

PHY-3004 / GPH-3003

Analyse de l'activation par neutrons lents

[...production, identification des radio-isotope, estimation du flux de neutrons et section efficace de production]

PROF L. BEAULIEU

(Ce laboratoire est basé sur les notes originales du Prof. G. Bédard)

Le but est de vérifier la production de radio-isotopes par bombardement neutronique et de les identifier par leur rayonnement et leur demi-vie.

OBJECTIFS

- Se familiariser avec la détection de γ à l'aide d'un scintillateur NaI(Tl) et avec l'instrumentation électronique appropriée
- Produire des isotopes instables par irradiation avec des neutrons lents
- Identifier les radio-isotopes par la mesure de leur spectre γ avec un analyseur multicanaux.
- Mesurer le flux de neutrons d'une source.
- Mesurer la section efficace de capture de neutrons dans une cible

INTRODUCTION

L'analyse de l'activation par neutrons lents est une technique simple et puissante pour l'identification de nombreux éléments. Les neutrons sont particulièrement efficaces pour produire des réactions nucléaires; sans charge, ils ne sont pas repoussés par le noyau. Leur efficacité de réaction dépend de leur énergie et est des plus grandes aux vitesses thermiques. Un échantillon est irradié par des neutrons et il devient radioactif; par la mesure de l'énergie des β ou des γ qu'il émet et de leur demi-vie, il est possible d'identifier les constituants de l'échantillon et leurs concentrations relatives. L'activation industrielle se fait habituellement avec le flux de neutrons lents d'un réacteur qui peut atteindre la valeur de 5×10^{13} neutrons/cm²/sec. La sensibilité de cette méthode est habituellement meilleure, par un facteur 10, que celle de l'analyse instrumentale, qu'elle soit spectrographique, spectroscopique, gravimétrique ou autre. On utilise aujourd'hui l'analyse par activation dans des domaines aussi variés et différents que la géologie, la médecine, l'agriculture, l'électronique, la métallurgie, la criminologie et l'industrie pétrolière.

ÉLÉMENTS DE THÉORIE

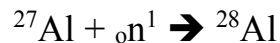
LA SOURCE DE NEUTRONS

La source de neutrons du laboratoire est constituée d'une source radioactive de ^{241}Am de 2 Curies (ou 74 GBq en unité moderne; $t_{1/2} = 433$ années) émettant des α de 5.48 MeV. Celle-ci est entourée de Be pour produire la réaction $\alpha + {}^9\text{Be} \rightarrow \text{n} + {}^{12}\text{C}$. Comme les alphas sont ralentis et arrêtés dans le Be, les neutrons produits (environ 6.0×10^4 neutron/sec par GBq) ont une énergie qui s'étale jusqu'à environ 10 MeV.

Cette source est dans une capsule d'acier. La source Am-Be placée au centre d'un bloc de paraffine (hydrocarbure saturé, i.e. composé de C et H) produit des neutrons, qui entrent en collision avec les noyaux de H et C et perdent leur énergie (distance source Am-Be – échantillons variant de 5 à 10 cm). Les neutrons sont ralentis jusqu'à ce que leur distribution de vitesse soit une distribution Maxwellienne à la température ambiante. On obtient ainsi des *neutrons thermiques*.

L'ACTIVATION

Au temps 0, l'échantillon est placé dans un flux Φ de neutrons $\text{cm}^{-2} \text{s}^{-1}$. Les noyaux de l'échantillon d'aluminium par exemple ^{27}Al sont transmutés en ^{28}Al



