

FR 9012/6

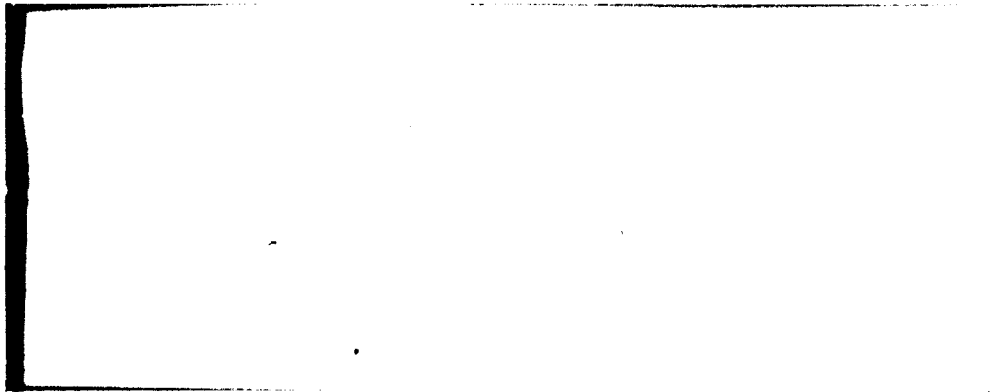
COMMISSARIAT A L'ENERGIE ATOMIQUE

Centre d'Études Nucléaires de Saclay

DIVISION DE CHIMIE

DÉPARTEMENT DE RECHERCHE ET ANALYSE

SERVICE D'ANALYSE ET D'ÉTUDES EN CHIMIE NUCLEAIRE ET ISOTOPIQUE



5. Symposium on the Recent Development in Activation
Analysis. Oxford, July 17 - 21, 1978
CEA - CONF 4547

PRINCIPE, POSSIBILITES ET APPLICATIONS DE L'ANALYSE
PAR ACTIVATION AUX PHOTONS GAMMA *

Ch. ENGELMANN**

DRA/SAECNI/79-187/382/CE/MC
Le 27 Mars 1979.

Laboratoire d'Analyse par Réactions
Nucléaires

PRINCIPE, POSSIBILITES ET APPLICATIONS DE L'ANALYSE
PAR ACTIVATION AUX PHOTONS GAMMA (*)

Ch. ENGELMANN

(*) Communication présentée dans le cadre du :
" 5th Symposium on the Recent Development in Activation Analysis "
OXFORD (GB), 17-21 Juillet 1978.

Visa du Chef de Service :


R. DARRAS

SUMMARY

The various photonuclear reactions suitable for analytical purposes, their specificity and their performances are reviewed.

The influence of the experimental irradiation conditions on the theoretical detection limits permitted and on the relative importance of competitive nuclear reactions liable to interfere is examined, with special reference to the determination of carbon, nitrogen and oxygen. It is shown that these parasitic effects of nuclear origin may be eliminated by the choice of the maximum irradiation energy.

Examples are given of applications relative to trace determinations of light elements, especially carbon, nitrogen and oxygen, in metals or semi-conductors and to instrumental multi-element analyses of biological materials, atmospheric sampling filters and above all agricultural products.

RESUME

Les diverses réactions photonucléaires utilisables à des fins analytiques, la spécificité et les performances qui les caractérisent, sont exposées.

L'influence des conditions expérimentales d'irradiation, d'une part sur les limites de détection théoriques autorisées, d'autre part sur l'importance relative des réactions nucléaires compétitives susceptibles d'entraîner des interférences, est examinées; notamment au sujet de la détermination du carbone, de l'azote et de l'oxygène. Il est montré que le choix de l'énergie maximale d'irradiation permet de s'affranchir de ces effets parasites d'origines nucléaires.

Des exemples d'applications se rapportant aux dosages de traces d'éléments légers, en particulier du carbone, de l'azote et de l'oxygène dans des métaux ou des semi-conducteurs, et aux analyses multiélémentaires instrumentales de matériaux biologiques de filtres de prélèvements atmosphériques et surtout de produits agricoles, sont présentés.

INTRODUCTION

Les neutrons thermiques et les particules chargées permettent en général de réaliser des analyses plus sensibles que les photons gamma. Cependant, l'emploi de ces derniers offre davantage de souplesse, notamment lorsque l'on dispose d'un accélérateur à énergie variable.

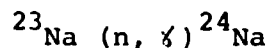
En premier lieu, les interférences par réactions nucléaires compétitives, spécialement en ce qui concerne la détermination des éléments légers (carbone, azote, oxygène, fluor,..), pour lesquels les réactions photonucléaires s'avèrent particulièrement intéressantes, peuvent être notablement réduites, voire complètement éliminées, en choisissant convenablement l'énergie maximale du faisceau gamma.

En second lieu, en adoptant pour cette dernière une valeur appropriée, il est possible, dans de nombreux cas, d'activer d'une manière relativement sélective, les éléments recherchés par rapport aux constituants majeurs du milieu qui les renferme.

En outre, les photons gamma tolèrent souvent l'application de méthodes purement instrumentales pour analyser des matériaux subissant des activations très importantes et durables par irradiation aux neutrons thermiques ou avec des particules chargées. L'analyse d'échantillons riches en sodium, comme par exemple les prélèvements biologiques, est typique à cet égard

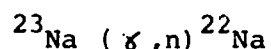
../..

