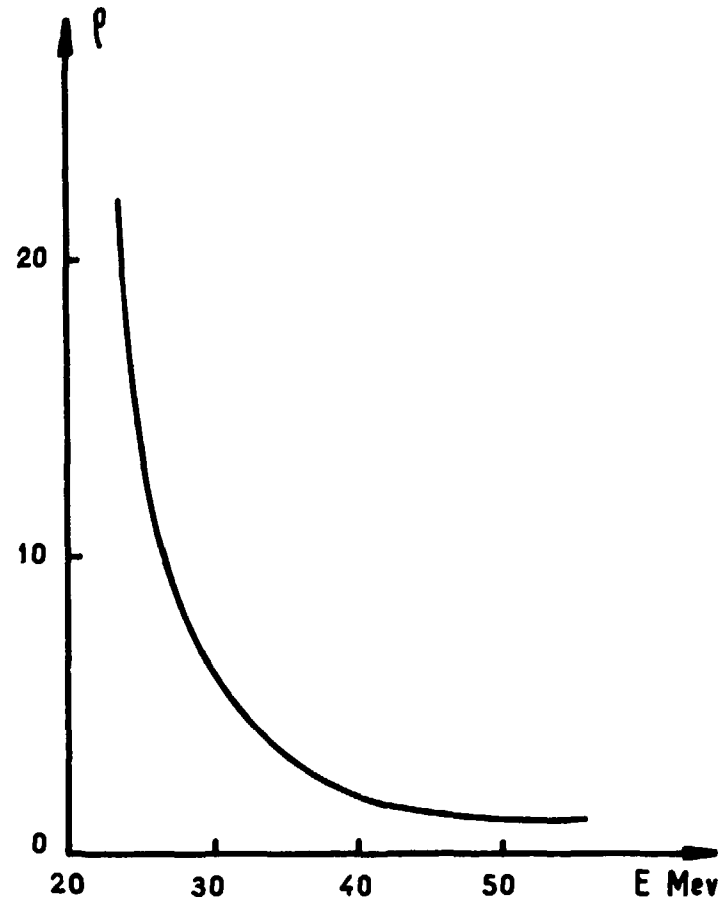


FIG. V - 2

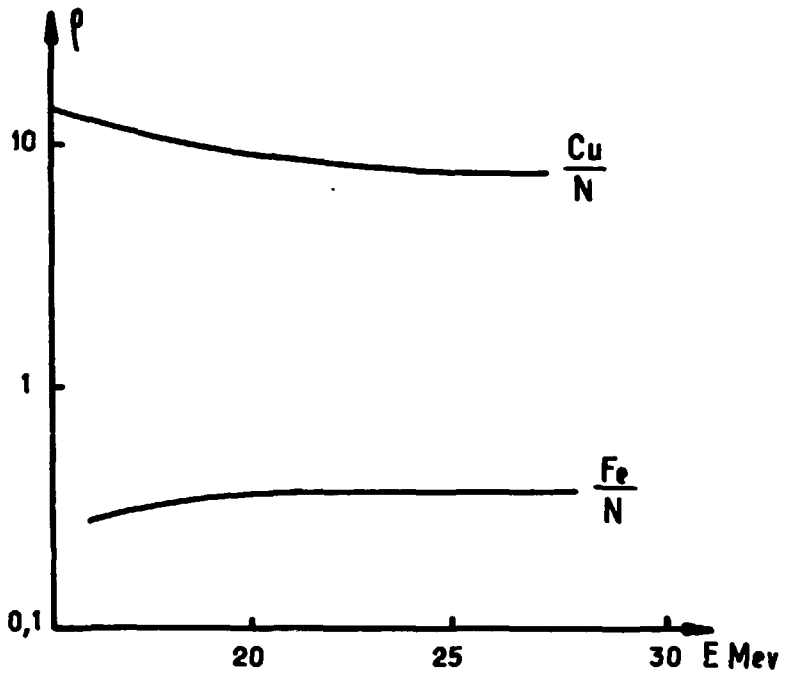


FIG. V - 3

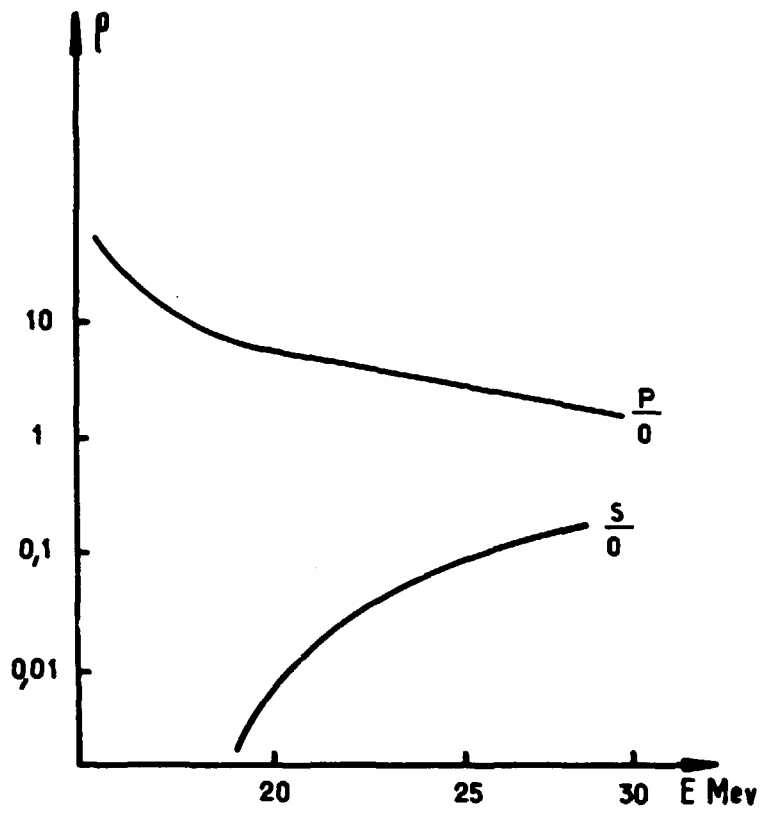


