



Étude de quelques phénomènes observés sur des échantillons métalliques irradiés dans l'air par des deutons d'environ 3 MeV

A. Kohn, J. Doumerc

► To cite this version:

A. Kohn, J. Doumerc. Étude de quelques phénomènes observés sur des échantillons métalliques irradiés dans l'air par des deutons d'environ 3 MeV. *Journal de Physique et le Radium*, 1955, 16 (8-9), pp.649-653. [10.1051/jphysrad:01955001608-9064901](https://hal.science/jpa-00235238). [jpa-00235238](https://hal.science/jpa-00235238)

HAL Id: [jpa-00235238](https://hal.science/jpa-00235238)

<https://hal.science/jpa-00235238v1>

Submitted on 4 Feb 2008

HAL is a multi-disciplinary open access archive for the deposit and dissemination of scientific research documents, whether they are published or not. The documents may come from teaching and research institutions in France or abroad, or from public or private research centers.

L'archive ouverte pluridisciplinaire **HAL**, est destinée au dépôt et à la diffusion de documents scientifiques de niveau recherche, publiés ou non, émanant des établissements d'enseignement et de recherche français ou étrangers, des laboratoires publics ou privés.



HAL Authorization

C
E

LE JOURNAL DE PHYSIQUE ET LE RADIUM.

TOME 16, AOÛT-SEPTEMBRE 1955, PAGE 649.

ÉTUDE DE QUELQUES PHÉNOMÈNES
OBSERVÉS SUR DES ÉCHANTILLONS MÉTALLIQUES IRRADIÉS DANS L'AIR
PAR DES DEUTONS D'ENVIRON 3 MeV

Par A. KOHN et J. DOUMERC.

Sommaire. — On a examiné la validité d'une méthode de dosage de traces de carbone dans des échantillons de fer, par irradiation de courte durée dans un flux de deutons extérieurs de 3 MeV. Le principal phénomène à éviter est l'adsorption par les échantillons métalliques des gaz de l'air rendus radioactifs.

Dans un travail antérieur [1], M^{me} Joliot-Curie avait montré la possibilité de doser le carbone dans des échantillons d'acier, en comparant l'activité de ces échantillons à celle d'un étalon irradié simultanément dans des conditions analogues par le flux de

deutons du Collège de France. La réaction $^{12}_6\text{C}(\text{d},\text{n})^{13}_7\text{N}$, qui donne naissance à du radioazote de période 10,2 mn, possède en effet une section efficace très élevée, et elle devrait pouvoir permettre une évaluation précise de teneurs très faibles en carbone; mais, au cours

de ces essais, on avait constaté l'existence de phénomènes parasites qui limitaient la sensibilité de la méthode. La présente étude avait pour but de déterminer l'origine de ces phénomènes, et de voir dans quelle mesure il serait possible de les éviter.

Alors que ce travail était en cours, Albert, Chaudron et Sue [2] ont mis au point une technique de séparation chimique, permettant d'isoler le radioazote formé dans des échantillons d'acier irradiés à l'intérieur de la chambre du cyclotron, et fournissant ainsi un autre moyen d'apprécier la teneur en carbone d'échantillons de fer très pur.

Hétérogénéité spatiale du faisceau de deutons.

— La méthode essayée par M^{me} Joliot-Curie a l'avantage de supprimer tous les inconvénients qui résultent des variations inévitables du faisceau de deutons au cours du temps; mais il importe que les divers échantillons irradiés simultanément soient soumis à l'action des deutons, dans des conditions rigoureusement identiques.

Nous avons d'abord examiné l'homogénéité du faisceau de deutons au moyen d'une technique autoradiographique consistant à impressionner une

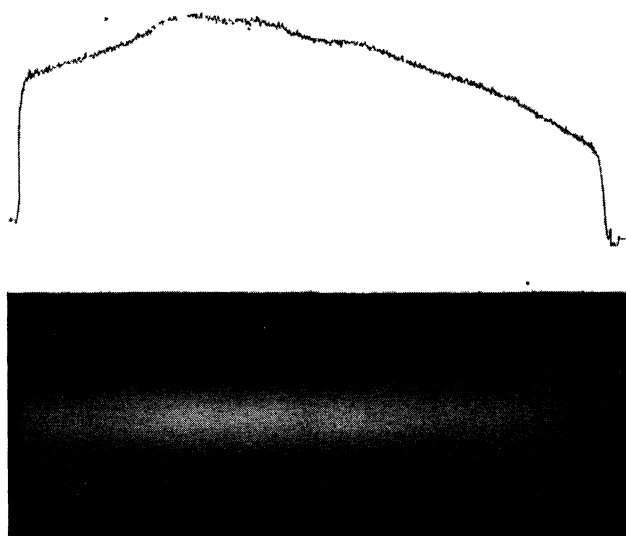


Fig. 1. — Reproduction d'une autoradiographie obtenue par irradiation d'une cible en graphite placée à 18,5 cm de la fenêtre du cyclotron, et de sa courbe photométrique.