En effet, la réaction de capture neutronique :



engendre des activités très intenses en sodium-24 ($T_{1/2} = 15,05$ heures; $E_{\gamma} = 1,368$ et $2,754$ MeV). Or, ce dernier se distingue par un spectre gamma complexe (raies d'absorption totale et de simple ou double échappement, fond continu provenant de la diffusion Compton); de sorte que l'analyse instrumentale d'un produit contenant de grandes quantités de sodium est difficile, voire impossible, notamment pour déterminer des éléments conduisant à des radioisotopes de périodes inférieures ou voisines de 15 heures.

En revanche, la réaction photonucléaire :



donne des activités en sodium-22 ($T_{1/2} = 2,58$ années; $E_{\gamma} = 0,511$ et $1,274$ MeV) assez modiques, peu contraignantes envers les méthodes instrumentales.

Par rapport aux particules chargées, les photons gamma, vu leur pouvoir pénétrant dans les milieux matériels, présentent l'avantage de consentir des analyses globales d'échantillons de masse comprise entre quelques milligrammes et plusieurs grammes. De plus, les étalonnages sont toujours simples et directs, et ne requièrent aucunement des échantillons de référence calibrés par ailleurs.

Enfin, des dispositifs tournants, permettant l'activation de plusieurs échantillons et étalons dans des conditions strictement identiques, ou une irradiation homogène de prélèvements liquides volumineux (Ex : eau, fluides biologiques, produits pétroliers, ...), sont utilisables.

../..

CARACTERISTIQUES, PERFORMANCES ET DOMAINES
D'APPLICATIONS SPECIFIQUES DES DIVERSES ACTIONS
PHOTONUCLEAIRES UTILISEES EN ANALYSE

La figure 1 représente schématiquement, les principaux types de réactions nucléaires, induites par des photons gamma, mises en oeuvre à des fins analytiques.

La photoexcitation nucléaire conduit - via des réactions de diffusion inélastique (γ, γ') - à la production d'isomères radioactifs détectables par leur rayonnement gamma caractéristique. Ce processus d'activation permet de doser près de 20 éléments de numéros atomiques supérieurs à 30.

Les réactions photonucléaires consentent la détermination de presque tous les éléments; les plus employés étant celles de la catégorie (γ, n). Cependant, le dosage de certains éléments repose sur l'usage de réactions (γ, p), ($\gamma, 2n$), voire d'autres plus complexes.

Quant à la photofission, son application est évidemment limitée aux matériaux nucléaires fertiles ou fissiles.

Les limites de détection autorisées par ces trois moyens d'investigations analytiques, ainsi que les énergies des photons gamma nécessaires pour leur utilisation, sont consignées dans le tableau I.

Des exemples d'éléments dosables par ces diverses réactions nucléaires et les méthodes de mesure usitées pour détecter les produits issus de celles-ci sont indiqués dans le tableau II.

GENERATEURS DE PHOTONS GAMMA

- Hormis quelques cas spéciaux, concernant par exemple :
- la détermination du deutérium ou du béryllium, en détectant les neutrons prompts issus des réactions (γ, n) induites par des photons gamma de basse énergie (figure 2);
 - le dosage du sélénium, du brome, de l'argent, du cadmium ou de l'indium via leurs isomères radioactifs engendrés par photoexcitation nucléaire;

pour lesquels, les photons gamma émis par certains radioéléments (Ex : ^{24}Na et ^{124}Sb permettent de doser respectivement le deutérium et le béryllium, tandis que les cinq éléments suivants sont déjà activables avec du cobalt-60) conviennent, le rayonnement de freinage obtenu en bombardant une cible métallique lourde (Ta, W, Pt, Au, Hg, ...) par des électrons accélérés (figure 3) constitue la source de photons gamma la plus utilisée et aussi la plus appropriée pour entreprendre des analyses au moyen des techniques présentement considérées.

Les générateurs d'électrons sont des Van de Graaff, notamment pour mettre en oeuvre la photoexcitation nucléaire ou pour doser les deux éléments légers précités par observation directe des réactions (γ, n), des bêtatrons, des microtrons et des accélérateurs linéaires. Ces deux derniers étant incontestablement les plus avantageux; ils sont en effet capables de fournir des faisceaux très intenses d'énergie variable entre quelques MeV et plusieurs dizaines de MeV.

..../..

REACTIONS PHOTONUCLEAIRES

Généralités

Parmi les techniques d'analyse par irradiation photonique sommairement passées en revue ci-dessus, la méthode basée sur l'emploi de réactions photonucléaires, en particulier du type (γ, n) , est manifestement la plus utilisée. Elle permet de déterminer un très grand nombre d'éléments en étant spécialement bien appropriée aux dosages du carbone, de l'azote, de l'oxygène et du fluor.

Le rendement d'activation par réactions (γ, n) croit en fonction de l'énergie maximale du faisceau électronique incident, et en général, avec le numéro atomique de l'élément irradié (figure 4). Il en est d'ailleurs de même pour les réactions $(\gamma, 2n)$ ou $(\gamma, 3n)$ [1].

En revanche, pour les réactions caractérisées par l'émission de particules chargées (Ex : (γ, p) ; (γ, α) ; ...), la situation est fondamentalement différente. La barrière de potentiel nucléaire, d'autant plus importante que le numéro atomique des noyaux est élevé, s'opposant à l'éjection des corpuscules chargés de ces derniers, limite évidemment les sections efficaces de telles réactions; l'effet étant surtout apparent et très sensible à partir du calcium. Finalement, ce phénomène présente un côté favorable, en réduisant substantiellement l'influence des réactions nucléaires compétitives sur les éléments de numéros atomiques proches de l'impureté recherchée.