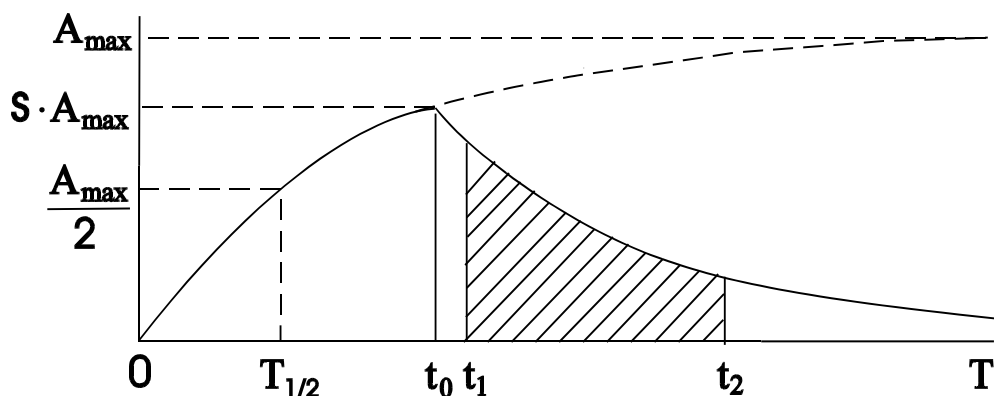
à un taux constant Q atomes/sec, mais ces derniers se désexcitent par émission γ avec une constante de désintégration λ . Le nombre de noyaux radioactifs $N(t)$, et l'activité $A(t) = \lambda N(t)$, augmente avec le temps selon la relation

$$N(t) = \frac{Q}{\lambda}(1 - e^{-\lambda t}) = \frac{A(t)}{\lambda}$$

Si l'irradiation dure très longtemps, le nombre de noyaux/sec qui se désintègrent devient égal au nombre de noyaux/sec qui sont produits: $A = Q$, et l'activité atteint son maximum A_{max} (voir figure). Si l'irradiation dure un temps t_0 , la fraction de A_{max} atteinte est nommée facteur de saturation S

$$S = 1 - e^{-\lambda t_0}$$

Par définition, lorsque $t_0 = T_{1/2} = 0.693/\lambda$ ($T_{1/2} = 2.24$ m pour ^{28}Al), l'activité atteint 1/2 de sa valeur maximum, puis les 3/4 après 2 demi-vies etc. On voit donc qu'on gagne peu à irradier plus longtemps que 2 demi-vies.



Le taux de production des noyaux radioactifs est proportionnel au flux de neutrons Φ , au nombre de noyaux cibles N_c , et à la section efficace de capture σ des neutrons par l'isotope cible. L'activité à la fin de l'irradiation vaut

$$A(t_o) = \sigma \Phi N_c S \quad ; \quad N_c = \alpha m N_A W^{-1}$$

où α = fraction de l'isotope cible dans l'échantillon
 m = masse de l'élément cible (g)
 N_A = nombre d'Avogadro, 6.023×10^{23} atomes/mole
 W = poids moléculaire de l'élément cible
 σ = section efficace de capture des neutrons lents.
 S = facteur de saturation

Cible	Abondance naturelle %	Section efficace de capture des neutrons lents σ (barns) 1 barn = $1 \times 10^{-24} \text{cm}^2$	Réaction d'activation neutronique
-------	-----------------------	---	-----------------------------------

^{51}V	99,75%	4,9	$^{51}\text{Al} (n,\gamma) ^{52}\text{V}$
^{27}Al	100%	0,23	$^{27}\text{Al} (n,\gamma) ^{28}\text{Al}$
^{107}Ag	51,839%	0,37	$^{107}\text{Ag} (n,\gamma) ^{108}\text{Ag}$
^{109}Ag	48,161%	4,2	$^{109}\text{Ag} (n,\gamma) ^{110}\text{Ag}$
^{63}Cu	69,17%	4,5	$^{63}\text{Cu} (n,\gamma) ^{64}\text{Cu}$
^{65}Cu	30,83%	2,17	$^{65}\text{Cu} (n,\gamma) ^{66}\text{Cu}$

LE TRANSPORT

Dans cette expérience, l'échantillon se désexcite par l'émission de γ qui seront détectés par un scintillateur NaI(Tl). Or, dès la fin de l'irradiation, l'activité décroît exponentiellement

$$A(t) = A(t_0) e^{-\lambda(t-t_0)}$$

Pour effectuer des mesures sur les radio-isotopes produits, il faut transporter l'échantillon activé pour le placer devant un détecteur. Il faut donc tenir compte de l'intervalle de temps entre l'instant t_0 de fin d'activation et l'instant t où les mesures débutent. Si la demi-vie est courte, comme dans le cas pour un des deux radio-isotopes de l'argent, ce transport doit donc se faire le plus rapidement possible.