émulsion photographique par un bloc de graphite usiné, irradié à des distances déterminées de la fenêtre du cyclotron. D'après l'examen des autoradiographies obtenues et les résultats de déterminations microphotométriques exécutées sur les clichés nous avons constaté que dans aucune section du flux, la répartition des deutons ne pouvait être considérée comme suffisamment homogène (voir fig. 1).

Afin d'éviter cet inconvénient, nous avons réalisé

nos essais en utilisant une cible tournante, qui permettait de faire passer successivement trois échantillons dans la même partie du faisceau de deutons, à la cadence d'environ 200 fois par minute.

Activités produites dans des échantillons irradiés à différentes distances de la fenêtre.

— Nous avons étudié les courbes de décroissance d'activité d'échantillons irradiés à 5, 12 et 18,5 cm de la fenêtre du cyclotron. Pour toutes ces positions nous avons observé, outre l'existence de l'activité de période 10 mn, la présence d'une activité intense de période 1,9 mn. De plus, on a constaté qu'une activité de période 18 h due à la réaction $^{54}_{26}\text{Fe}(d, n)^{55}_{27}\text{Co}$ se manifestait faiblement dans l'échantillon irradié à 12 cm, et de façon très importante dans l'échantillon irradié à 5 cm; celui-ci présentait également une activité peu intense de période plusieurs dizaines de jours. La seule activité de longue période décelée dans l'échantillon irradié à 18,5 cm était faible et avait une période de 100 à 200 mn (voir fig. 2).

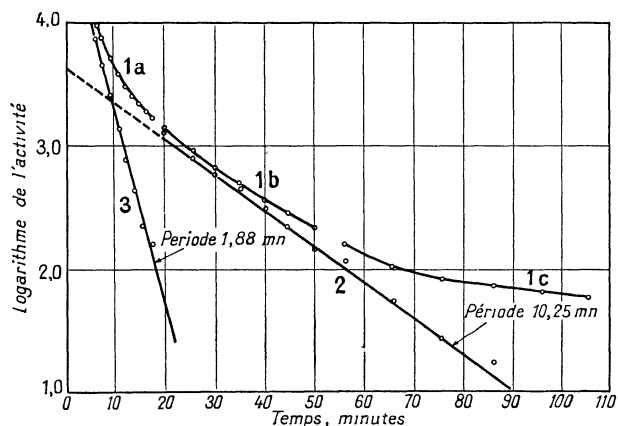


Fig. 2. — Décomposition de la courbe de décroissance d'un échantillon à environ 0,002 pour 100 C, irradié à 18,5 cm de la fenêtre.

1. Tronçons des courbes représentant les mesures brutes, décalés pour donner une courbe continue; a. Mesures de 1 mn toutes les 1,5 mn; b. Mesures de 4,5 mn toutes les 5 mn; c. Mesures de 9,5 mn toutes les 10 mn.
2. Courbe obtenue après soustraction de la période longue supposée infinie par rapport aux autres périodes (62 c/mn).
3. Courbe obtenue après soustraction de la période longue et de la période 10 mn.

La courte période de 1,9 mn observée ne correspond à aucun radioélément connu; elle est intermédiaire entre la période de 2,1 mn du radio-oxygène formé par la réaction $^{14}_7\text{N}(d, n)^{15}_8\text{O}$ et la période de 1,2 mn du radiofluor dû à la réaction $^{18}_8\text{O}(d, n)^{17}_9\text{F}$. On verra par la suite qu'il est effectivement possible d'interpréter l'existence de cette période comme résultant de l'activation simultanée d'oxygène et d'azote.

L'activité de période 100 à 200 mn était trop faible (trois à quatre fois le mouvement propre) pour que

l'on puisse déterminer sa valeur avec exactitude. Elle pourrait être due à la réaction ${}^{56}_{26}\text{Fe}(d, \alpha){}^{54}_{25}\text{Mn}$ qui produit du radiomanganèse de période 156 mn; d'autres réactions, que nous examinerons plus loin, pourraient également en être la cause.

Conditions de nos essais. — A la suite de ces essais préliminaires, nous avons disposé la cible tournante à 18,5 cm de la fenêtre du cyclotron; l'énergie des deutons en cette position est d'environ 3 MeV.