../.

Cas des éléments légers

Le carbone, l'azote, l'oxygène et le fluor sont déterminés au moyen des réactions photonucléaires du tableau III dans lequel se trouvent également les principales réactions nucléaires compétitives susceptibles d'entraîner des interférences à partir d'éléments voisins. Il est clair, vu les valeurs des énergies seuils, qu'il est toujours possible d'éliminer totalement l'influence de ces réactions perturbatrices en choisissant convenablement l'énergie maximale du faisceau gamma.

Les courbes de la figure 5 représentent la variation des limites de détection relatives aux trois premiers éléments ci-dessus, en fonction de l'énergie maximale du faisceau gamma; la croissance régulière du rendement d'activation avec cette dernière est nettement mise en évidence. Cependant, l'importance relative des réactions nucléaires compétitives augmente également avec l'énergie des photons gamma, comme le montre les courbes de la figure 6, donnant les teneurs apparentes en carbone et en azote imputables respectivement aux réactions nucléaires :



D'où l'obligation, pour éviter de telles interférences, de limiter l'énergie maximale du faisceau gamma à une valeur optimum.

En outre, dans certains cas, le matériau analysé peut aussi conduire à des réactions nucléaires compétitives. L'exemple le plus typique à cet égard, étudié dans notre laboratoire, se rapporte aux dosages du carbone, de l'azote et de l'oxygène dans le sodium [2] [3] [4] [5].

..../..

Le tableau IV contient des exemples de réactions nucléaires capables de produire du carbone-11, de l'azote-13 ou de l'oxygène-15 à partir du sodium. Les limites inférieures des énergies seuils attachées à ces réactions montrent, sans ambiguïté, qu'il est possible, dans toutes les circonstances, de s'affranchir totalement de leur incidence parasite, par le choix de l'énergie maximale du faisceau gamma. La figure 7 représente la variation, en fonction de cette dernière, des teneurs apparentes de carbone, d'azote et d'oxygène dans le sodium dues aux réactions nucléaires compétitives mentionnées dans le tableau précité.

Les figures et tableaux ci-dessus établissent nettement l'avantage des photons gamma quant à leur emploi pour déterminer des traces infimes d'éléments légers : à savoir, la latitude, d'éliminer complètement, les interférences d'origines nucléaires provenant des autres impuretés ou des constituants du milieu analysé, en adoptant des conditions d'irradiation optimum.

Evidemment, vu l'existence de la barrière du potentiel des noyaux atomiques, l'importance relative de cette catégorie de réactions nucléaires compétitives, caractérisées par l'émission d'un ou de plusieurs corpuscules chargés, diminue très rapidement au fur et à mesure que les éléments recherchés ou les constituants des matériaux examinés deviennent plus lourds.

APPLICATIONS

Des exemples typiques d'utilisations des méthodes considérées ci-dessus sont rassemblés dans les tableaux V, VI, VII, VIII et IX.

../..

Le premier se rapporte à l'emploi de la photoexcitation nucléaire. Le second est relatif à la mise en oeuvre de techniques reposant sur la détection de neutrons prompts ou retardés. Le troisième contient les teneurs en carbone observées dans des échantillons de sodium, de molybdène et de tungstène analysés respectivement par activation photonucléaire et au moyen de méthodes conventionnelles opérant par combustion. Ces résultats concernent des matériaux industriels n'ayant fait l'objet d'aucun traitement particulier de purification. Ils montrent l'insuffisance, voire l'impuissance, de ces dernières, dès lors qu'il s'agit de déterminer des traces infimes en carbone dans les métaux.

Le tableau VIII renferme d'autres résultats, notamment de dosages du carbone, de l'azote, de l'oxygène et du fluor dans des métaux ou des semiconducteurs, par activation au moyen de photons gamma.

Quant aux analyses multiélémentaires par des voies purement instrumentales, des exemples d'applications récentes sont rassemblés dans le tableau IX. Cette technique a particulièrement été développée par CHATTOPADHYAY et coll [10] [11] [12] au Canada. Ces auteurs ont mis au point un mode opératoire permettant de déterminer une trentaine d'éléments dans des sols, des boues ou des engrais chimiques. Les échantillons, pesant entre 0,5 et 1 gramme, sont irradiés par des faisceaux gamma dont l'énergie maximale est réglée successivement à 15, 20, 22, 35 et 44 MeV. Les durées d'activation s'échelonnent entre 2 minutes et 6 heures. Les radioéléments engendrés à partir de constituants majeurs ou mineurs des produits précités sont identifiés et dénombrés au moyen d'un ensemble de spectrométrie gamma équipé d'un détecteur Ge(Li).

../..

La correspondance entre les énergie maximales d'irradiation mentionnées ci-dessus et les éléments déterminés apparaît au tableau X. Les réactions nucléaires mises en oeuvre à cet effet sont indiquées dans le tableau XI.

Quant aux limites de détection expérimentales, le tableau XII explicite les performances autorisées.

CONCLUSION

En vertu des exemples d'applications exposés, il est clair que les méthodes d'analyses par activation photonique, sommairement présentées ci-dessus, s'avèrent manifestement complémentaires des autres procédés analytiques, qu'ils soient conventionnels ou nucléaires.

En ce qui concerne le dosage des éléments légers, les avantages dominants de ce mode d'activation par rapport aux particules chargées, aussi très performantes à l'égard de ces derniers, sont les suivants :

- les échantillons sont examinés globalement, quelle que soit leur forme géométrique;
- les étalonnages sont simples et directs;
- les interférences par réactions nucléaires compétitives sont éliminables dans tous les cas en choisissant convenablement l'énergie maximale du faisceau gamma.