LA MESURE DE L'ACTIVITÉ

On observe le spectre γ soit en entier soit seulement le photopic. La décision à prendre dépend du bruit de fond. On ajuste la fenêtre de sélection du discriminateur en conséquence.

Le taux A_γ de γ détectés, *après soustraction du bruit de fond*, est proportionnel à l'activité de l'échantillon suivant la relation

$$A_\gamma = A_e G K_t K_p f = K A_e$$

où A_e = activité de l'échantillon pris comme un point source,

G = la surface du détecteur / $4\pi \cdot (\text{distance échantillon-détecteur centre à centre})^2$;
ou encore l'angle solide sous-tendu par le détecteur / 4π tel que décrit plus bas.

K_t = la correction pour la diffusion/atténuation dans l'échantillon tel que discuté plus bas.

K_p = efficacité de détection du photopic d'intérêt par le détecteur NaI. Celui-ci est donné par une figure à la fin du protocole Compton ainsi que dans le document d'introduction à la spectroscopie gamma, (si l'on observe que celui-ci).

f = la fraction de ces gammas qui sont émis par désintégration (p.ex. le gamma de 662 keV du ^{137}Cs est de 0.851 car la probabilité de cette branche – branching ratio – est de 85.1%)

K = la fraction des γ émis qui sont détectés par le scintillateur et est la convolution de l'ensemble des facteurs de correction mentionnés ci-haut.

Le calcul de l'angle solide n'est pas trivial car la source est étendue; de plus, l'approximation de la variation en $1/\text{distance}^2$ n'est plus valable lorsque la distance devient très faible, par exemple lorsque le cylindre est appuyé sur le détecteur. Une autre difficulté est que l'efficacité du détecteur varie selon la position d'un point source placé à sa surface ou à une certaine distance de son axe central. Une autre considération est

l'absorption et la diffusion (effet principal à ces énergies) des γ à l'intérieur de l'échantillon avant d'atteindre le détecteur. Seul un calcul par la méthode de Monte Carlo pourrait tenir compte de tous ces effets.

Dans le cas où la surface plane du cylindre d'aluminium (Al) est appuyée sur le détecteur, en remplaçant ce volume par un point source, un calcul numérique donne un angle solide de $0.14 \times 4\pi$ à 10-15% près. La correction pour la diffusion des γ dans l'échantillon serait de l'ordre de 7% pour le spectre total et de 15 à 20% pour le photopic seulement. Pour l'échantillon de Vanadium fait de 6 petits cylindres dont les bouts sont appuyés sur le détecteur, la valeur calculée est $d\omega = 0.27 \times 4\pi$ et la diffusion des γ est à peu près la même (l'augmentation du coefficient d'absorption compense pour le petit volume). Vous devrez faire votre propre approximation pour le cylindre de cuivre (Cu).

MÉTHODES D'ÉVALUATION DE L'ACTIVITÉ INITIALE APRÈS IRRADIATION.

- Une première méthode (dite *intégrale*) soit *l'accumulation du spectre gammas pendant un certain temps* fournit de bonnes statistiques pour évaluer $A_\gamma(t_0)$ et permet de mesurer aussi l'énergie des gammas.
- Une deuxième méthode (dite *différentielle*) soit *la mesure de l'activité en fonction du temps* fournit en même temps la mesure de $A_\gamma(t_0)$ et de la demi-vie $T_{1/2}$.

Ici nous utiliserons la méthode 1 car elle se combine facilement avec les besoins de de l'identification des isotopes!