Les échantillons utilisés étaient des plaquettes de 10 mm de longueur utile, 5 mm de largeur et environ 2 mm d'épaisseur, polies à l'alumine, lavées à l'alcool et rincées à l'eau distillée bouillante. Les irradiations d'une durée de 10 mn étaient réalisées sous un flux dont l'intensité était voisine du maximum. La décroissance d'activité des échantillons irradiés simultanément était suivie par des mesures effectuées alternativement sur chacun d'entre eux.

Étude de l'activation de divers éléments sous l'influence de deutons d'environ 3 MeV. — Nous avons étudié la décroissance de l'activité produite par des échantillons variés afin de préciser l'influence possible de diverses impuretés contenues

dans les échantillons d'acier (Al, Co, Cu, Mg, Mn, Ni, N, O); les résultats de ces essais sont indiqués dans le tableau I.

Dans tous les échantillons examinés, nous avons observé l'existence d'une activité de période 10 mn qui était du même ordre de grandeur que celle d'un échantillon d'acier à environ 0,02 pour 100 C.

Dans tous les échantillons, sauf sur les trois échantillons d'aluminium, nous avons distingué l'existence d'une très faible activité dont la période est de l'ordre de quelques heures.

Dans les échantillons de nickel et de cobalt où l'on a étudié la courbe de décroissance immédiatement après l'irradiation, on a observé l'existence d'une activité de période voisine de 1,9 mn. Dans l'échantillon nitruré on a également constaté la présence d'une activité intense de courte période, mais sa valeur n'a pu être calculée (il s'agit probablement de la période de 2,1 mn due à la réaction ${}^{14}_7\text{N}(d, n){}^{15}_6\text{O}$). Dans les trois échantillons d'aluminium on a observé une activité intense de période 2,3 mn due à la réaction ${}^{27}_{13}\text{Al}(d, p){}^{26}_{12}\text{Al}$.

Il semble peu probable que l'activité de période 10 mn observée sur ces divers échantillons soit due à l'activation de l'élément étudié sous l'influence des deutons; l'origine exacte de cette activité sera

TABLEAU I.

Résumé des résultats obtenus d'après les mesures de décroissance de divers échantillons métalliques.

Élément.	Nature de l'échantillon.	Rapport de l'activité 10 mn et de celle d'un échantillon à 0,02 pour 100 de carbone irradié simultanément	Existence d'une période	
			inférieure à 10 mn	supérieure à 10 mn.
Aluminium.....	Al commercial à 99,98	1,68	2,3 mn intense	Pas décelable à la 57 ^e minute
Cuivre.....	Cu commercial	1,25	Pas étudiée	Serait d'environ 130 c/mn à la 100 ^e mn
Cobalt.....	Pastille de Co	Pas déterminé	1,8 à 1,9 mn	Serait d'environ 200 c/mn à la 100 ^e mn
Magnésium.....	Al à 0,5 pour 100 Mg	2,8	Activité courte intense de période non calculée (probablement 2,3 mn)	Pas de période longue discernable vers la 80 ^e minute
	Al à 1 pour 100 Mg	2,5		
Manganèse.....	Acier à : 0,03 pour 100 C, 1 » Mn et 2 » Al	1,14	Pas étudiée	Environ 140 c/mn à la 87 ^e minute
Nickel.....	Feuille de Ni commercial	1,7	1,9 mn	Environ 60 c/mn à la 85 ^e minute
Oxygène.....	Acier à 0,03 pour 100 C oxydé à 300°	1,15	Oui (sa période n'a pu être déterminée)	Environ 80 c/mn à la 60 ^e minute
Azote.....	Acier à 0,03 pour 100 C nitruré (plus de 10 pour 100 N dans la couche superficielle)	0,82	Très importante (sa période n'a pu être déterminée)	Environ 100 c/mn à la 53 ^e minute

discutée plus loin, mais il n'est pas exclu qu'elle soit due — tout au moins en partie — à la présence de traces de carbone dans les échantillons.

Ces essais montrent donc que dans les conditions d'irradiation choisies (deutons d'environ 3 MeV), aucun des éléments étudiés ne serait susceptible de s'activer de façon appréciable en donnant une activité de période voisine de 10 mn, dans le cas où il serait présent à l'état de traces dans des échantillons de fer; l'azote, l'aluminium et éventuellement l'oxygène, produisent des radioéléments dont la période est nettement plus courte.