Quant à la détermination des autres éléments, les divers processus d'activation photonique offrent souvent une alternative fort appréciable pour autoriser des analyses multiélémentaires très sensibles et fiables, par des voies purement instrumentales.

../..

L'analyse par activation photonucléaire apparaît ainsi comme étant une méthode d'investigations analytiques très puissante. Elle est notamment capable d'apporter des solutions originales à de nombreux problèmes de caractérisation physicochimique des matériaux auxquels les laboratoires industriels et de recherche sont souvent confrontés.

En outre, à la lumière des exemples traités ci-dessus, il est prévisible que cette technique est susceptible d'améliorer sensiblement les cadences d'exécution de certaines analyses tout en réduisant substantiellement leur coût, en étant plus simple d'emploi, plus rapide et plus économique que les autres procédés également utilisables a priori.

TABLEAU I

LIMITES DE DETECTION REALISABLES AU MOYEN DES 3 PRINCIPAUX MODES D'ACTIVATION
PAR PHOTONS GAMMA

Processus d'activation	Réactions nucléaires mises en oeuvre	Energie des photons gamma requis (MeV)	Limite de détection (μ g)
Photoexcitation nucléaire	(γ, γ')	1 à 15	0,1 à 10
Réactions photonucléaires	(γ, n) ; (γ, p) ; $(\gamma, 2n)$; ...	15 à 50	0,001 à 1
Photofission	(γ, f)	5 à 10	0,001 à 0,1

TABLEAU II

EXEMPLES D'ELEMENTS DOSABLES VIA DIVERSES REACTIONS NUCLEAIRES ENGENDREES PAR
LES PHOTONS GAMMA

Réaction nucléaire	Eléments déterminables	Technique de mesure
(γ, γ')	$Z > 30$ (Ex: Se, Br, Y, Ag, Cd, In, Er, Hf, Ir, Au...)	Spectrométrie γ
(γ, n)	${}^2\text{H}$, Be C, N, O, F Ti, Ni, Zn, Ga, Sr, Zr, I, Tl, Pb, ..	Détection de neutrons prompts Détection du rayonnement γ d'annihilation des posi- trons émis Spectrométrie γ
(γ, p)	${}^{18}\text{O}$ Mg, Si, Ca,	Détection de neutrons re- tardés Spectrométrie γ
(γ, f)	${}^{232}\text{Th}$, ${}^{235}\text{U}$, ${}^{238}\text{U}$, ${}^{239}\text{Pu}$, ...	Détection de neutrons prompts ou retardés

TABLEAU III

DETERMINATION DU CARBONE, DE L'AZOTE, DE L'OXYGENE ET DU FLUOR, PAR ACTIVATION
AU MOYEN DE PHOTONS GAMMA

Elément dosé	Réaction nucléaire utilisée	Energie seuil (MeV)	Principales réactions nucléaires compétitives	Energie seuil (MeV)
C	$^{12}\text{C}(\gamma, n)^{11}\text{C}$	18,7	$^{14}\text{N}(\gamma, t)^{11}\text{C}$ $^{16}\text{O}(\gamma, \alpha n)^{11}\text{C}$	22,7 26
N	$^{14}\text{N}(\gamma, n)^{13}\text{N}$	10,6	$^{16}\text{O}(\gamma, t)^{13}\text{N}$ $^{19}\text{F}(\gamma, \alpha 2n)^{13}\text{N}$	25 25,4
O	$^{16}\text{O}(\gamma, n)^{15}\text{O}$	15,7	$^{19}\text{F}(\gamma, tn)^{15}\text{O}$ $^{20}\text{Ne}(\gamma, \alpha n)^{15}\text{O}$	27,4 20,4
F	$^{19}\text{F}(\gamma, n)^{18}\text{F}$	10,4	$^{20}\text{Ne}(\gamma, pn)^{18}\text{F}$ $^{23}\text{Na}(\gamma, \alpha n)^{18}\text{F}$	23,3 21

TABLEAU IV

EXEMPLES DE REACTIONS NUCLEAIRES COMPETITIVES POSSIBLES SUR LE SODIUM, POUVANT
ENTRAINER DES INTERFERENCES LORS DE LA DETERMINATION DU CARBONE, DE L'AZOTE
OU DE L'OXYGENE DANS CE METAL ALCALIN, PAR ACTIVATION PHOTONUCLEAIRE

Elément dosé	Réaction nucléaire mise en oeuvre	Energie seuil (MeV)	Réactions nucléaires compétitives possibles à partir du sodium	Energie seuil (MeV)
C	$^{12}\text{C}(\gamma, n)^{11}\text{C}$	18,7	$^{23}\text{Na}(\gamma, X)^{11}\text{C}$ [X: ^{12}B , ^8Li α , 2α tn, ...]	> 34
N	$^{14}\text{N}(\gamma, n)^{13}\text{N}$	10,6	$^{23}\text{Na}(\gamma, Y)^{13}\text{N}$ [Y: ^{10}Be , ^8Li pn, 2α 2n, ..]	> 28
O	$^{16}\text{O}(\gamma, n)^{15}\text{O}$	15,7	$^{23}\text{Na}(\gamma, Z)^{15}\text{O}$ [Z: ^8Li , ^6He pn, α p3n, ...]	> 34

TABLEAU V

EXEMPLES RECENTS D'ANALYSES INSTRUMENTALES REPOSANT SUR L'EMPLOI DE LA PHOTOEXCITATION NUCLEAIRE

Matériaux analysés	Eléments déterminés	Références
Minerais et produits dérivés	Hf, W	[6] [7]
Résidus de la métallurgie des métaux précieux (ciments, cendres, mattes, noirs, scories)	Ag, Au, Ir, Pt, Rh	[8]
Roches et minerais	Ag, Au	[9]
Sols, boues et engrais chimiques	Cd, In, Pb	[10] [11] [12]

TABLEAU VI

EXEMPLES D'ANALYSES REPOSANT SUR LA DETECTION DES NEUTRONS PROMPTS OU RETARDES
ISSUS DES PRODUITS D'ACTIVATION PHOTONUCLEAIRE.

