

Mesures spectroscopiques des radiations X de radioéléments

Autor(en): **Marmier, P. / Blaser, J.-P. / Preiswerk, P.**

Objektyp: **Article**

Zeitschrift: **Helvetica Physica Acta**

Band (Jahr): **22 (1949)**

Heft II

PDF erstellt am: **13.09.2024**

Persistenter Link: <https://doi.org/10.5169/seals-112000>

Nutzungsbedingungen

Die ETH-Bibliothek ist Anbieterin der digitalisierten Zeitschriften. Sie besitzt keine Urheberrechte an den Inhalten der Zeitschriften. Die Rechte liegen in der Regel bei den Herausgebern.

Die auf der Plattform e-periodica veröffentlichten Dokumente stehen für nicht-kommerzielle Zwecke in Lehre und Forschung sowie für die private Nutzung frei zur Verfügung. Einzelne Dateien oder Ausdrucke aus diesem Angebot können zusammen mit diesen Nutzungsbedingungen und den korrekten Herkunftsbezeichnungen weitergegeben werden.

Das Veröffentlichen von Bildern in Print- und Online-Publikationen ist nur mit vorheriger Genehmigung der Rechteinhaber erlaubt. Die systematische Speicherung von Teilen des elektronischen Angebots auf anderen Servern bedarf ebenfalls des schriftlichen Einverständnisses der Rechteinhaber.

Haftungsausschluss

Alle Angaben erfolgen ohne Gewähr für Vollständigkeit oder Richtigkeit. Es wird keine Haftung übernommen für Schäden durch die Verwendung von Informationen aus diesem Online-Angebot oder durch das Fehlen von Informationen. Dies gilt auch für Inhalte Dritter, die über dieses Angebot zugänglich sind.

Mesures spectroscopiques des radiations X de radioéléments

par P. Marmier, J.-P. Blaser, P. Preiswerk et P. Scherrer.

(27. I. 1949.)

Summary. An X-ray curved-crystal spectrometer of the Cauchois type for use in nuclear research, using a film or a Geiger counter as detector, has been designed. A detailed investigation of intensity problems is given in the case where strong perturbing radiation is present. The X rays of 50 min. Tc-isomer have been measured and the wavelengths of the K lines determined.

L'émission d'un rayonnement X caractéristique se produit au cours d'un très grand nombre de désintégrations. En particulier, la capture K donne lieu à l'ionisation de la couche K et à l'émission du rayonnement X caractéristique de l'élément final de la désintégration. De même, chaque fois qu'une radiation du noyau est convertie dans le cortège électronique, des radiations caractéristiques des couches K, L, M... sont émises. Les énergies ne sont cependant pas les mêmes si le rayon provient du noyau primaire ou du noyau final de la désintégration, ce qui permet de l'attribuer à l'un ou à l'autre.

Très souvent, la détection de ces radiations peut se faire au moyen de mesures d'absorption, et, si cela est possible, on utilise des absorbants critiques. Ces mesures ont l'avantage de leur simplicité et permettent d'utiliser de grands angles solides, c'est-à-dire de petites intensités. Elles deviennent cependant peu exactes, ou ne donnent aucun résultat, lorsqu'on est en présence d'un fort bruit de fond dû aux autres rayonnements de la préparation active ou que la radiation X est composée. Dans ces conditions, une mesure spectroscopique est nécessaire. Toutefois, les radioéléments dont on peut disposer à partir d'un cyclotron sont des sources d'une intensité 10^4 — 10^5 fois inférieure à celle des tubes à rayons X et les temps d'exposition sont liés à la période de l'isotope étudié. Il n'est donc guère possible d'utiliser des spectrographes classiques dont les angles solides sont très petits et dont la luminosité est fonction du pouvoir séparateur.

