

# 1

## Metode de analiză prin activare

### 1.1 Principiul metodei

Analiza prin activare este o metodă experimentală care constă în iradierea probei cu un fascicul de radiații nucleare (neutroni, particule încărcate, fotoni, etc.) urmată de măsurarea activității de viață lungă indusă. Activitatea de viață lungă este aproape întotdeauna de tip  $\gamma$ ,  $\beta$  sau mai rar  $\alpha$ . Măsurarea activității produse (tip, energie, timp de viață) permite obținerea unor concluzii asupra compoziției chimice a probei. Uneori înainte de iradiere sau de măsura se fac separări chimice care măresc sensibilitatea prin eliminarea interferențelor.

Să presupunem că în proba de analizat se află izotopul  $T$  în concentrație de  $N(t)$  nuclee/cm<sup>-3</sup> la momentul de timp  $t$ . Înainte de a începe iradierea, această concentrație de nuclee țintă este  $N(t = 0) \equiv N_0$ . Prin bombardarea probei cu particule incidente  $a$  având fluxul  $\Phi$  particule cm<sup>-2</sup>s<sup>-1</sup> are loc reacția nucleară



prin care se produc izotopi radioactivi  $T'$  care se dezintegrează cu constanta de dezintegrare  $\lambda$  prin emisia de cuante gamma. Timpul de viață al dezintegrării este suficient de lung pentru a transporta proba în afara zonei de iradiere și a înregistra spectre gamma.

la un moment dat în timpul iradierii, iar cu  $\sigma$ ,  $\Sigma$  secțiunea eficace microscopică respectiv cea macroscopică, atunci avem ecuația de echilibru

$$\frac{dN'}{dt} = \Phi\sigma N - \lambda N \quad (1.2)$$

care integrată conduce la următoarea valoare instantanee a numărului  $N'$  de radionuclizi  $T'$  existenți în probă

$$\frac{N'}{N_0} = \frac{\Phi\sigma}{\Phi\sigma + \lambda} \left[ 1 - e^{-(\Phi\sigma + \lambda)t} \right] \quad (1.3)$$

Se poate observa că la timpi de iradiere mari, cantitatea (relativă) de radionuclid crește cu fluxul incident și cu secțiunea de reacție. În general  $N'$  este mult mai mic decât  $N$  deoarece  $\lambda$  este mult mai mic decât  $\Phi\sigma$ , în care caz, ecuația (1.3) devine

$$N' = N_0 \frac{\Phi\sigma}{\lambda} \left( 1 - e^{-\lambda t} \right) \quad (1.4)$$

Activitatea probei  $\Lambda = \lambda N'$  va fi proporțională cu numărul de nuclee radioactive formate prin iradiere dar va depinde și de  $N_0$ , numărul de nuclee de tip  $T$  pe unitatea de volum existente în probă la începutul iradierii. Legătura între masa  $m$  și numărul de nuclee pe unitatea de volum  $N'$  este

$$N' = \frac{m f_T}{A_T} \aleph$$

unde  $f_T$  este concentrația masică a izotopului  $T'$  iar  $\aleph$  numărul lui Avogadro.

Având în vedere faptul că  $\lambda = 0.693 \cdot T_{1/2}$  unde  $T_{1/2}$  este timpul de înjumătățire, avem relația următoare între masa  $m$  a izotopului  $T$  din probă și activitatea probei la sfârșitul iradierii  $\Lambda$

$$m = \frac{\Lambda A_T}{\aleph \Phi \sigma \left( 1 - e^{-0.693t/T_{1/2}} \right)} \quad (1.5)$$

de unde se vede faptul că detectarea unei cantități mici de substanță (atunci când limita de detecție a activității  $\Lambda$  este fixată din motive experimentale) este favorizată de :

- (ii). Mase atomice mici ale nucleelor țintă.
- (iii). Secțiuni eficiente de reacție mari.
- (iv). Perioade de înjumătățire scurte.

Experimental, măsurătorile de activare au loc în două etape, oricare ar fi particulele care induc activarea

*etapa 1-a:* Iradierea probei în condiții de flux incident cunoscute ca distribuție energetică și spațială.

*etapa a 2-a:* Scoaterea probei din fluxul incident și măsurarea activității gamma (uneori și beta).

Dacă etapa a 2-a este comună la toate tipurile de măsurători de activare, etapa 1-a se desfășoară conform unor proceduri dependente de tipul fluxului incident. În continuare vom distinge tipul experimentelor de activare după tipul radiației care induce activarea.