Elément déterminé	Réaction nucléaire utilisée	Technique de mesure mise en oeuvre	Matériaux analysés	Références
^2H	(γ, n)	Détection de neutrons prompts	Cibles utilisées dans les expériences de fusion par laser (D_2 , DT, CD_2 , LiD, LiDT)	[13]
^9Be	id.	id.	Roches, météorites	[14] [15] [16]
^{18}O	(γ, p)	Détection de neutrons retardés	Sang (analyse isotopique de l'oxygène)	[17]
^{232}Th ^{235}U ^{238}U ^{239}Pu	(γ, n) ou (γ, f)	Détection de neutrons prompts ou retardés	Eléments combustibles, solutions de traitement ou résiduaires, etc...	[18]

TABLEAU VII

TENEURS EN CARBONE OBSERVEES DANS DU SODIUM, DU MOLYBDENE
ET DU TUNGSTENE

Métal analysé	Valeurs trouvées ($\mu\text{g.g}^{-1}$)	
	Activation photonucléaire $^{12}\text{C} (\gamma, n) ^{11}\text{C} *$	Méthode de combustion conventionnelle
Na	0,2 à 0,4	6 à 12
Mo	0,1 à 0,2	5 à 18
W	0,01 à 0,06	3 à 10

* -----

Le carbone-11 a été séparé à l'issue des irradiations, par combustion, en opérant de la même manière et selon les mêmes conditions que les méthodes conventionnelles.

TABLEAU VIII

EXEMPLES DE TENEURS EN CARBONE, EN AZOTE, EN OXYGENE ET EN
FLUOR DETERMINEES RECEMMENT DANS DES METAUX OU DES SEMICONDUCTEURS,
PAR ACTIVATION PHOTONUCLEAIRE

Matériau analysé	Eléments dosés	Teneurs observées ($\mu\text{g.g}^{-1}$)		Références
Na	N	0,5	à 1,6	[15]
	O	0,3	à 10	[2]
Al	C	0,41	+ 0,08* (12)	**
	O	0,038	± 0,007 (13)	[19]
	F	0,07	à 0,3	[20]
Si	C	0,01	à 0,06	**
	N	0,3	à 0,5	**
	O	0,07	à 0,15	**
Ni	C	0,2	à 0,5	[21]
	N	1,10	+ 0,07* (11)	**
	O	7,50	+ 0,55* (13)	**
Cu	O	1,06	+ 0,07* (12)	**
	F	0,01	à 0,04	[20]
Ta	O	1,3	+ 0,3* (12)	**
W	O	0,44	à 0,26* (12)	**
Pb	O	0,58	+ 0,08* (12)	**
	F	0,2	à 0,3	[20]
AsGa	C	0,04	+ 0,03* (4)	[22]
	O	0,04	+ 0,01* (10)	id.
InP	C	0,01	à 0,1	[22] [23]
	O	0,05	à 0,3	id.
PbCuTe	O	1,0	+ 0,35* (5)	**
PbSnCd	O	0,54	+ 0,31* (6)	**

* Ecart-type (le nombre de déterminations individuelles correspondant est indiqué entre parenthèses).

** Analyses réalisées dernièrement dans notre laboratoire.

TABLEAU IX

EXEMPLES RECENTS D'ANALYSES MULTIELEMENTAIRES INSTRUMENTALES, PAR ACTIVATION AU MOYEN DE
PHOTONS GAMMA

Matériaux analysés	Eléments déterminés	Références
Cheveux	As, Cd, Pb, Sb, Zn	[24]
Feuilles de tabac et de vignes	As, Br, Ca, Cl, Fe, I, K, Mg, Mn, Na, Ni, Pb, Rb, Sb, Sr, Zn, Zr	[25]
Os, sang, urine	As, Bi, Cd, Ce, Cs, Hg, Mo, Ni, Pb, Rb, Sb, Sr, Tl, Zn, Zr	[26]
Filtres de prélèvements atmosphériques	As, Ca, Ce, Cl, Co, Cr, Fe, I, K, Mg, Mn, Na, Ni, Pb, Rb, Sb, Sr, Ti, Y, Zn, Zr	[26] [27]
Roches	Ba, Ca, Ce, Co, Fe, Mg, Mn, Na, Nb, Ni, Rb, Sr, Ti, Y, Zr	[28]
Sols, boues et engrais chimiques	Ag, As, Ba, Bi, Ca, Cd, Ce, Cl, Co, Cr, Cs, Fe, Hg, In, K, Mg, Mo, Me, Na, Ni, Pb, Rb, Sb, Sc, Se, Si, Sn, Sr, Te, Ti, Tl, V, Zn, Zr	[10] [11] [12]
Verres	As, Ce, Cs, Sb, Sr, Tl, Tu, Zr	[26]
Pièces de monnaies anciennes	Ag, Au, Cu	[29]
Poteries romaines	As, Ba, Ca, Ce, Cr, Cs, Fe, K, Mn, Na, Ni, Rb, Sc, Sr, Ti, Zn, Zr	[30]