Le montage bien connu de CAUCHOIS¹⁾ permet d'agrandir considérablement l'angle solide utilisable, sans porter atteinte au pouvoir

séparateur. En plus de sa grande luminosité, il remplit spécialement bien deux conditions imposées par la physique nucléaire: sources étendues et présence de rayonnements perturbateurs. La méthode de Cauchois a déjà été employée avec succès par plusieurs auteurs dont: DU MOND²⁾, EDWARDS et al.³⁾. Rappelons-en brièvement le principe:

Un cristal est courbé selon une portion de cylindre de rayon R . La source est placée du côté convexe du cristal. Les rayons X réfléchis sur les plans réticulaires internes du cristal sont focalisés, du

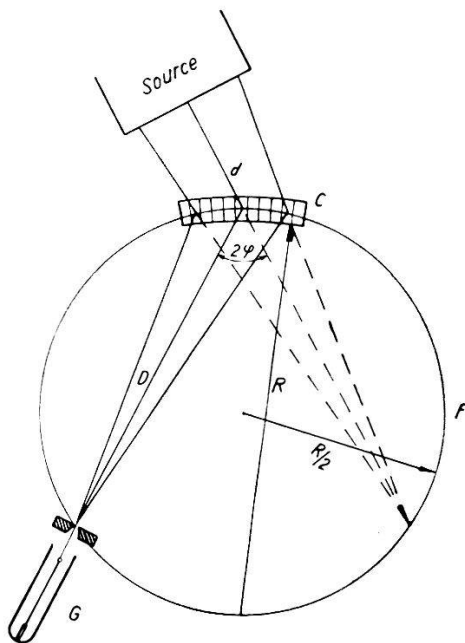


Fig. 1.

côté concave, sur un cercle de rayon $R/2$, tangent au sommet du cristal (fig. 1). Sur ce cercle, on dispose un film courbé convenablement, ou on déplace la fente d'un compteur de GEIGER. On obtient une raie ou un maximum d'intensité pour un angle de BRAGG φ correspondant à la longueur d'onde mesurée et à la constante réticulaire du cristal. Aucune fente n'étant placée entre la source et le cristal, l'ouverture utile atteint plusieurs degrés.

Choix des Dimensions.

Comme nous l'avons déjà dit, la source de rayons X dont on désire mesurer l'énergie est en même temps une source de radiations perturbatrices. Il est donc important de savoir comment l'intensité utile (signal S , c'est-à-dire nombre de coups ou noircissements) et l'intensité perturbatrice (bruit N) dépendent des dimensions générales de l'appareil.

Pour calculer le signal S , considérons un élément de la source. S sera proportionnel à l'angle spatial dans lequel les radiations peuvent être émises de façon à pouvoir atteindre le récepteur après réflexion dans le cristal. L'ouverture verticale ζ (parallèle aux génératrices du cylindre de courbure) est égale à :

$$\zeta = \frac{h}{D+d}$$

où h désigne la hauteur de la fente du compteur, D la distance cristal-compteur et d la distance source-cristal. L'ouverture horizontale ε' dépend de l'angle ε de la mosaïque du cristal, qui exprime l'écart maximum entre les plans réticulaires réels et ceux du cristal idéal. Il est facile de se rendre compte que

$$\varepsilon' = \varepsilon \cdot \frac{D}{D+d}.$$

Le signal produit par une source d'intensité 1 pendant un temps t sera donc :

$$S = \frac{h D \alpha t}{(d+D)^2} \quad (1)$$

où α représente le pouvoir de réflexion du cristal.

Pour obtenir les meilleures conditions de mesure, il est nécessaire de blinder la source de manière que seul le cristal soit exposé à son rayonnement. Le bruit N proviendra donc du rayonnement secondaire diffusé par le cristal. L'ouverture F de ce dernier étant fixée par la dimension de la source ainsi que par la nécessité de balayer, au cours d'une mesure, un certain domaine d'énergie, nous la considérons dans ce qui suit comme constante.

