

Barbours }
26, rue du Lombard } Liste des lots

Dosage de radioéléments par la distribution des intervalles entre désintégrations. Application au RdTh.

D. HIRSCHBERG

Laboratoire de Physique Nucléaire - Université Libre de Bruxelles

(ricevuto il 17 Agosto 1954)

Résumé. — On compte les couples de désintégrations successives $Tn \xrightarrow{\alpha} ThA \xrightarrow{\alpha}$. Le détecteur utilisé est un compteur proportionnel. Un circuit spécial sélectionne les intervalles inférieurs à un temps donné. Le choix du temps optimum est discuté. La plus petite quantité de RdTh mesurable par la méthode décrite est celle en équilibre avec environ $3 \cdot 10^{-9}$ g de Thorium. Le rapport admissible entre les activités en α et en couples $Tn \xrightarrow{\alpha} ThA \xrightarrow{\alpha}$ est examiné.

Introduction.

Lorsqu'une source contient des radioéléments en filiation, les désintégrations observées ne sont pas statistiquement indépendantes. Si le noyau formé par une de ces désintégrations est lui-même instable, sa désintégration sera observée au cours de la même mesure, avec une probabilité d'autant plus grande que sa vie est courte par rapport au temps de la mesure. Dans l'émulsion photographique, cette corrélation se présente sous l'aspect bien connu d'étoiles dues aux désintégrations successives d'un même noyau. Dans le présent travail, nous décrivons une méthode de mesure des radioéléments naturels basée sur la corrélation dans le temps des désintégrations α .

Le problème particulier qui nous occupe est la mesure de très faibles activités α des isotopes du Th présents dans les sédiments océaniques. Ce problème a déjà été résolu par la méthode photographique ^(1,2). Cette méthode présente des inconvénients d'ordre pratique quand il faut l'appliquer à de longues séries de mesures. L'observation microscopique est laborieuse et les solutions

⁽¹⁾ N. ISAAC et E. PICCIOTTO: *Nature*, **171**, 742 (1953).

⁽²⁾ E. PICCIOTTO et S. WILGAIN: *Nature*, **173**, 632 (1954).