TABLEAU X

ELEMENTS RESPECTIVEMENT DETERMINES AUX ENERGIES MAXIMALES
D'IRRADIATION SUCCESSIVEMENT UTILISEES POUR ANALYSER DES
PRELEVEMENTS DE SOLS, DE BOUES ET D'ENGRAIS CHIMIQUES,
PAR DES VOIES PUREMENT INSTRUMENTALES [10] [11] [12]

Energie maximale du faisceau de photons gamma (MeV)	Eléments déterminés
15	Cd, Cs, In, Sb, Tl
20	Ag, As, Ca, Cl, Co, K, Mn, Na, Rb, Se, Si, Sr, Te
22	Mg, Ti, Zr
35	Ba, Ce, Cr, Fe, Hg, Mo, Ni, Pb, Se, Sn, Zn
44	Bi, V

TABLEAU XI

REACTIONS NUCLEAIRES MISES EN OEUVRE POUR ANALYSER LES PRELEVEMENTS
DE SOLS, DE BOUES OU D'ENGRAIS CHIMIQUES DE MANIERE PUREMENT
INSTRUMENTALE, PAR DES IRRADIATIONS SUCCESSIVES A DIFFERENTES
ENERGIES /10/ /11/ /12/

Eléments déterminés	Type de réaction nucléaire utilisée
Cd, In, Pb	(γ , γ')
Ag, As, Ba, Ce, Cl, Co, Cs, Hg, K, Mn, Mo, Na, Ni, Rb, Sb, Sc, Se, Sn, Sr, Te, Tl, Zn, Zr	(γ , n)
Ca, Mg, Si, Ti	(γ , p)
Cr, V	(γ , 2n)
Fe	(γ , pn)
Bi	(γ , 3n)

TABLEAU XII

PERFORMANCES AUTORISEES PAR LA METHODE D'ANALYSE MULTIELEMENTAIRE
 INSTRUMENTALE DES PRELEVEMENTS DE SOLS, DE BOUES ET D'ENGRAIS
 CHIMIQUES, METTANT EN OEUVRE DES IRRADIATIONS SUCCESSIVES A DES
 ENERGIES MAXIMALES DE 15, 20, 22, 35 et 44 Mev $\overline{10}$ $\overline{11}$ $\overline{12}$

Elément	Limite de détection expérimentale ($\mu\text{g.g}^{-1}$)
Ag	0,4
As	0,12
Ba	0,3
Bi	1
Ca	5
Cd	0,08
Ce	0,2
Cl	0,15
Co	3
Cr	1,1
Cs	0,1
Fe	2,5
Hg	0,1
In	0,1
K	2
Mg	2
Mn	1,8
Mo	0,15
Na	1
Ni	0,4
Pb	0,12
Rb	0,5
Sb	0,05
Sc	0,2
Se	0,2
Si	1
Sn	8
Sr	0,025
Te	1
Ti	0,09
Tl	0,15
V	2,5
Zn	6
Zr	0,1

REFERENCES

- [1] T.KATO, Y.OKA, Talanta 19 (1972) 515
- [2] F.NORDMANN, G.TINELLI, Ch. ENGELMANN,
J.Radicanal. Chem. 17 (1973) 255
- [3] F. NORDMANN, G.TINELLI, Ch. ENGELMANN,
Analusis 2 (1973) 96
- [4] F. NORDMANN, G. TINELLI, Ch. ENGELMANN,
Analusis 2 (1974) 739
- [5] P. BOCK, Ch. ENGELMANN, A. HATTERER,
J. Radioanal. Chem. 38 (1977) 97
- [6] S.S. KODIRI I.A. ABRAMS, L.L. PELEKIS, L.P. STARCHIK,
At.Energ. 32 (1972) 428
- [7] S.S. KODIRI, I.A. ABRAMS, L.L. PELEKIS, L.P. STARCHIK,
Zavod. Lab.1 (1973) 39
- [8] Ph. BREBAN, Thèse, Orléans (France), 1977
- [9] S.P. KAPITSA, Yu.T. MARTYNOV, V.V. SULIN, Yu. M. TSIPENYUK,
Isotopenpraxis 12 (1976) 386
- [10] A. CHATTOPADHAY,
Measurement, detection and control of environmental pollutants,
AIEA Vienne (1976) 383
- [11] A. CHATTOPADHAY,
J.Radioanal. Chem. 37 (1977) 785
- [12] A. CHATTOPADHAY, R.E. JERVIS,
Anal. Chem. 46 (1974) 1630
- [13] J.T. CALDWELL, H.F. ATWATER, E.H. FARNUM, R.J. FRIES,
A.K. HYDER,
Nucl. Inst. Meth. 126 (1975) 293
- [14] U. QUANDT, W. HERR,
Nucl. Inst. Meth. 119 (1974) 279
- [15] U. QUANDT, W. HERR,
Radiochem. Radioanal. Letters 20 (1974) 65

../..