Dans ces conditions, le cristal vu du récepteur, représente une source de rayons diffusés d'intensité proportionnelle à l'éclairement du cristal, c'est-à-dire variant avec l'inverse de d^2 . Si l'on désigne par δ la largeur de la fente du compteur, largeur égale à celle des raies sur le cercle de focalisation, et par σ un coefficient de diffusion du cristal pour les rayonnements perturbateurs, le bruit N sera :

$$N = \frac{h F \delta \sigma \cdot t}{d^2 D^2}. \quad (2)$$

Pour obtenir le meilleur contraste entre le fond continu et la ligne mesurée, on a à choisir le rapport S/N maximum. Celui-ci est :

$$\frac{S}{N} = \frac{d^2 D^3}{(d+D)^2} \cdot \frac{\alpha}{F \delta \sigma} \quad (3)$$

ce qui montre que ce maximum est atteint pour des dimensions

infiniment grandes. Toutefois, il faudrait aussi un temps infini pour la mesure. Le temps de mesure étant limité en pratique, et le but à atteindre, de déterminer avec la plus grande précision possible la présence (c'est-à-dire l'intensité) d'une ligne, il faudra rechercher le minimum de l'erreur relative $\delta S/S$, due à la statistique. Le signal S ne peut pas être mesuré directement, mais seulement par la relation

$$S = (S + N) - N.$$

L'erreur δS se déduit des erreurs sur $S + N$ et N d'après :

$$\delta S = \sqrt{\{\delta(S + N)\}^2 + (\delta N)^2}$$

En introduisant les valeurs de S et de N données par (1) et (2) on trouve :

$$\frac{\delta S}{S} = \frac{1}{\sqrt{h \alpha t}} \sqrt{\frac{(d + D)^2}{D} \left\{ 1 + \frac{2 F \delta \sigma}{\alpha} \cdot \frac{(d + D)^2}{d^2 D^3} \right\}}. \quad (4)$$

Cette expression permet de calculer la dimension optimum du spectrographe en cherchant le D rendant $\delta S/S$ minimum. Celui-ci devient :

$$D_{\text{opt}} = 4 \cdot \sqrt[3]{\delta F \frac{\sigma}{\alpha}}$$

Les valeurs de α et de σ sont difficiles à estimer et varient énormément d'une source à l'autre. Une estimation grossière donne pour D (c'est-à-dire pour R) une valeur de plusieurs dizaines de cm. Nous avons choisi une valeur de R de 33 cm donnant, avec un cristal de constante réticulaire inférieure à 5 Å, un pouvoir de résolution suffisant pour permettre de séparer les lignes K de tous les éléments. Une fois qu'on dispose d'un spectrographe donné, il s'impose de savoir à quelle distance du cristal la source doit être placée, de façon à obtenir la meilleure statistique du signal S . En cherchant dans (4) le rapport D/d rendant, indépendamment de la valeur de $F \delta \sigma/\alpha$, $\delta S/S$ minimum, on trouve : $D = 3 d$.

Réalisation de l'appareil.

Sur la fig. 2 on aperçoit en C le porte-cristal, en F le cercle de focalisation. Le compteur de GEIGER G est constamment orienté vers le cristal par la tige directrice T . Le cercle de focalisation et le cristal peuvent tourner autour d'un axe vertical passant par le sommet du cristal. En L se trouve une lunette servant à orienter le cercle de focalisation et le cristal par rapport à la source, de manière à l'amener dans l'angle d'incidence de BRAGG.

Lors de mesures avec le compteur, on maintient la tige directrice T fixe dans l'espace. A un mouvement de la vis micrométrique entraînant le compteur correspond alors une rotation du cristal et du cercle de focalisation et une translation du compteur le long de T . L'avantage de ce procédé est de permettre de disposer la source, le compteur et les blindages respectifs de manière fixe. En P est disposée la cassette courbant le film suivant le cercle de focalisation.