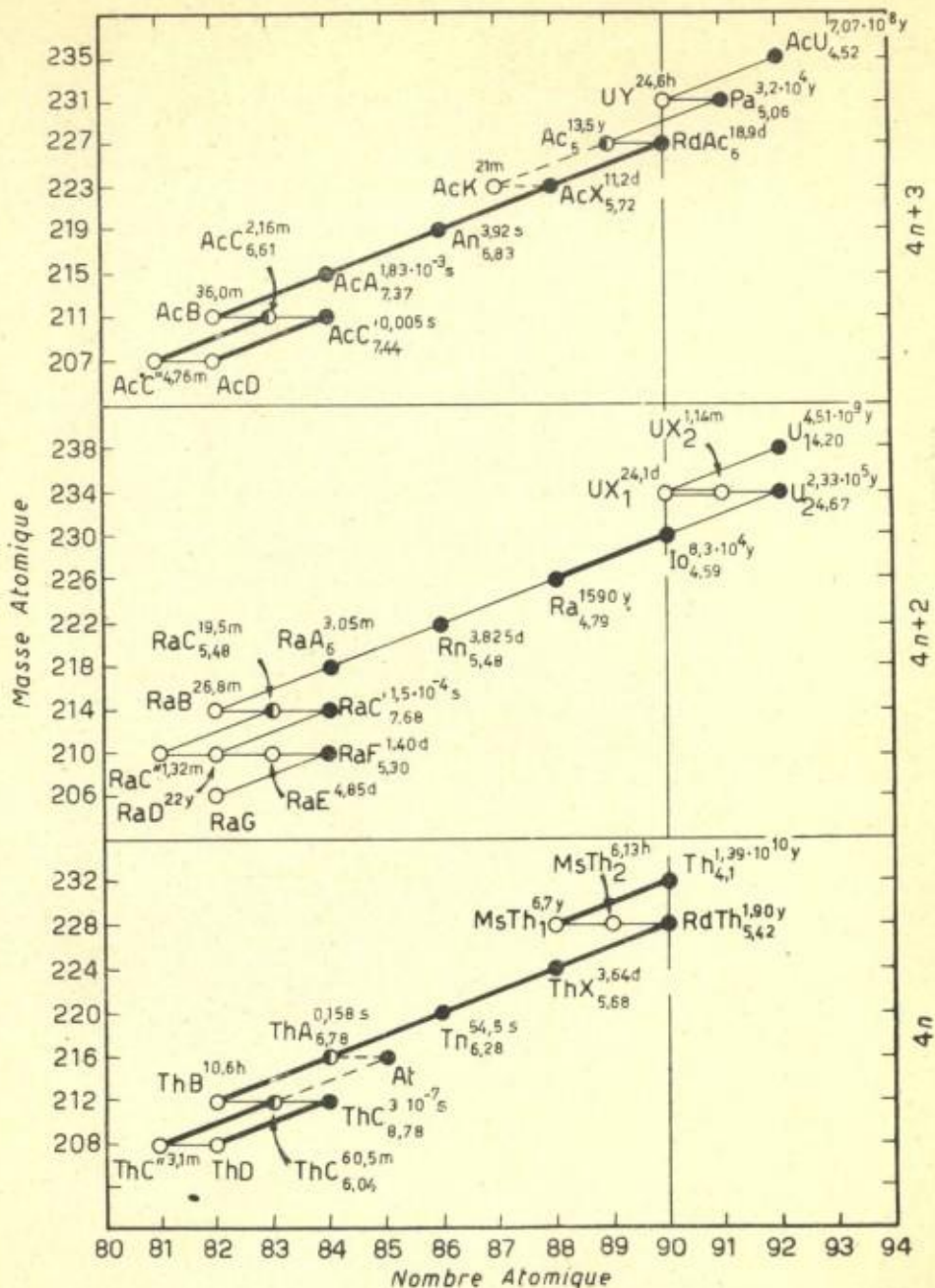


Fig. 1.

introduites dans l'émulsion doivent répondre à des conditions physico-chimiques assez strictes qui compliquent la partie chimique du travail. D'autre part, notre méthode permet de discriminer plus aisément le $RdTh$ du $RdAc$.

Principe.

La fig. 1 représente les trois familles radioactives naturelles. Les isotopes du Th se trouvent sur la droite $Z = 90$. Le dosage direct porte sur le RdTh et le RdAc; la teneur en ^{232}Th peut être déduite de celle en RdTh s'il y a équilibre radioactif de ces deux isotopes; on trouve la teneur en I_0 par différence.

La mesure se fait un certain temps après la séparation chimique du Th, quand les descendants du RdTh et du RdAc ont recru en quantité suffisante; on peut éventuellement attendre l'équilibre, atteint au bout de quelques semaines. On observe les désintégrations renforcées sur la fig. 1.

La meilleure estimation des quantités de RdTh et RdAc est en principe celle qui résulte d'une analyse de la fonction d'auto-corrélation de la distribution dans le temps des α observés.

En pratique, on peut souvent se contenter d'une analyse plus simple. Les couples de désintégrations α successives, dont l'intervalle moyen est le plus court sont $\text{Tn} \xrightarrow{\alpha} \text{ThA} \xrightarrow{\alpha} (0,23 \text{ s})$ pour les descendants du RdTh et $\text{An} \xrightarrow{\alpha} \text{AcA} \xrightarrow{\alpha} (2,6 \cdot 10^{-3} \text{ s})$ pour les descendants du RdAc. Connaissant le rendement du comptage et le temps écoulé depuis la séparation chimique des isotopes du Th, on peut calculer à partir du nombre de ces couples les teneurs en RdTh et RdAc.

Outre ces couples « réels », on observera un certain nombre de couples « fortuits », dus à des désintégrations rapprochées de deux noyaux distincts. La correction peut être estimée en analysant la distribution des intervalles. Mais quand la correction n'est pas excessive, on peut se contenter d'une analyse encore plus simple, faisant intervenir le nombre total d' α observés et le nombre d'intervalles inférieurs à un temps τ convenablement sélectionné. On choisit ce temps de manière à rendre minimum l'erreur relative sur le nombre de couples réels (voir Appendice).

Si l'activité totale de la source est telle que l'intervalle moyen entre deux désintégrations indépendantes est du même ordre de grandeur que l'intervalle moyen du couple réel, cette analyse devient inefficace.

Compteur.

Pour discriminer entre particules α et β , nous avons utilisé comme détecteur, un compteur proportionnel sans fenêtre à circulation d'Argon (fig. 2) ⁽²⁾.