FIG. V - 4

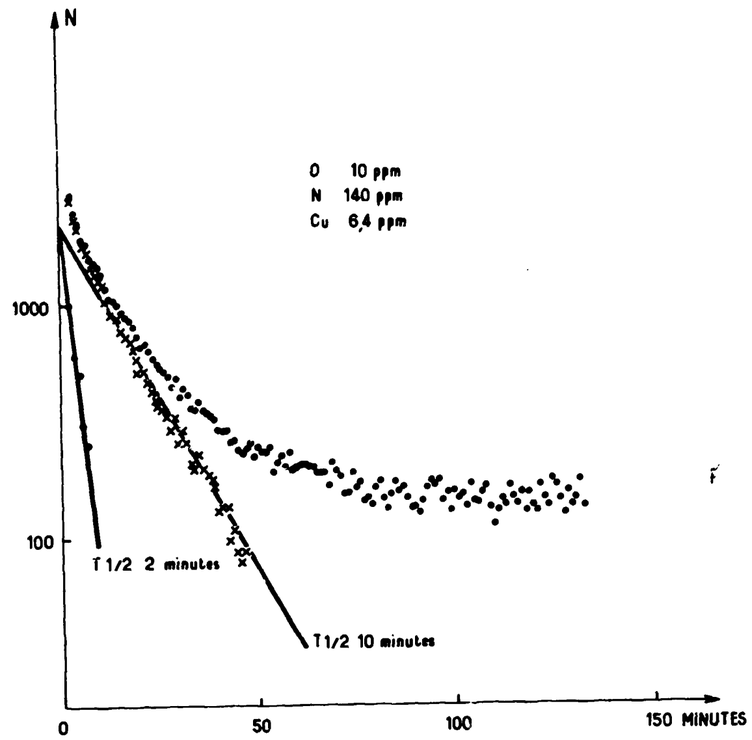


FIG. V - 5

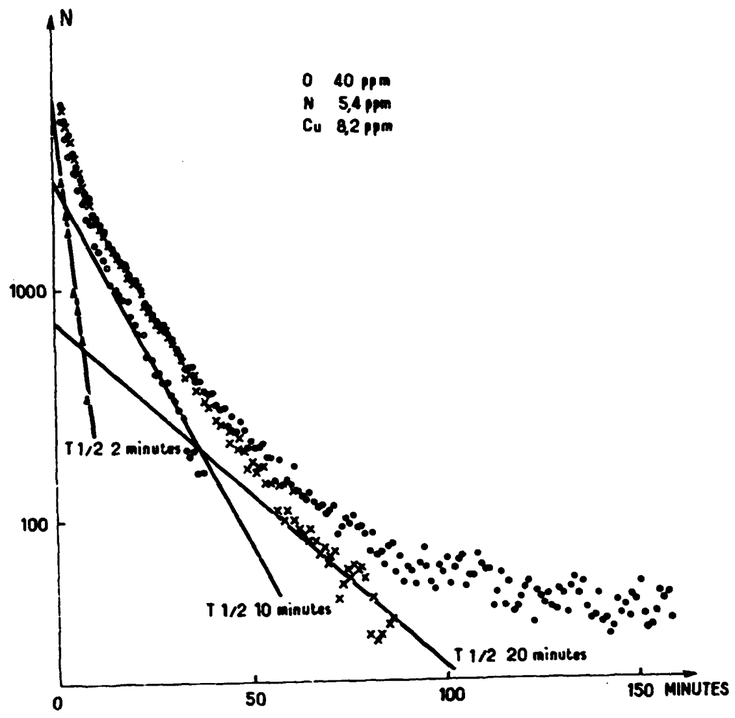


FIG. V - 6