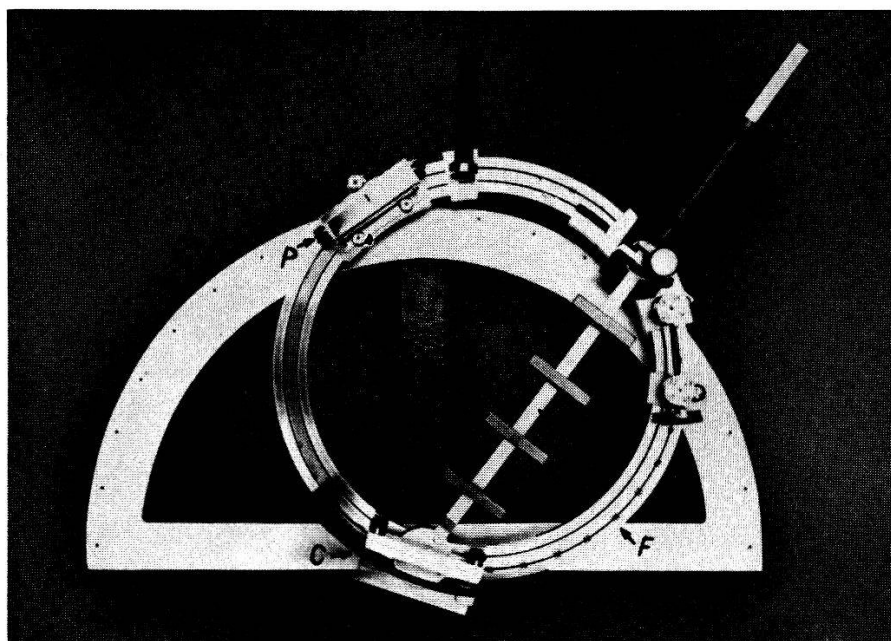


Fig. 2.

Choix des cristaux et mise au point.

Le nombre des cristaux pouvant être courbés est assez restreint. Nous avons fait des essais avec le sel gemme, le quartz et la muscovite. Comme, le plus souvent, la source radioactive est une target de cyclotron présentant une activité répartie sur 1 cm environ, le cristal doit avoir une surface utile de 1 à 3 cm². Le sel gemme ne présente pas une courbure régulière (glissement des plans réticulaires les uns sur les autres) et donne par conséquent des lignes mal définies et faibles. Nous n'avons employé le quartz que sous de faibles épaisseurs et pour des longueurs d'onde supérieures à 1,2 Å. Pour des longueurs d'ondes inférieures, nous avons adopté la muscovite dont nous employons la constante réticulaire de 2,5 Å. Nous choisissons habituellement les plans inclinés de 10° par rapport à la normale aux plans de clivage. L'orientation du cristal dans son support se fait, en première approximation, par rapport à la figure de choc et aux axes optiques. Le reste du réglage se fait dans l'appareil lui-même, au moyen de rayons X. Un petit nombre de spé-

cimens seulement donnent, à épaisseur égale, des intensités réfléchies utilisables pour des sources radioactives. L'épaisseur du cristal adaptée au domaine d'énergie considéré doit être déterminée expérimentalement. Pour des énergies de l'ordre de 25 keV elle est de 0,4 mm.

De par ses défauts naturels, ainsi que pour des raisons mécaniques, le cristal courbé ne forme jamais une surface cylindrique géométriquement parfaite et son rayon de courbure ne correspond pas exactement à celui des joues entre lesquelles il est fixé. Pour obtenir un bon pouvoir de résolution, il est indispensable que le récepteur ne s'écarte du cercle ayant comme diamètre le rayon de courbure moyen du cristal et tangent au centre de ce dernier, que de quelques millièmes de R au plus. Une variation de la méthode de FOUCAULT servant à contrôler la perfection des lentilles et des miroirs a été utilisée pour ce réglage. On place sur le cercle de focalisation une source de lumière ponctuelle et intercepte au moyen d'une lame de rasoir l'image filiforme réfléchie par la surface concave du cristal. Dans une lunette placée derrière la lame, on aperçoit un relief de la surface du cristal. Si la lame se trouve au foyer réel de la portion du cristal considérée, celle-ci apparaît plate. Ceci permet de mesurer avec une haute précision la courbure locale de chaque zone du cristal, et d'effectuer les réglages nécessaires.

Méthode de mesure.