L'INTÉGRALE DE L'ACTIVITÉ

On accumule le spectre γ du temps t_1 à t_2 . Le nombre de noyaux N_e qui se sont désexcités entre t_1 et t_2 est l'intégrale de l'activité pendant ce temps ou encore c'est la différence entre le nombre de noyaux radioactifs présents au temps t_1 et le nombre qui restent au temps t_2 soit:

$$N_e = N(t_0) e^{-\lambda(t_1 - t_0)} [1 - e^{-\lambda(t_2 - t_1)}]$$

et le nombre de γ observés = KN_e . de l'équation donnée précédemment!). Connaissant les temps en cause, on obtient $N(t_0)$, d'où l'on tire l'activité initiale de l'échantillon $A_e(t_0) = \lambda N(t_0)$. L'activité mesurée par le détecteur est $A_\gamma(t_0) = K A_e(t_0)$.

En préparation pour le laboratoire : préparer un tableau de prise de mesure dans votre cahier de laboratoire: échantillon à activité, isotope(s) produit(s), demi-vie associée, énergie des transitions attendues (il faudra faire des recherches ici. Voir la section ressource internet mise à votre disposition sur mon Portail. Il sera aussi intéressant de recherche le schéma de décroissance sur Google, p.ex. : *Al-28 decay scheme* et etc), énergies des transitions observées

RÉFÉRENCES

- KRANE, *Introductory Nuclear Physics*.
- “HALF-LIFE MEASUREMENTS OF ... ^{110}Ag ”, S. Malmskog and J. Konijn, Nuclear Physics **38** (1962) 196.
- “HALF-LIVES OF SOME SHORT-LIVED RADIOACTIVE ISOTOPES”, H.P. Yule, Nuclear Physics **A94** (1967) 442.
- “Decay of ^{108}Ag ”, N.D. Johson et al., Z. Physik **243** (1971) 395
- “GAMMA TRANSITIONS IN THE DECAY OF ^{52}V ”, S. Malmskog, Nuclear Physics **49** (1963) 239

EXPÉRIMENTATION

INSTRUMENTATION ÉLECTRONIQUE ET SOURCES RADIOACTIVES

- Source radioactives d'étalonnage:
 ^{60}Co , $E_\gamma=1.33$ et 1.17 MeV, ^{137}Cs , $E_\gamma = 662$ KeV et ^{241}Am $E_\gamma = 59.54$ keV
- Scintillateur NaI(Tl), 2’’x2’’ **CANBERRA 802-3** avec photomultiplicateur
- Préamplificateur **CANBERRA 805**
- Source de haute tension **CANBERRA 3102**
- Amplificateur **ORTEC 571**
- Analyseur multicanaux : **OrTec avec logiciel MAESTRO**
- Oscilloscope
- Échantillons: ^{28}Al , ^{52}V et 108 & ^{110}Ag

Note: Le détecteur est entouré d'un château de plomb pour réduire le bruit de fond, principalement le rayonnement provenant des murs.

MANIPULATIONS

Avant de placer les échantillons pour activation, mesure les dimensions de l'Al et Cu à l'aide d'une règle. Consigner les mesures, déduisez le volume de chacun et donc leur masse respective ainsi que le nombre total d'atome cible.

Placer dès maintenant l'échantillon Cu et celui du V dans la boîte de paraffine. La source de neutrons a été préalablement placée au centre de la boîte de paraffine.
*** NE PAS OUBLIER DE NOTER L'INSTANT du début de l'irradiation ***

Remarque -

- Se référer au manuel quant à l'utilisation du logiciel.

Étalonnage en énergie de l'analyseur multicanaux

L'étalonnage en énergie de l'analyseur multicanaux requiert 3 sources radioactives dont l'énergie des γ permettra d'étalonner jusqu'à 2 000 keV.