Comparaison de l'activité mesurée sur des échantillons à teneur différente en carbone. —

Plusieurs irradiations effectuées sur trois échantillons identiques très riches en carbone, ont produit des activités de périodes 10 mn absolument comparables, les écarts observés étant inférieurs à l'erreur qui pouvait résulter des mesures d'activité; le dispositif à cible tournante supprimait donc toute cause d'erreur pouvant résulter de l'hétérogénéité du faisceau de deutons.

Des essais comparatifs ont été effectués sur des échantillons à 0,55, 0,25, 0,12 et 0,02 pour 100 C, irradiés par série de trois sur la cible tournante; les teneurs des trois échantillons les plus riches en carbone avaient pu être déterminées avec précision par des méthodes chimiques classiques.

Les points obtenus pour chaque série d'échantillons, en portant les valeurs des activités correspondant à un même instant en fonction de la teneur en carbone, s'alignent sensiblement, mais la droite ainsi tracée, au lieu de passer par l'origine des axes, recoupe l'axe des ordonnées en un point correspondant à une valeur négative comprise entre 0,010 et 0,015 pour 100 C.

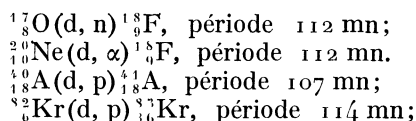
Ce résultat, confirmé plusieurs fois, indique qu'à l'activité due au carbone des échantillons s'ajoute une activité parasite de même période; les essais précédents montrent que cette activité supplémentaire ne peut être due à une impureté contenue dans le métal.

Étude de l'activité de l'air autour du cyclotron. — L'ensemble des phénomènes précédemment observés nous ont conduits à supposer que les échantillons métalliques étaient susceptibles d'adsorber les gaz radioactifs formés par l'activation de l'air situé sur le trajet des deutons.

Afin de vérifier cette hypothèse, nous avons fait fonctionner le cyclotron pendant 10 mn sans interposition de cible. Un compteur Geiger-Müller avait été placé dans le plan de la fenêtre du cyclotron, à environ 1 m de celle-ci, c'est-à-dire nettement en dehors du faisceau des deutons. Ce compteur était relié à un appareillage de mesure situé en dehors de l'enceinte du cyclotron.

Pendant le fonctionnement du cyclotron, l'activité était considérable, et 10 mn après l'arrêt du cyclotron, le compteur indiquait une activité de l'ordre de 100 000 c/mn. L'étude de la décroissance de cette activité, entre la 15^e et la 90^e minute, suivant l'arrêt du cyclotron, a permis d'identifier des activités de période 1,9 mn, 10 mn et environ 110 mn.

Cette activité ne peut être due qu'à l'activation des gaz de l'air, c'est-à-dire à l'oxygène et l'azote (période 1,9 mn), au gaz carbonique (période 10 mn) et à certains gaz rares ou à l'oxygène suivant les réactions possibles suivantes :



Irradiation en atmosphères d'azote et d'argon.

— Afin de préciser les conditions dans lesquelles s'effectue l'adsorption des gaz radioactifs de l'air, nous avons enfermé la cible tournante dans une chambre métallique close, munie de deux embouts fermés par des robinets et d'une fenêtre en feuille d'or à travers laquelle pouvait passer le faisceau de deutons.

A l'aide de ce dispositif, nous avons irradié des échantillons à environ 0,02 pour 100 C, en assurant une circulation d'argon ou d'azote à l'intérieur de la chambre : celle-ci qui était démontable, était ouverte dans un laboratoire où l'atmosphère était inactive.

La courbe de décroissance de l'activité de l'échantillon irradié en atmosphère d'azote a mis en évidence une activité très intense de période 2,1 mn due à la réaction $^{14}_7\text{N}(\text{d}, \text{n})^{15}_7\text{N}$ et l'activité de période 10 mn du carbone de l'échantillon. Sur un autre échantillon irradié en atmosphère d'argon, on a observé l'existence de l'activité de période 10 mn et d'une activité relativement importante de période environ 2 h produite par la réaction $^{40}_{18}\text{Ar}(\text{d}, \text{p})^{40}_{17}\text{Cl}$.

Conclusions. — Les essais auxquels nous avons procédé ont montré qu'il serait possible de doser des traces de carbone dans des métaux, en irradiant les échantillons et un étalon fixés sur une cible tournante, par des deutons d'environ 3 MeV. La comparaison des activités produites dans ces conditions offrirait un moyen correct d'apprécier la teneur en carbone des échantillons, en évitant toutes les causes d'erreur dues à l'hétérogénéité spatiale du faisceau ou aux variations du flux de deutons au cours du temps. Sous l'effet de deutons de cette énergie, l'activation du carbone a lieu avec une section efficace suffisante, alors qu'aucun des éléments, susceptibles d'être également présents dans les échantillons, ne peut donner naissance à des radioéléments de période voisine de celle du radioazote 13. Mais pour que cette méthode puisse être

appliquée, il faut éviter l'adsorption de gaz radioactifs par les échantillons irradiés.