L'intensité nécessaire à une mesure varie beaucoup suivant la région d'énergie étudiée, puisque la sensibilité du compteur (ou celle du film) en dépend, de même que le pouvoir de réflexion du cristal. Il est en général possible d'obtenir des photographies et des mesures au compteur satisfaisantes à partir de quelques millicuries en rayonnement X. Pour les périodes courtes, des irradiations répétées seront nécessaires pour obtenir un noircissement suffisant. Il faut cependant ajouter que l'enregistrement au moyen du compteur n'est pas équivalent à celui qu'on obtient par le film. La photographie a l'avantage d'intégrer l'intensité au cours du temps (longues périodes), tandis que le compteur permet de mesurer la période correspondant à une ligne. Lorsqu'à côté du rayonnement X, la source émet des positrons, on peut réduire considérablement le bruit de fond dû à la radiation d'annihilation provenant du cristal, en disposant devant la source un filtre de Beryllium (quelques millimètres), qui laisse passer, presque sans les absorber, les rayons X. Un second filtre de Be, placé directement devant le film, arrête les électrons secondaires.

Le compteur.

Le compteur doit présenter une sensibilité aussi grande que possible dans un domaine d'énergie allant jusqu'à 100 keV environ. Afin d'obtenir un haut pourcentage d'absorption dans le gaz du compteur, on est obligé de recourir à des gaz de remplissage lourds (Kr ou Xe), et à des pressions aussi élevées que possible. Dans ces conditions, l'auto-extinction de la décharge devient critique avec les adjonctions organiques usuelles. De bons résultats ont été obtenus avec du Krypton à 40 cm Hg additionné de 7 à 10 mm d'acétate d'amyle, de *n*-pentane, de chlorure d'éthyle, de bromure de méthyle ou, tout spécialement, de bromure d'éthyle. Avec ce dernier gaz,

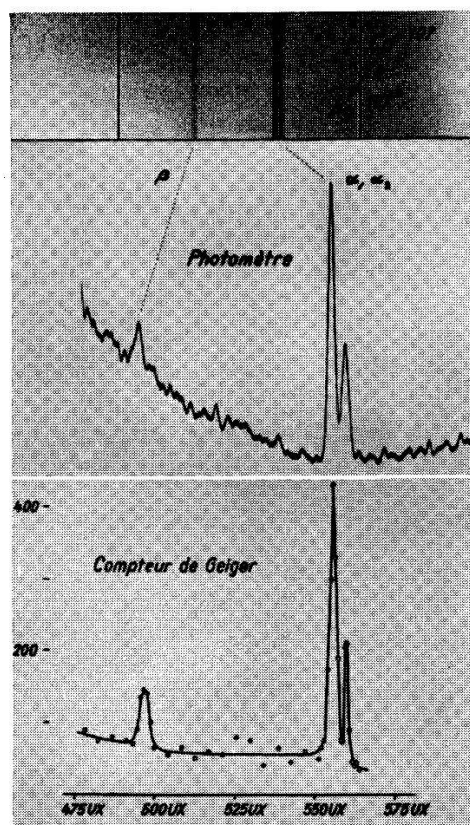


Fig. 3.

des plateaux d'une longueur de 300 V inclinés de 3 à 5% par 100 V sont obtenus avec une tension de service d'environ 1500 V. Les compteurs sont en verre, munis d'une mince fenêtre frontale (2 mg/cm²) de mica. Celle-ci est collée au moyen d'Araldite (Ciba). Le fil est en tungstène poli électrolytiquement et a un diamètre de 0,3 à 0,4 mm. Ces compteurs peuvent enregistrer plus de 10⁸ coups sans variation sensible des caractéristiques.

Mesure du Cd^{107} .

La désintégration du Cd^{107} (6,7 h) fournit un exemple particulièrement favorable à une mesure de contrôle. En effet, environ les deux tiers du rayonnement total sont concentrés dans les lignes X de l'argent, le reste étant constitué essentiellement par des électrons de faible énergie. Comme source, on emploie directement la target d'Ag après son irradiation dans le cyclotron (6,8 MeV). Après 4 h de bombardement, on obtient une activité, en rayons X, d'environ 10 millicuries. La fig. 3 montre les résultats. Au maximum de la ligne $K\alpha_1$ la mesure au compteur permettait d'enregistrer environ 500 coups à la minute avec une fente correspondant à 1,1 UX. La photographie a été exposée pendant deux périodes. Pour augmenter le noircissement, une pellicule renforçatrice a été placée derrière le film, ce qui produit un certain élargissement des lignes. On voit que dans le cas du Cd, où la période est suffisamment longue et le rayonnement perturbateur faible, compteur et film donnent des résultats concordant au point de vue de l'intensité et du pouvoir séparateur.