- Effectuer les branchements du circuit électronique simplifié

DÉTECTEUR → PRÉAMPLIFICATEUR → AMPLIFICATEUR → ANALYSEUR MULTICANAUX

- Placer la source ^{60}Co (1 173 et 1 333 keV) devant l'ouverture du détecteur
- À l'aide de l'oscilloscope, ajuster le gain de l'amplificateur pour obtenir des impulsions d'environ +5V.
- Démarrer l'acquisition dans le logiciel MAESTRO.
- Observer le spectre des γ avec l'analyseur multicanaux et ajuster à nouveau le gain de l'amplificateur pour placer le photopic 1 333 keV au voisinage du canal central (où légèrement au-delà) de la plage de canaux de l'analyseur.
- Accumuler le spectre des γ .
- Remplacer la source ^{60}Co par celle de ^{137}Cs et accumuler le spectre. Notez aussi la présence à basse énergie d'un pic qui est là peut-être la source d'étalonnage utilisée jusqu'à présent. Il s'agit d'une transition électronique due à l'effet photo-électrique dans le Pb servant à blinder le détecteur. Chercher l'énergie de cette transition et utiliser comme 3^e points d'étalonnage
- Placer maintenant la source de ^{241}Am
- Utiliser les fonctions de définition des ROI pour sélectionner les pics et en extraire les paramètres avec ROI Report.
- Sauvegarder le fichier pour utilisation future et faire une capture d'écran du spectre et de la fenêtre Report pour ajouter en annexe de votre rapport de laboratoire.

ACTIVATION DU VANADIUM, DE L'ALUMINIUM ET DU CUIVRE

Consulter la documentation disponible sur place et sur le web pour consigner dans votre cahier de laboratoire l'énergie des γ attendus pour chaque cible, la probabilité pour chacune des transitions donnant ces γ , ainsi que les temps de demi-vie et section efficace.

SPECTRE γ DU VANADIUM (MASSE DE 42.32g)

- Si ce n'est pas déjà fait, irradier l'échantillon pendant 2 demi-vies
- Récupérer l'échantillon irradié (noter précisément l'heure de retrait pour estimer le temps d'activation) et le placer devant le détecteur.
- Enregistrer le spectre et notez le temps d'acquisition (live!).
- Caractériser le photopic à l'aide des fonctions comme précédemment. Noter les résultats (l'énergie du γ , FWHM, Net Area et Background)
- Identifier le radioisotope produit.
- Sauvegarder le fichier pour utilisation future et faire une capture d'écran du spectre et de la fenêtre Report pour ajouter en annexe de votre rapport de laboratoire.
- Conserver l'information sur la plage du photopic et retirez l'échantillon est faire une acquisition du bruit de fonds pendant exactement le même temps live. Il s'agit du bruit de fond pour fin de calcul!
- Sauvegarder le fichier pour utilisation future et faire une capture d'écran du spectre et de la fenêtre Report pour ajouter en annexe de votre rapport de laboratoire.

SPECTRE γ DE L'ALUMINIUM

- Irradier l'échantillon pendant au moins 2 demi-vies
- Récupérer l'échantillon irradié (noter précisément l'heure de retrait pour estimer le temps d'activation) et le placer devant le détecteur.
- Enregistrer le spectre et notez le temps d'acquisition (live!).
- Caractériser le photopic à l'aide des fonctions comme précédemment. Noter les résultats (l'énergie du γ , FWHM, Net Area et Background)
- Identifier le radioisotope produit.
- Sauvegarder le fichier pour utilisation future et faire une capture d'écran du spectre et de la fenêtre Report pour ajouter en annexe de votre rapport de laboratoire.
- Conserver l'information sur la plage du photopic et retirez l'échantillon est faire une acquisition du bruit de fonds pendant exactement le même temps live.
- Sauvegarder le fichier pour utilisation future et faire une capture d'écran du spectre et de la fenêtre Report pour ajouter en annexe de votre rapport de laboratoire.