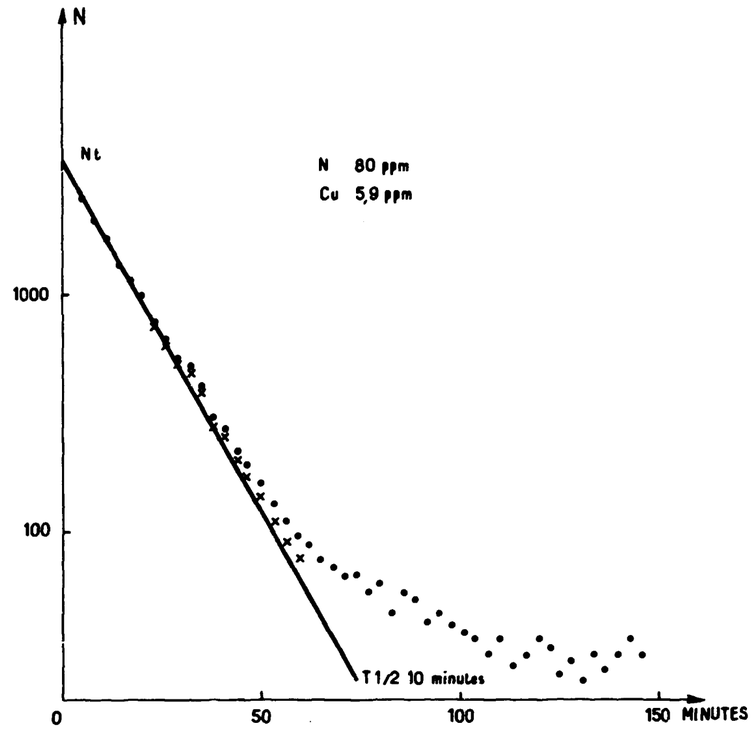


FIG. V - 7

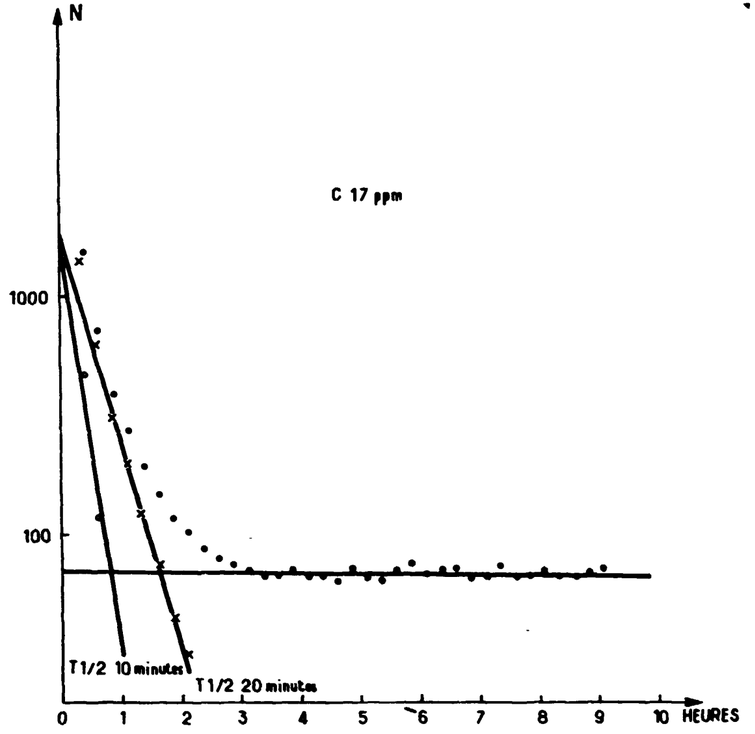


FIG. V - 8

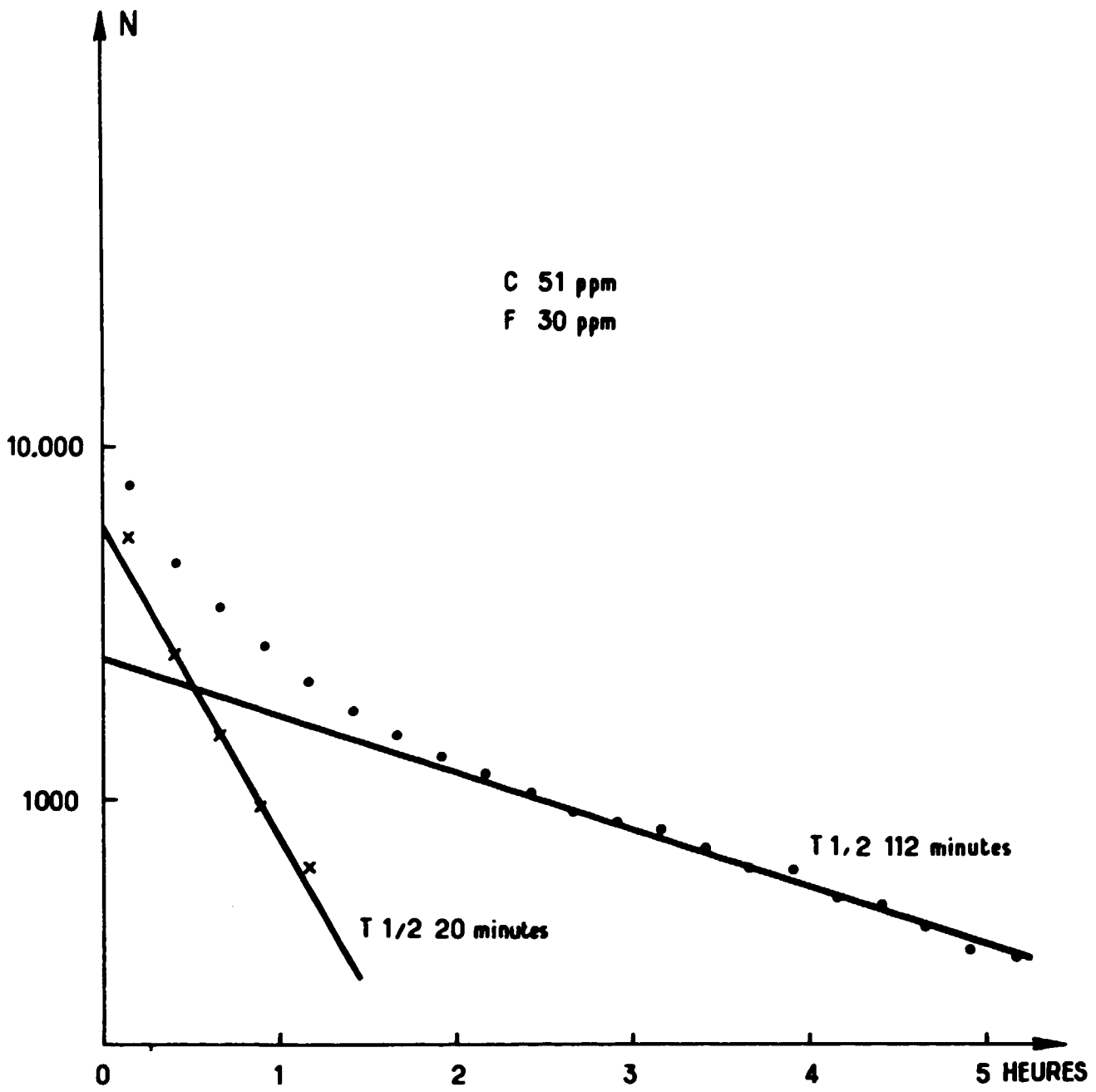