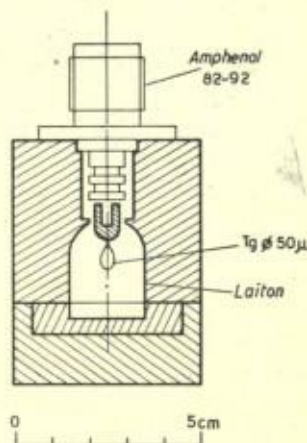


Fig. 2.

⁽²⁾ D. TAYLOR: *Nucleonics*, 11, 3, 40 (1953).

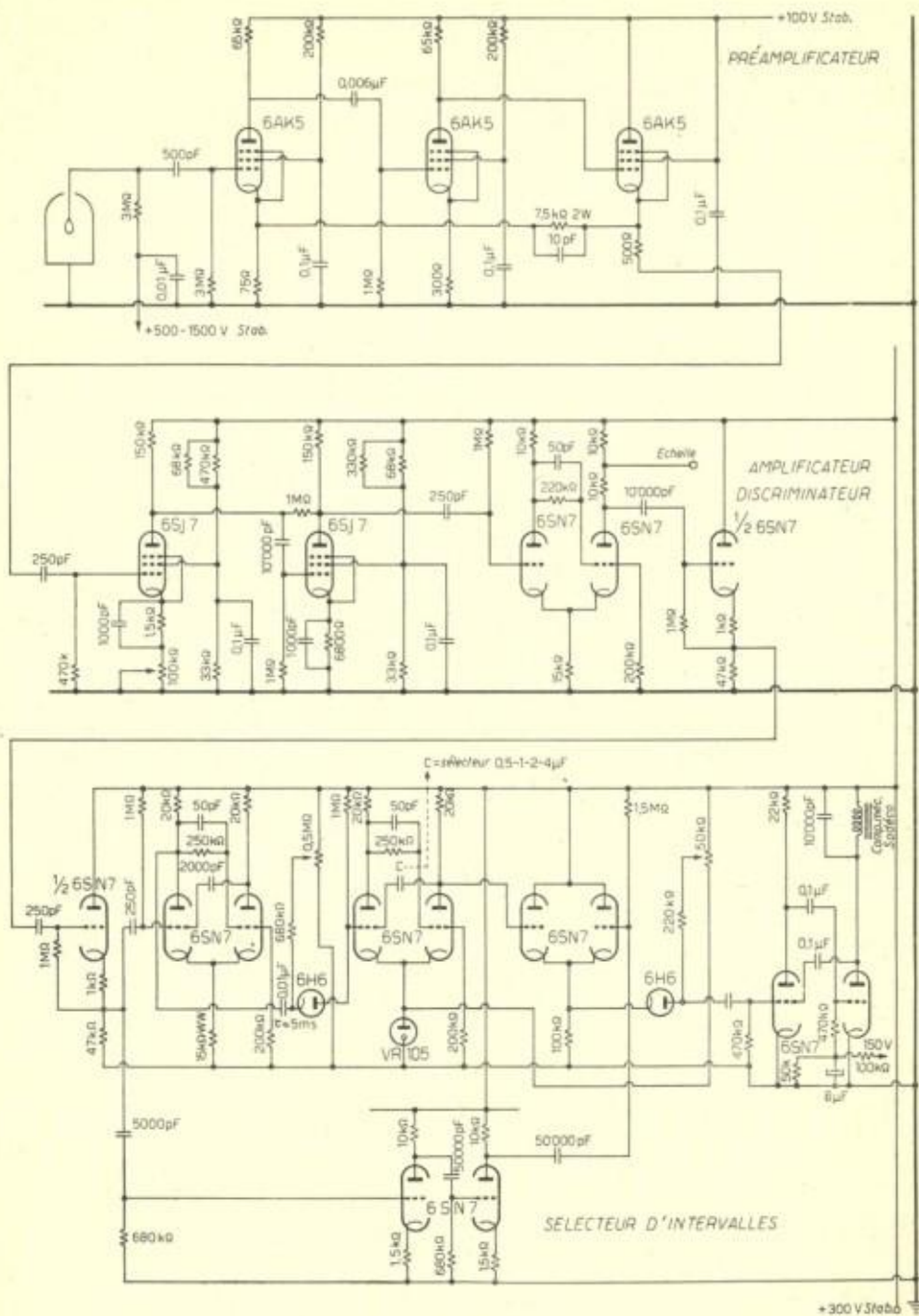


Fig. 3.