- [17] Ch. ENGELMANN, G. FILIPPI, J. GOSSET, F. MOREAU,
J. Radioanal. Chem. 37 (1977) 559
- [18] T. GOZANI, Nucl. Technol. 13 (1972) 8
- [19] Ch. ENGELMANN, J. GOSSET,
Analisis 6 (1978) 306
- [20] Ch. SEGEBADE, Th. DJDZUS,
Radiochem. Radioanal. Letters 16 (1974) 137
- [21] M. FEDOROFF, C. LOOS-NESKOVIC, G. REVEL,
J. Radioanal. Chem. 38 (1977) 107
- [22] G.W. BLACKMORE, J.B. CLEGG, J.S. HISLOP, J.B. MULLIN,
J. Electron. Mat. 5 (1976) 401
- [23] J.S. HISLOP, T.J. WEBBER, D.R. WILLIAMS,
Analyst 98 (1973) 75
- [24] R.E. JERVIS, B. TIEFENBACH, A. CHATTOPADHYAY,
J. Radioanal. Chem. 37 (1977) 751
- [25] N.SATO, T. KATO, N. SUZUKI,
J. Radioanal. Chem. 36 (1977) 221
- [26] J.S. HISLOP, D.R. WILLIAMS,
J. Radioanal. Chem. 16 (1973) 329
- [27] T.KATO, N.SATO, N.SUZUKI,
Talanta 23 (1976) 517
- [28] N. SATO, T. KATO, N. SUZUKI,
Radiochim. Acta 21 (1974) 63
- [29] P. REIMERS, G.J. LUTZ, Ch. SEGEBADE,
J. Radioanal. Chem. 39 (1977) 93
- [30] Ch. SEGEBADE, G.J. LUTZ,
J. Radioanal. Chem. 34 (1976) 345

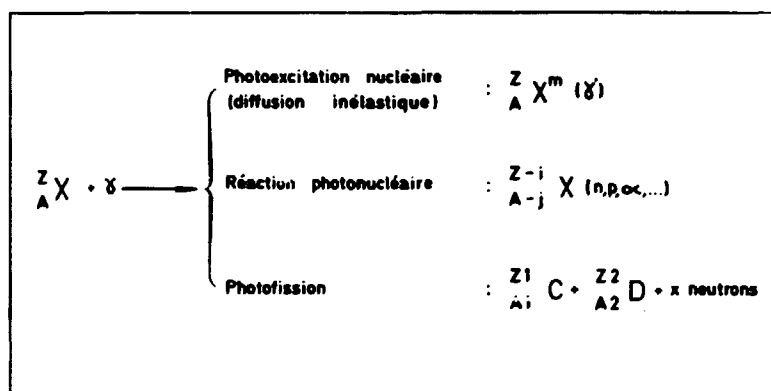


Fig. 1 . Principaux types de réactions nucléaires photoniques utilisées à des fins analytiques.

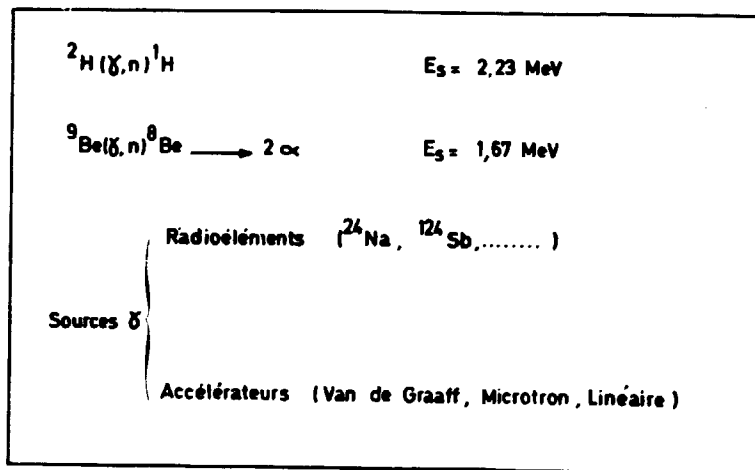


Fig.2. Réactions nucléaires et sources de photons gamma permettant la détermination du deutérium et du béryllium par détection de neutrons prompts .

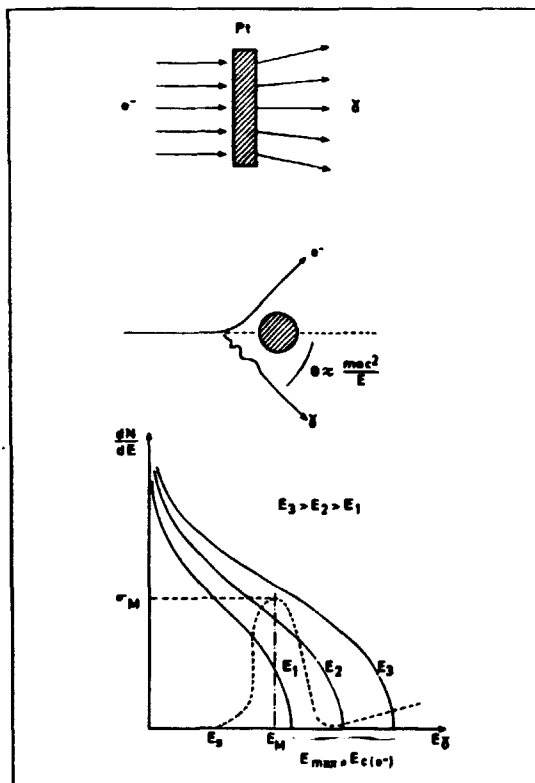


Fig.3. Principe de la production des photons gamma de freinage au moyen d'accélérateurs à électrons. Distribution spectrale des faisceaux gamma en fonction de l'énergie des électrons incidents, forme approximative et position des résonances géantes caractérisant les réactions photonucléaires (E_S : énergie seuil; E_M : énergie correspondant au maximum de la fonction d'excitation).