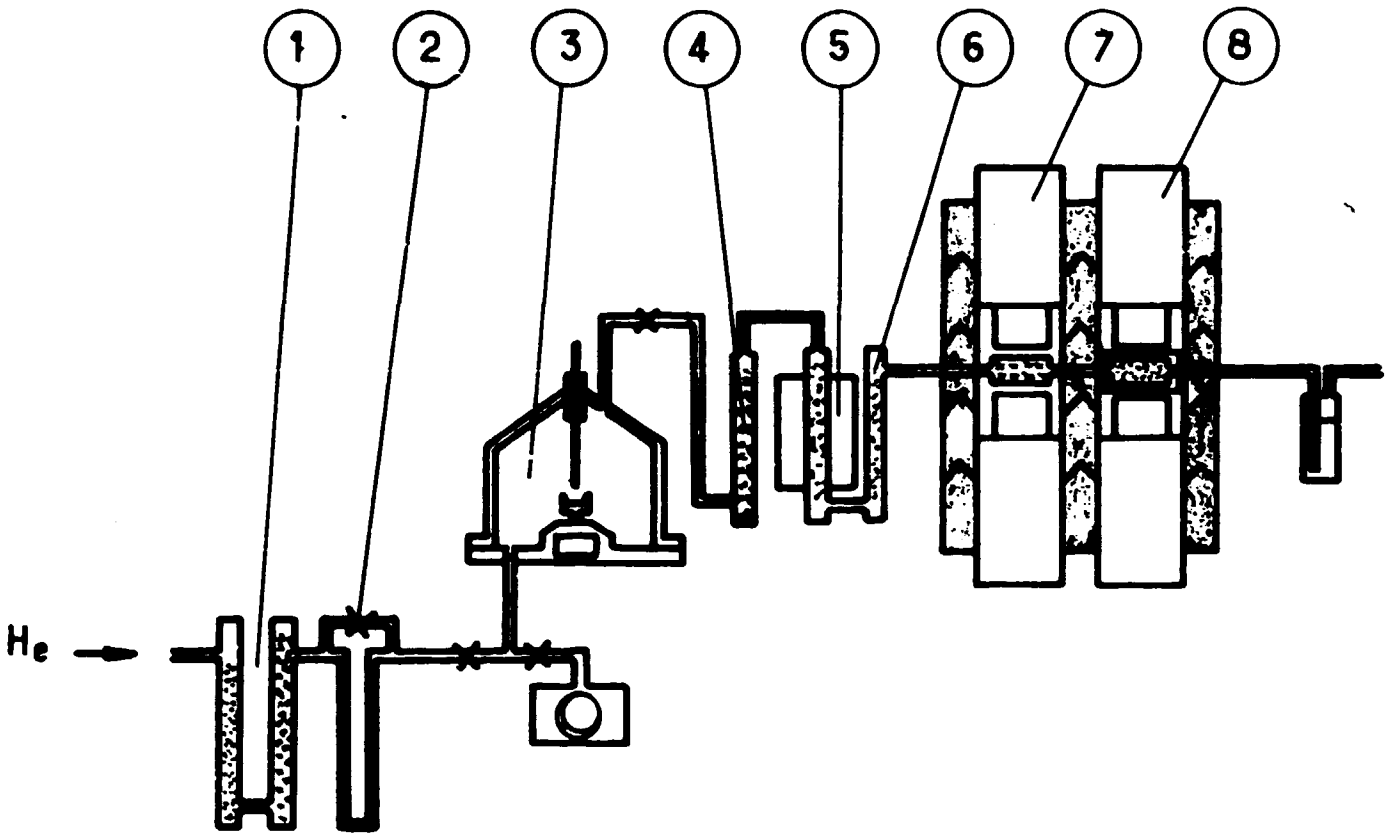

N
C 51 ppm
F 30 ppm
10.000
1000
T 1,2 112 minutes
T 1/2 20 minutes
0
1
2
3
4
5 HEURES