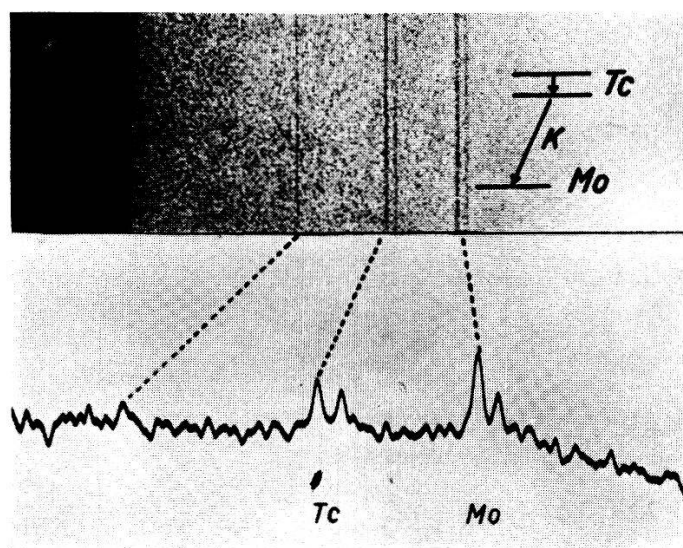


Fig. 4.

Mesure du Tc (élément 43).

Un isotope du Tc, obtenu par irradiation du Mo avec des protons, montre au spectrographe semi-circulaire β une ligne de 33,4 keV ayant une période d'environ 50 min.⁴). Une mesure effectuée au moyen du spectrographe de CAUCHOIS (fig. 4) montre les raies caractéristiques du Tc et du Mo. Ceci a permis de conclure à la présence d'un état isomérique du Tc. Le bruit de fond dû à l'intense rayonnement de positrons ne permet l'enregistrement photographique des lignes que grâce aux filtres de Be. Comme on

le voit sur la figure, le film est complètement noirci sur sa partie gauche. Il ne s'agit pas là d'un rayon direct, mais uniquement d'un rayonnement secondaire passant à côté du Be. Comme la période est relativement courte, une exposition ne suffit pas pour obtenir des lignes bien noircies. Nous avons donc fait 6 irradiations et 6 expositions dans le spectrographe, en prenant chaque fois une target inactive, de manière à éviter l'influence des longues périodes.

Les longueurs d'onde des raies K du Tc ont été mesurées par BURKHART, PEED et SAUNDERS⁵⁾ qui ont excité, dans un tube à rayons X 1,5 mg de Tc, extrait de la pile de CLINTON. Nous en avons fait une nouvelle détermination qui concorde, dans les limites des erreurs possibles, avec celle de ces auteurs. Nous avons calculé ces longueurs d'onde au moyen de la formule de MOSELEY, avec un coefficient d'écran interpolé entre les 8 éléments voisins du Tc. Les résultats sont les suivants :

	calculé	mesuré
$K \alpha_2$	677,91	677,9 UX
$K \alpha_1$	673,57	673,4
$K \beta_1$	600,1	600

Littérature.

- 1) Y. CAUCHOIS, J. de phys. et rad. **3**, 320 (1932). J. de phys. et rad. **4**, 61 (1933).
- 2) J. W. DUMOND and H. A. KIRKPATRICK, Phys. Rev. **52**, 419 (1937).
J. W. DUMOND, Rev. Sci. Inst. **18**, 626 (1947).
- 3) J. E. EDWARDS, M. L. POOL and F. C. BLAKE, Phys. Rev. **67**, 150 (1945).
- 4) O. HUBER, P. MARMIER, H. MEDICUS, P. PREISWERK and R. STEFFEN, Phys. Rev. **73**, 1208 (1948).
- 5) L. E. BURKHART, W. F. PEED and B. G. SAUNDERS, Phys. Rev. **73**, 347 (1947).