Les dimensions résultent d'un compromis entre la nécessité d'un background faible (réduction de la surface) et d'une source suffisamment étendue. Il est important d'avoir un rendement élevé: la probabilité d'observer une désintégration α est égale au rendement, celle d'observer un couple est égale au carré du rendement. Pour faciliter la préparation des sources, nous avons travaillé en géométrie de 2π . Dans ces conditions on observe 50% des α et 25% des couples Tn-ThA émis par la source; dans le cas de Th en équilibre avec ses descendants, on observe 1 couple pour 12 α .

Circuits.

Nous décrivons uniquement les circuits pour la mesure du RdTh. La mesure du RdAc sera traitée dans un autre travail. La fig. 3 montre le schéma d'ensemble des circuits.

Les impulsions du compteur sont amplifiées par un préamplificateur du type 100 (4) et par un amplificateur-discriminateur classique. Les alimentations haute tension et basse tension des circuits sont stabilisées. La haute tension du compteur et le gain de l'amplificateur sont ajustés de façon à rendre l'appareil insensible aux β . Après amplification, les impulsions sont comptées par une échelle (activité totale); elles sont d'autre part injectées dans un ensemble à coïncidences retardées qui n'enregistre que les couples d' α séparés par un intervalle inférieur à un temps τ , choisi d'après les conditions expérimentales (voir Appendice). La fig. 4 représente le schéma de principe de ce circuit.

Chaque signal α , d'une part attaque après amplification l'une des entrées du circuit à coïncidences, d'autre part déclenche après un retard τ' une « porte » de durée τ appliquée à l'autre entrée du même circuit dont les coïncidences sont comptées. Le retard $\tau' \ll \tau$ permet d'éviter que toute impulsion α ne donne lieu à une coïncidence avec elle-même. Par un choix convenable de τ' , on peut éliminer efficacement le couple An-AcA, tout en ne perdant qu'un faible pourcentage, connu, de RdTh. Comme il est facile de réétalonner τ et que $\tau' \ll \tau$, une très bonne stabilité de longue durée n'est pas obligatoire. Notre

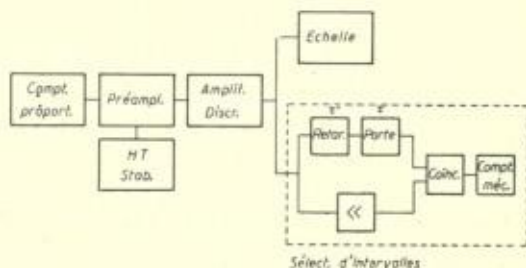


Fig. 4.

(4) W. C. ELMORE and M. SANDS: *Electronics* (New York, 1949), p. 166.

circuit utilise deux « flip flop » en cascade. La mesure de τ se fait à l'aide d'un générateur d'impulsions dont la fréquence de répétition est variable. Quand l'intervalle entre les impulsions est inférieur à τ , aucun couple n'est compté; quand il devient égal à τ , la fréquence des couples devient brusquement égale à la moitié de la fréquence des impulsions.

Contrôles expérimentaux.

Les mesures ont été faites à 1500 V, le gain fixant le niveau de discrimination à 0,5 V. Le plateau du compteur, relevé avec une petite source de Po au centre du tiroir a, entre 900 et 1250 V, une pente inférieure à 2% aux 100 V. A 1150 V, le comptage diminue de moins de 3% quand on déplace la source dans un rectangle dont les côtes ont 0,5 cm parallèlement et 1,5 cm perpendiculairement au plan de la boucle. Le rendement mesuré à l'aide d'une source mince d'oxyde d'urane sur support de quartz est:

$$\eta = 0,505 \pm 0,023 .$$

Une source obtenue en évaporant sur un disque de quartz un volume de solution qui contient $1,55 \cdot 10^{-6}$ g de Th en équilibre avec ses descendants (*), donne les résultats suivants:

| | Activité α totale par min. | Couples Tn-ThA par min. | Rapport |
|-------------------|--------------------------------------|----------------------------|----------------|
| Mesuré | $1,17 \pm 0,03$ | $0,094 \pm 0,012$ | $12,5 \pm 1,5$ |
| Calculé | 1,14 | 0,095 | 12 |

Nous avons contrôlé la perte de Tn en activant le fil du compteur (— 600 V pendant 24 h) à l'aide d'une source de Tn en équilibre, donnant 5,5 α par minute. Le background avant l'activation était de $6,5 \pm 0,6$ α par heure et après, de $6,0 \pm 1,3$ α par heure; la perte de Tn est donc inférieure à 2% de la quantité formée (probabilité 99%). Les sources n'étaient pas recouvertes d'un film protecteur.