FIG. V - 9


1
2
3
4
5
6
7
8
He

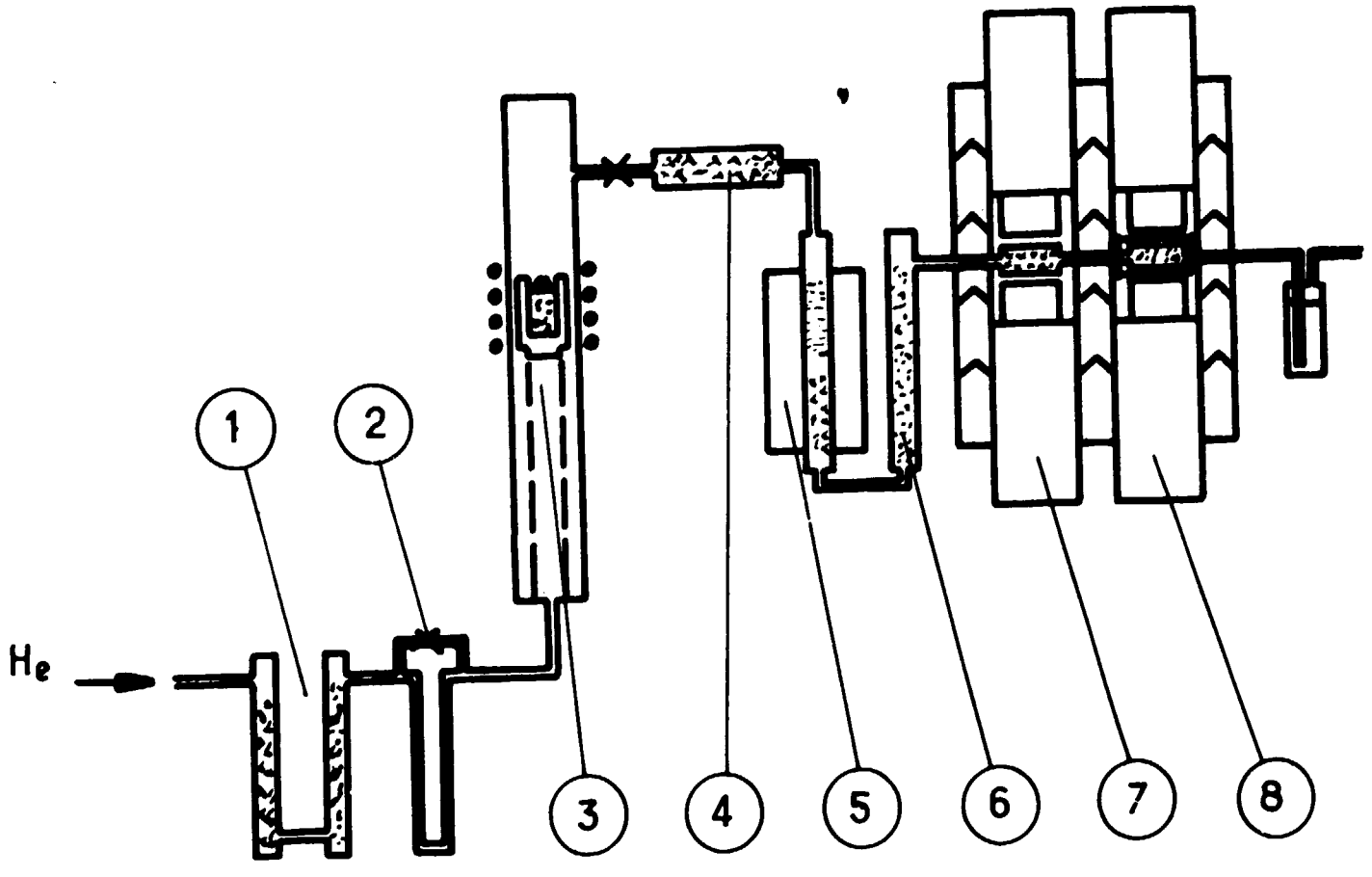


FIG. V - 11