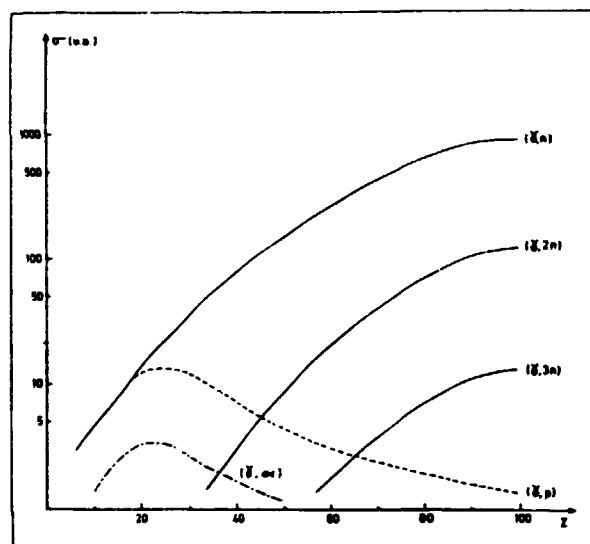


Fig.4. Variation du rendement d'activation des éléments en fonction de leur numéro atomique, pour divers types de réactions nucléaires.

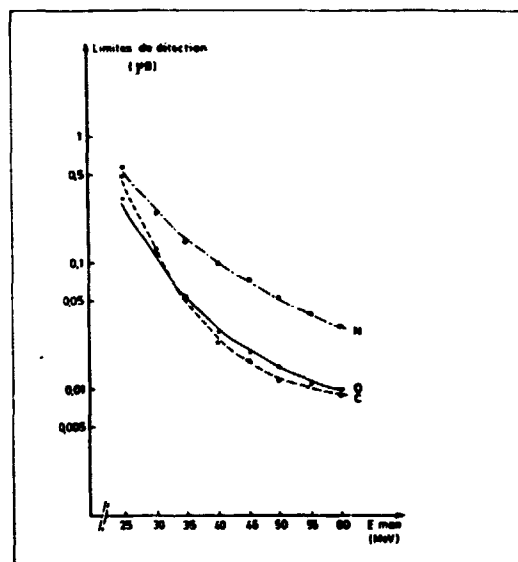


Fig.5. Variation des limites de détection du carbone, de l'azote et de l'oxygène en fonction de l'énergie maximale du faisceau gamma.

($I_m = 100 \mu A$; $t_{\text{irrad.}}$ = une période du radioélément mesuré)

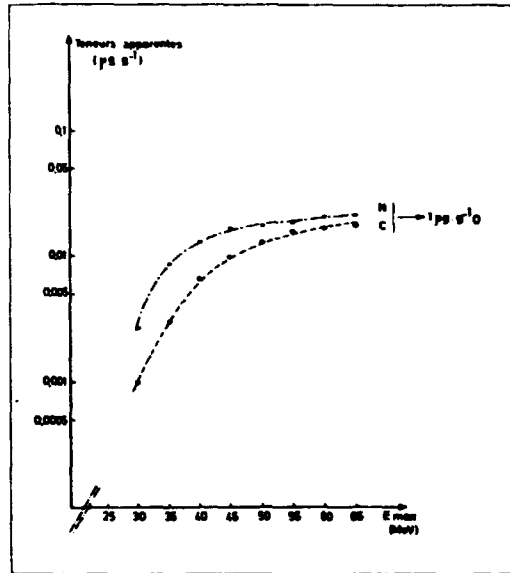


Fig.6. Teneurs apparentes en carbone et en azote dans un échantillon contenant $1 \mu\text{g.g}^{-1}$ d'oxygène, imputables aux réactions nucléaires compétitives :

$^{16}\text{O} (\gamma, \alpha n) ^{11}\text{C}$ et $^{16}\text{O} (\gamma, t) ^{13}\text{N}$,
 en fonction de l'énergie maximale du faisceau gamma.

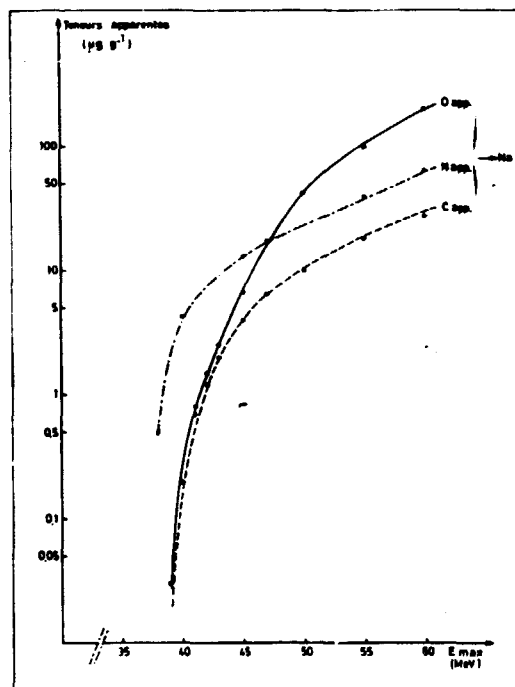


Fig.7. Teneurs apparentes en carbone, en azote et en oxygène dans un échantillon de sodium, imputables aux réactions nucléaires compétitives du tableau IV, en fonction de l'énergie maximale des photons gamma de freinage.