Sensibilité.

Le background en α du compteur utilisé est 6,5 α par heure. Pour une valeur de τ fixée à 0,467 s nous pouvons attendre 0,18 couples fortuits par

(*) Ce Thorium, vieux de plus de 50 ans, nous a été donné par le Dr. F. Koczy, de l'Institut Océanographique de Göteborg.

jour. En totalisant tous les essais de background nous arrivons à un couple observé en 3,5 jours.

Une source de $1,5 \cdot 10^{-7}$ g de Th en équilibre donne une activité α égale au background. Dans ces conditions, le temps nécessaire pour obtenir une

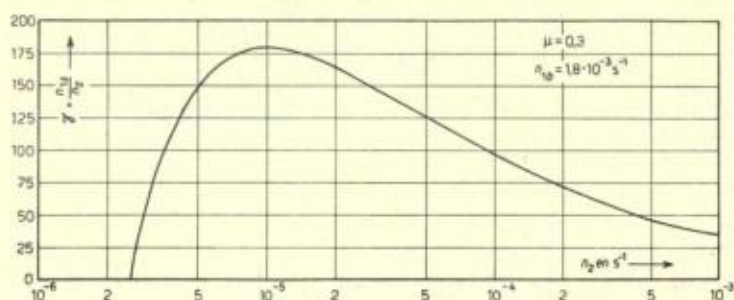


Fig. 5.

précision statistique donnée est le double du temps nécessaire en l'absence de background. Il en est de même pour le comptage de couples lorsque $f(\mu_0; (\tau/\theta) \text{ opt}) = \sqrt{2}$, soit $\mu_0 = 0,3$ (voir Appendice et fig. 6). La plus petite activité en couples mesurable, définie par cette condition, est $n_{2 \text{ min}} = 2,5 \cdot 10^{-6}$

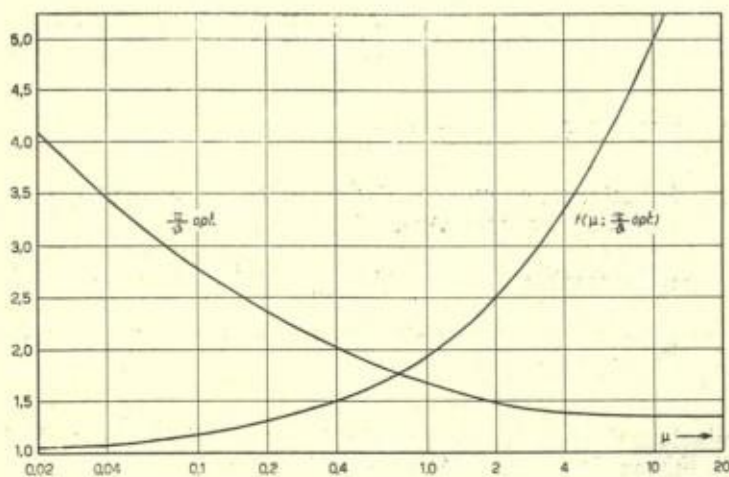


Fig. 6.

couples s^{-1} (= 0,2 par jour) qui correspond, au rendement de 50%, à une quantité de RdTh en équilibre avec $3 \cdot 10^{-9}$ g de Th.

Abstraction faite de la difficulté d'immobiliser un compteur pendant des temps de l'ordre du mois, la sensibilité est comparable à celle de la méthode

photographique⁽⁵⁾; elle est largement supérieure à celle de la méthode classique par barbotage du Tn et comptage d' α qui permet de mesurer quelques microgrammes de Th. Une méthode plus sensible qui permet de détecter quelques dixièmes de microgramme est basée sur le comptage du Th(B+C)^(5,6).

La courbe fig. 5 montre le rapport ν admissible, pour notre compteur, entre le nombre d' α de la source, n_1 , et le nombre de couples n_2 émis par unité de temps dans le volume sensible du compteur.

En ce qui concerne ce rapport, notre méthode est inférieure à la méthode photographique.

Remerciements.

Nous remercions le Dr. E. PICCIOTTO pour de précieux conseils et d'utiles discussions, les Professeurs P. BAUDOIX et G. P. S. OCCHIALINI pour l'intérêt porté à ce travail, Madame S. WILGAIN pour la préparation des sources et MM. A. DE WAELHEYNS et A. IGIUNI pour la construction des circuits.