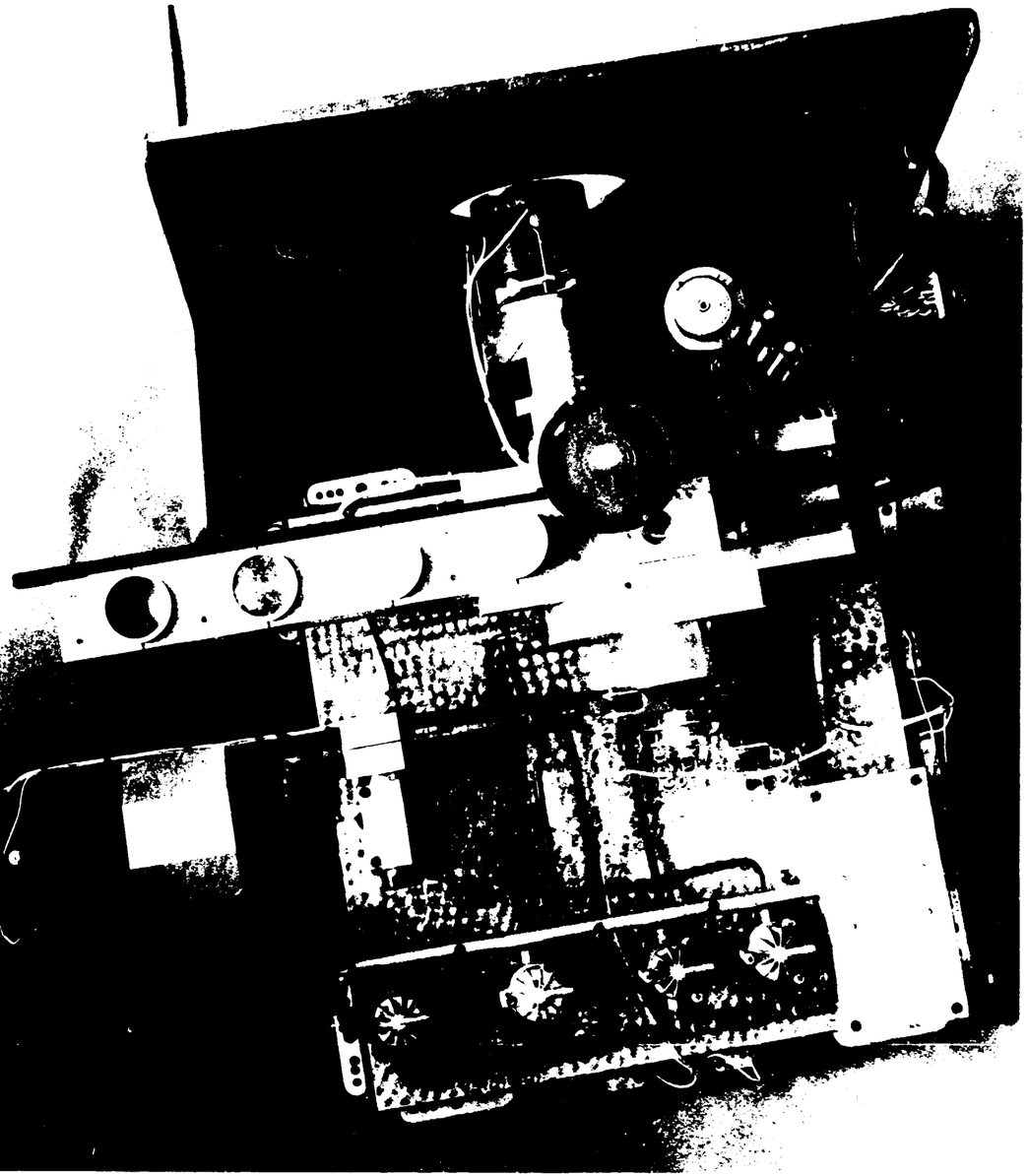


Figure VI-1

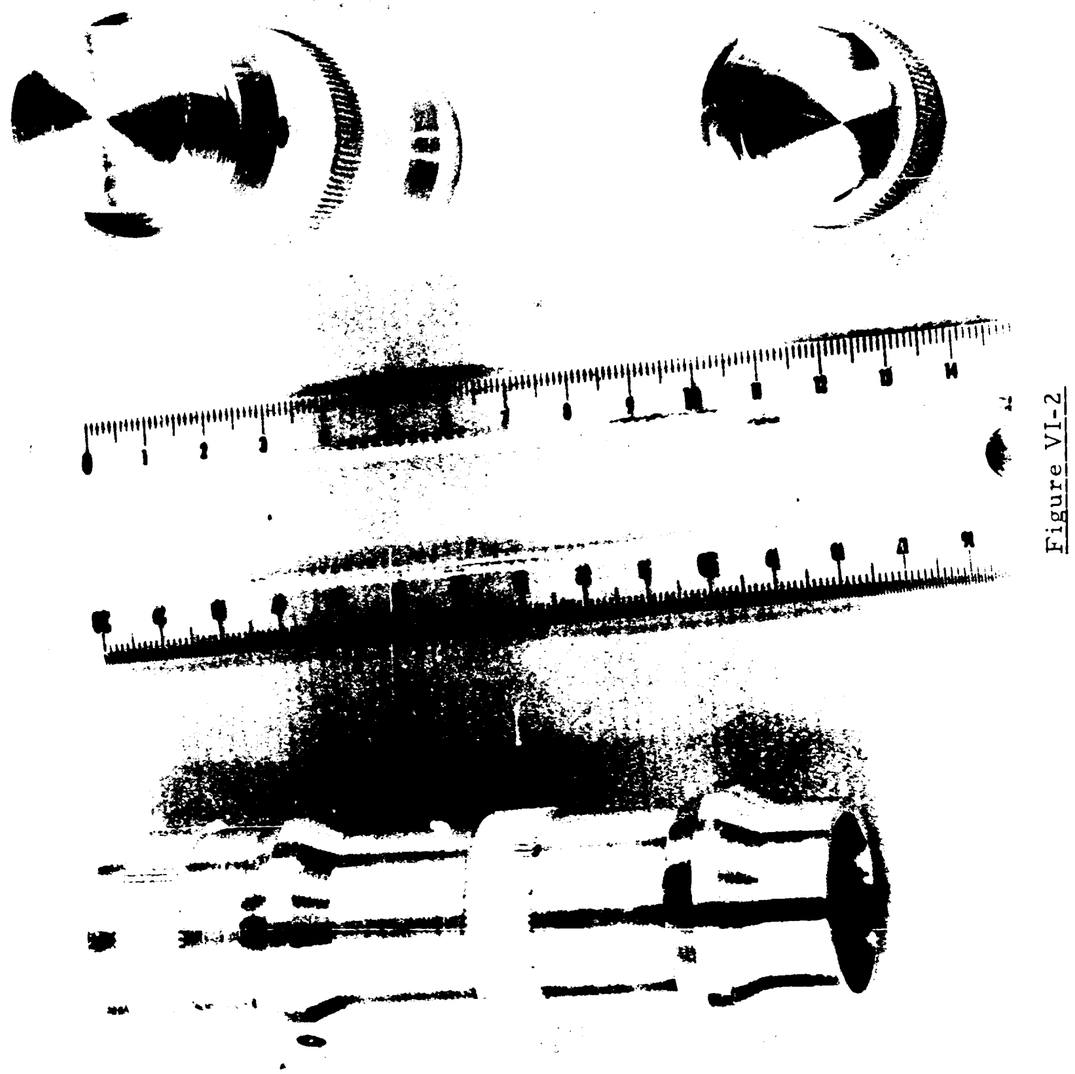


Figure VI-2