En effet, l'étude de la courbe de décroissance de divers échantillons métalliques irradiés à l'air libre, a montré la présence d'activités de périodes environ 1,9 mn et 2 h et d'une activité supplémentaire de période 10 mn; or, l'activité de l'air au voisinage du cyclotron correspond à des radioéléments ayant ces mêmes périodes de décroissance. On peut donc en conclure que l'activité parasite observée sur les échantillons est due à l'adsorption par ces échantillons des gaz activés de l'air.

Si cette activité parasite était due à l'activation des gaz adsorbés spontanément par les échantillons avant l'irradiation, les activités observées devraient être sensiblement les mêmes quelle que soit l'atmosphère qui entoure les échantillons durant l'irradiation (air, azote ou argon), ce qui n'est pas le cas. Il paraît plus vraisemblable que cette activité est due aux radioéléments produits par les divers constituants de l'air sous l'influence des deutons, et adsorbés par les échantillons immédiatement après l'arrêt du cyclotron. Il est en effet probable que le choc des deutons détruit la couche initiale de gaz adsorbés et empêche quelle ne puisse se reformer de façon stable au cours de l'irradiation. De plus, il n'est pas impossible que ce bombardement détruisse également la mince pellicule d'oxyde qui se forme spontanément sur la surface des métaux exposés à l'air, laissant ainsi le métal à nu dans un état particulièrement favorable à l'adsorption lorsque cesse l'irradiation; ce phénomène est d'ailleurs sans doute favorisé par la présence dans l'air de nombreux ions, dont certains proviennent des éléments transmutés, qui pourraient être rapidement fixés à la surface des échantillons.

Un ensemble cohérent de phénomènes observés au cours de cette étude nous conduit donc à admettre que des échantillons métalliques bombardés par des deutons sont particulièrement aptes à adsorber les gaz qui les entourent dès qu'ils ne sont plus frappés par ces particules.

On peut donc penser que toute méthode de dosage d'un élément basée sur la détermination de l'activité

produite dans des échantillons métalliques par des particules dont le pouvoir de pénétration est très superficiel, est entachée d'une erreur (d'autant plus importante que la teneur de l'élément dosé est plus faible), si les échantillons sont mis en contact avec une atmosphère radioactive immédiatement après l'irradiation.

Les conditions matérielles dans lesquelles nous avons entrepris cette étude ne nous ont pas permis jusqu'à présent de mettre au point les techniques propres à éviter ce phénomène. On pourrait songer à attaquer légèrement les échantillons par une solution acide, mais ce moyen non contrôlable risquerait de dissoudre une certaine quantité de métal, variable d'un échantillon à l'autre, et d'introduire ainsi une autre cause d'erreur. Il serait peut-être possible de réduire l'importance de l'adsorption de gaz radioactifs en recouvrant les échantillons d'une feuille métallique d'épaisseur constante, soigneusement fixée sur les bords des échantillons. La solution qui paraît la meilleure consisterait à irradier les échantillons sous vide ou sous hydrogène, à l'intérieur d'une chambre qui serait ouverte dans une atmosphère inactive. On pourrait également envisager de dégazer les échantillons sous vide après l'irradiation, mais ce procédé risque de demander trop de temps. Nous espérons pouvoir essayer ces diverses méthodes dès que les circonstances nous le permettront.

Nous tenons à remercier M^{me} Joliot-Curie pour l'intérêt avec lequel elle a suivi ce travail et pour les conseils précieux qu'elle nous a donnés au cours de sa réalisation. Nous adressons également nos remerciements à M. Joliot-Curie qui a bien voulu nous autoriser à disposer du cyclotron pour ces essais, malgré la gêne qui pouvait en résulter pour les chercheurs du Collège de France.

Enfin, nous ne saurions trop exprimer notre gratitude à M. Savel et à toute l'équipe de techniciens du cyclotron, grâce au concours desquels l'exécution matérielle de cette étude a été facilitée.

Manuscrit reçu le 14 avril 1955.

BIBLIOGRAPHIE.

- [1] CURIE I. — *J. Physique Rad.*, 1952, **13**, 33.
- [2] ALBERT Ph., CHAUDRON C. et SUE P. — *J. Chimie Phys.*, 1953, p. C97.