APPENDICE

Soient t la durée de la mesure,

θ l'intervalle moyen des couples vrais (0,23 s pour Tn-ThA;
2,6·10⁻³ s pour An-AcA),

n_1 le nombre d' α comptés par unité de temps,

n_2 le nombre de couples réels émis par unité de temps dans le volume sensible du compteur.

Les sélecteur de couples ne comptant que des intervalles de temps $< \tau$, le nombre moyen de couples réels comptés est

$$N' = n_2 t (1 - \exp[-\tau/\theta]) .$$

⁽⁵⁾ F. G. HOUTERMANS: *Sitzb. Heidelb. Akad. Wissen. Math.-Naturw.*, 2, 123 (1951)

⁽⁶⁾ J. C. DALTON, J. GOLDEN, G. R. MARTIN, E. R. MERCER et S. J. THOMSON: *Geochimica Acta*, 3, 6, 272 (1953).

Comme il faut que l'activité α soit assez faible ($n_1\theta \ll 1$) pour permettre l'analyse des intervalles, le nombre de couples fortuits est

$$N'' = n_1 t (1 - \exp[-(n_1 - n_2)\tau]) \approx n_1(n_1 - n_2)\tau t,$$

τ étant choisi du même ordre que θ .

A partir du nombre total N de couples observés, on estime, si $n_2 \ll n_1$, le nombre de couples réels

$$N' = N - N'',$$

avec une erreur moyenne

$$\Delta N' = \sigma_N = \sqrt{\sigma_{N'}^2 + \sigma_{N''}^2} = \sqrt{N' + N''} \quad (\sigma = \text{écart quadratique moyen})$$

car N' et N'' sont indépendants; d'où en posant

$$\mu = \frac{n_1(n_1 - n_2)\theta}{n_2},$$

l'erreur relative

$$\frac{\Delta N'}{N'} = \frac{1}{\sqrt{n_2 t}} \frac{\sqrt{1 - \exp[-\tau/\theta]} + \mu}{1 - \exp[-\tau/\theta]} = \frac{1}{\sqrt{n_2 t}} f\left(\mu; \frac{\tau}{\theta}\right),$$

la présence de couples fortuits obligeant de compter pendant un temps $f^2(\mu; \tau/\theta)$ fois plus long pour obtenir une même précision statistique.

La valeur de τ/θ qui rend $\Delta N'/N'$ minimum est solution de

$$\frac{\partial f}{\partial(\tau/\theta)} = 0 \quad \text{ou} \quad \mu = \frac{\exp[-\tau/\theta] \cdot (1 - \exp[-\tau/\theta])}{1 - \exp[-\tau/\theta] - 2(\tau/\theta) \exp[-\tau/\theta]}.$$

Les courbes de la fig. 6 donnent en fonction de μ la valeur optima de τ/θ ainsi que la valeur de $f(\mu; \tau/\theta)$ lorsqu'on y introduit τ/θ optimum.

L'activité n_1 comprend le background du compteur et l'activité de la source

$$n_1 = n_{1b} + n_{1s}.$$

L'erreur relative augmente rapidement quand μ croît, soit μ_0 la plus grande valeur acceptable. Le plus petit n_2 mesurable est ($n_1 \gg n_2$)

$$n_{2 \min} = \frac{n_{1b}^2 \theta}{\mu_0}$$

et le plus grand rapport r admissible entre les activités en α et en couples de

la source

$$v = \frac{n_{1a}}{n_2} = \sqrt{\frac{\mu_0}{\theta n_2}} - \frac{n_{1b}}{n_2} \quad (n_2 > n_{2 \min}) .$$

Ce rapport, nul quand $n_2 = n_{2 \min}$, passe par le maximum

$$v_{\max} = \frac{\mu_0}{4n_{1b}\theta}$$

lorsque $n_2 = 4n_{2 \min}$.

RIASSUNTO (*)

Per mezzo di un contatore proporzionale si contano le coppie di disintegrazioni successive $Tn \xrightarrow{\alpha} ThA \xrightarrow{\alpha}$. Un circuito speciale seleziona gli intervalli inferiori a un tempo dato. Si discute la scelta del tempo ottimo. La minima quantità di RdTh misurabile col metodo descritto è quella in equilibrio con $\sim 3 \cdot 10^{-3}$ g di torio. Si esamina il rapporto ammissibile tra le attività in α e in coppie $Tn \xrightarrow{\alpha} ThA \xrightarrow{\alpha}$.

(*) Traduzione a cura della Redazione.