Figure VI-3

Figure VI-4

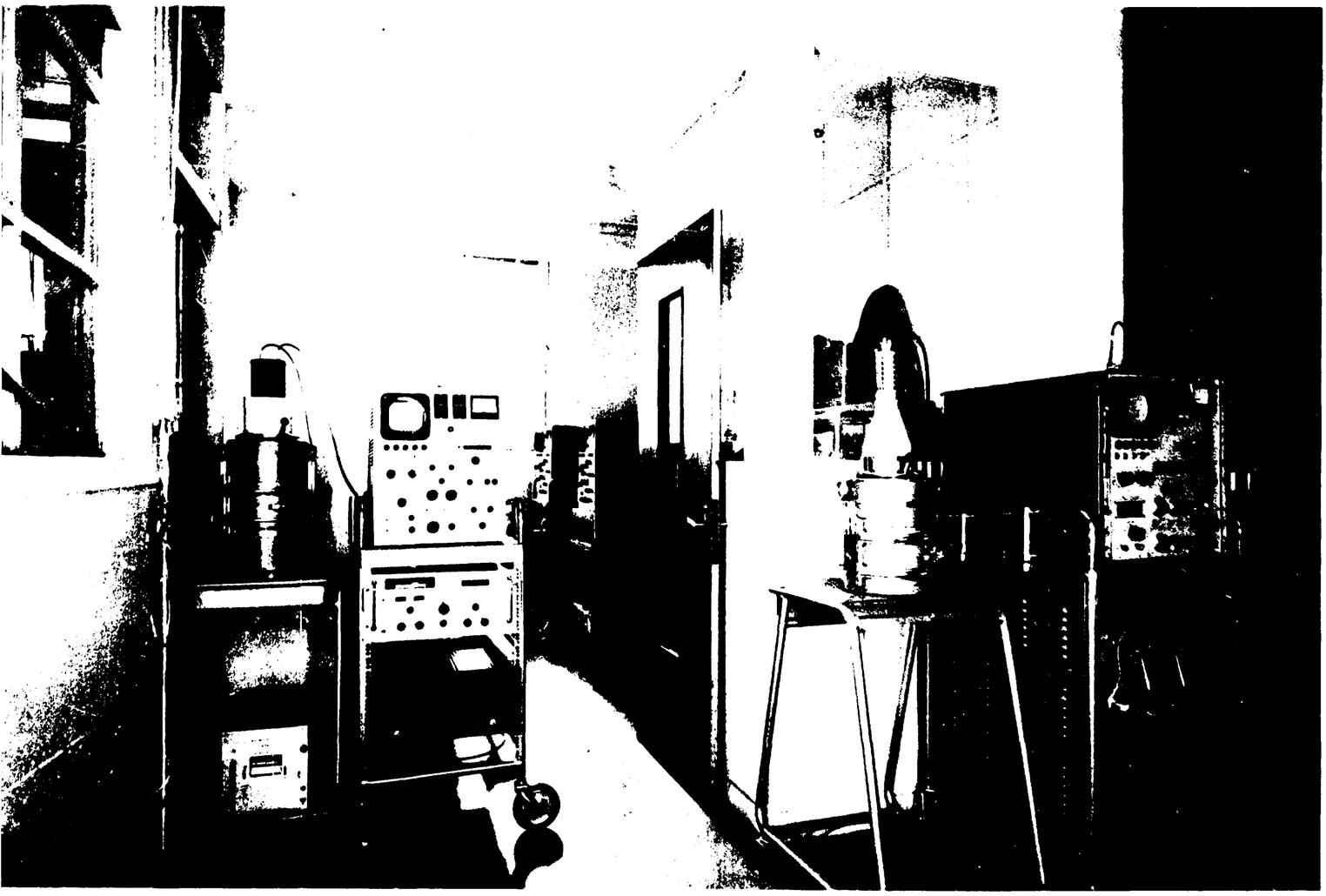


Figure VI-5