SPECTRE γ DU CUIVRE (À LA FIN UNIQUEMENT)

Profiter tu temps disponible en attendant le dernier 45 minutes de la séance pour:

- Calculer le flux de neutron ($\text{neutron cm}^{-2} \text{ s}^{-1}$) à partir de l'irradiation de l'Al connaissant la section efficace de 0.23b.
 - Comparerez cette fluence à celle du manufacturier
 - Calculez les sections efficaces du V et Cu à partir de votre fluence estimée et comparez aux valeurs théoriques.
-
- L'échantillon a été placé près de la source de neutrons en début de séance
 - Récupérer l'échantillon irradié (noter précisément l'heure de retrait pour estimer le temps d'activation) et le placer devant le détecteur.
 - Enregistrer le spectre et notez le temps d'acquisition (live!).
 - Caractériser le photopic à l'aide des fonctions comme précédemment. Noter les résultats (l'énergie du γ , FWHM, Net Area et Background)
 - Identifier le radioisotope produit.
 - Sauvegarder le fichier pour utilisation future et faire une capture d'écran du spectre et de la fenêtre Report pour ajouter en annexe de votre rapport de laboratoire.
 - Conserver l'information sur la plage du photopic et retirez l'échantillon est faire une acquisition du bruit de fonds pendant exactement le même temps live.
 - Sauvegarder le fichier pour utilisation future et faire une capture d'écran du spectre et de la fenêtre Report pour ajouter en annexe de votre rapport de laboratoire.

ACTIVATION DE L'ARGENT NATUREL

SPECTRE D'ÉNERGIE DES γ [Activation : $^{109}\text{Ag} + n^1 \rightarrow ^{110}\text{Ag}$ (24 sec)]

- Activer l'échantillon d'argent pendant au plus une minute pour observer principalement le γ correspondant à ^{110}Ag (demi-vie courte).
- Placer le plus rapidement possible l'échantillon devant le détecteur.
- Plusieurs activations successives sont requises pour avoir une bonne statistique de comptage.
- Caractériser le photopic à l'aide des fonctions comme précédemment. Noter les résultats (l'énergie du γ , FWHM, Net Area et Background)
- Identifier le radioisotope produit.
- Sauvegarder le fichier pour utilisation future et faire une capture d'écran du spectre et de la fenêtre Report pour ajouter en annexe de votre rapport de laboratoire.

SPECTRE D'ÉNERGIE DES γ [Activation : $^{107}\text{Ag} + {}_0\text{n}^1 \rightarrow ^{108}\text{Ag}$ (2,3 min)]

- Activer à nouveau pendant une dizaine de minutes. Attendre une minute avant de commencer à enregistrer le spectre (de manière ainsi à éliminer les radioisotopes de plus courte demi-vie).
- Plusieurs activations successives sont requises pour avoir une bonne statistique de comptage.
- Caractériser le photopic à l'aide des fonctions comme précédemment. Noter les résultats (l'énergie du γ , FWHM, Net Area et Background)
- Identifier le radioisotope produit.
- Sauvegarder le fichier pour utilisation future et faire une capture d'écran du spectre et de la fenêtre Report pour ajouter en annexe de votre rapport de laboratoire.

TRAITEMENT DES SPECTRES ET ANALYSE DES RÉSULTATS

- Analyser les spectres d'énergie des γ émis par les radio-isotopes produits par activation neutronique du **Vanadium**, de l'**Aluminium**, du **Cuivre** et de l'**Argent** naturel.
- Identifier les radioisotopes produits ainsi que les modes de transitions et de décroissances associés. Pour le Cuivre discuter de son utilisation potentielle en médecine. Pour l'**Argent** discuter de la relation entre le temps d'activation et la production des deux radioisotopes.
- Discuter comment cette méthode peut s'appliquer à la production de s'isotopes fort utile à la médecine comme le ^{60}Co , ^{192}Ir et ^{125}I . Quelles seraient les temps optimaux d'activation de ces isotopes et pourquoi?
- Présenter vos résultats de fluences et de sections efficaces de réactions nucléaires. Discuter de la précision de vos mesures en rapport aux valeurs connues.