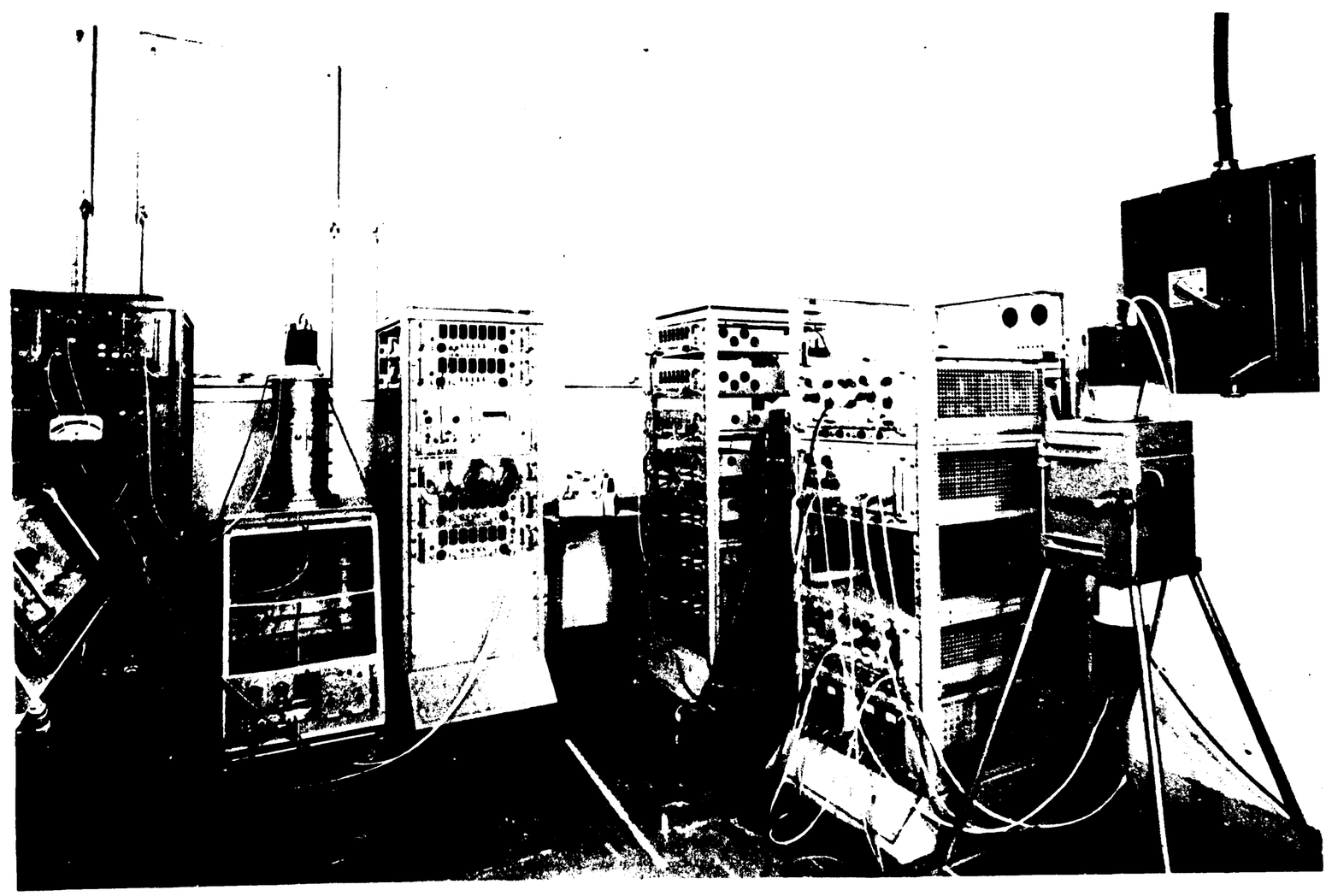


Figure VI-6

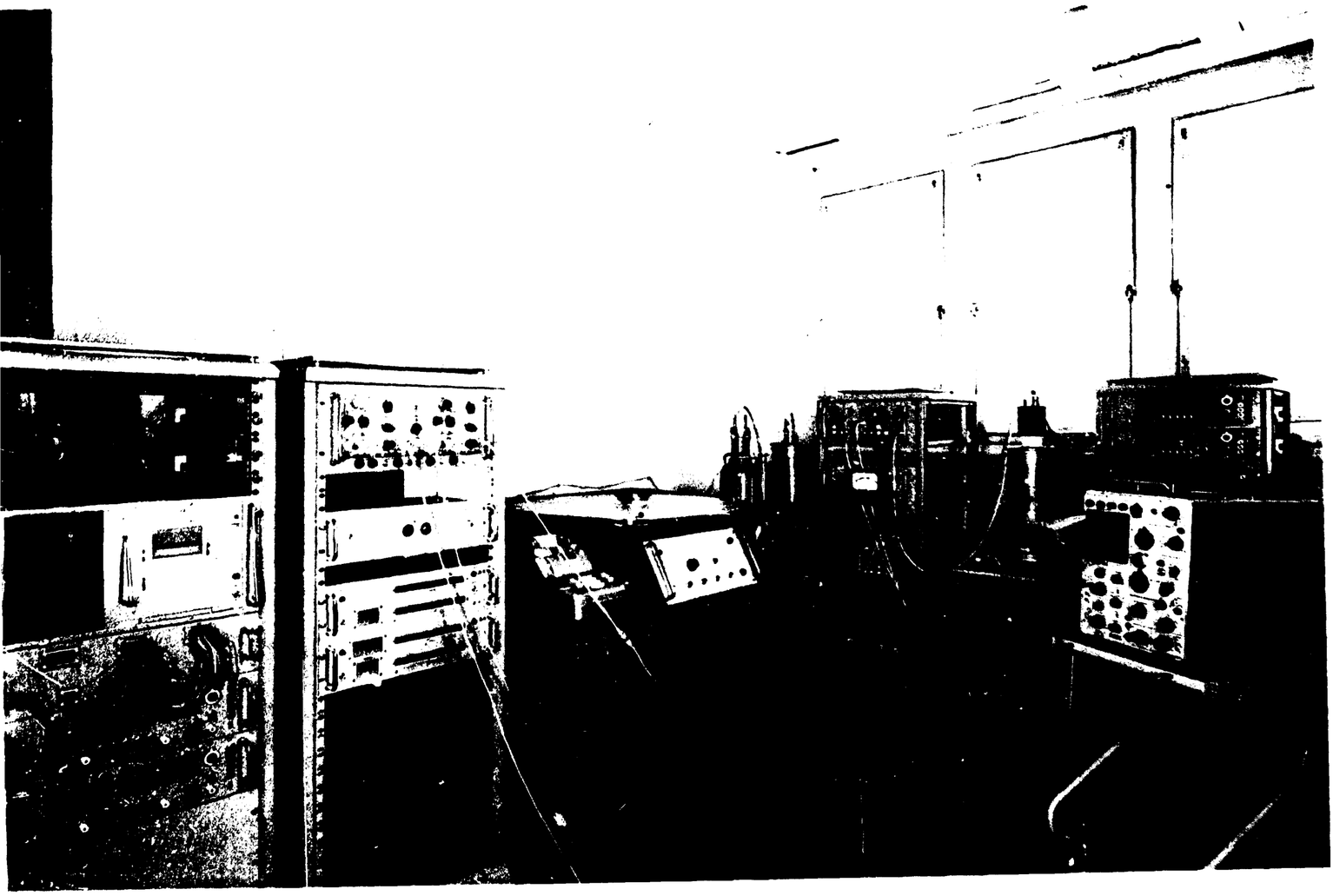


Figure VI-7