## 1.2 Activarea indusă de neutroni

### 1.2.1 Câmpul de neutroni termici

Este cea mai răspândită metodă de activare datorită secțiunilor eficiente de interacție ridicate specifice neutronilor termici, ca și parcursului lor mare în substanță. Neutronii care produc reacțiile nucleare de activare sunt de cele mai multe ori cei din coloana termică a unui reactor nuclear - neutronii termici. Aplicarea relației (1.5) presupune cunoașterea cu precizie a *câmpului neutronic* adică a distribuției spațiale și energetice  $n(\vec{r}, \vec{\Omega}, K)$  a neutronilor în care se plasează proba pentru activare. Tipic este cazul în care neutronii se află în echilibru termodinamic într-un mediu împrăștiator (grafit sau apă în cele mai multe cazuri).

Dacă se consideră un element de volum  $dV = dx dy dz$  atunci  $n(\vec{r}, \vec{\Omega}, K) dV d\Omega dK$  reprezintă numărul de neutroni din acest element de volum, neutroni ale căror direcții de mișcare sunt caracterizate de versorul  $\vec{\Omega}$ , și intră în elementul de unghi solid  $d\Omega$ , iar energiile lor se găsesc în intervalul  $[K, K + dK]$ . Deci mărimea

$$n(\vec{r}, \vec{\Omega}, K) \quad [\text{cm}^{-3} \cdot \text{s} \cdot \text{rad}^{-1} \cdot \text{eV}^{-1}]$$

staționară a unui câmp de neutroni. Pornind de la această definiție se pot obtine următoarele mărimi de interes

(i). vectorul *densitate* de neutroni, definit ca fiind numărul total de neutroni din elementul de volum care au o direcție de mișcare dată, indiferent de energia lor

$$n(\vec{r}, \vec{\Omega}) = \int_0^{\infty} n(\vec{r}, \vec{\Omega}, K) dK \quad (1.6)$$

(ii). *densitatea spațială de neutroni*, definită ca numărul total de neutroni din unitatea de volum

$$n(\vec{r}) = \int_0^{\infty} n(\vec{r}, \vec{\Omega}) d\Omega \quad (1.7)$$

(iii). *Fluxul diferențial de neutroni*,  $\varphi(\vec{r}, \vec{\Omega}, K)$  reprezintă numărul de neutroni din unitatea de volum având energia cinetică în intervalul  $[K, K + dK]$ , direcția de mișcare în unghiul solid  $d\Omega$  centrat pe versorul  $\vec{\Omega}$ , care pătrund printr-o suprafață unitate perpendiculară pe  $\vec{\Omega}$

$$\varphi(\vec{r}, \vec{\Omega}, K) = n(\vec{r}, \vec{\Omega}, K) \vec{v} d\vec{\Omega} dK$$

unde  $v = \sqrt{2K/m}$  este viteza neutronilor. Integrând această relație după energie se obține *vectorul de flux*  $\varphi(\vec{r}, \vec{\Omega})$  care este numărul de neutroni care pătrund în unitatea de timp prin unitatea de suprafață perpendiculară pe  $\vec{\Omega}$  și se deplasează în unghiul solid  $d\Omega$ .

(iv). *fluxul scalar* se definește cu ajutorul relației

$$\Phi(\vec{r}) = \int_{4\pi} \varphi(\vec{r}, \vec{\Omega}) d\vec{\Omega} \quad (1.8)$$

## 1.2.2 Activarea probelor în câmpuri de neutroni termici

În reactor, neutronii apar în urma proceselor de fisiune și în funcție de tipul reactorului pot fi neutroni rapizi sau neutroni termici.

Neutronii apar de asemenea în cele mai multe dintre reacțiile nucleare. Remarcabile sunt reacțiile de spalație (reacții induse de protoni cu energii de ordinul GeV-ilor care bombardează ținte grele

mai noi surse de neutroni se construiesc pe baza acestor reacții de spalație. Să considerăm de astfel de sursă de neutroni plasată într-un mediu întins. Neutronii vor difuza până se va stabili un echilibru între "gazul" neutronic" și atomii mediului (atomii împrăștiatori). În regim staționar se obține o distribuție energetică de tip Maxwell cu temperatura dată de temperatura mediului împrăștiator. La temperaturi apropiate de 273 ° Kelvin energia cinetică a centrilor împrăștiatori din mediu este situată în domeniul 0-1 eV. Neutronii părăsesc reacțiile nucleare de producere cu energii de ordinul MeV ( $10^6$  eV). În prima etapă are loc procesul de *încetinire* în care neutronul pierde energie prin ciocniri succesive cu mediul (moderatorul). Când energia neutronului a ajuns în domeniul eV, are loc *termalizarea*, proces prin care neutronul prin ciocnire poate pierde dar și câștiga energie. În acest moment s-a ajuns la echilibrul termic între gazul neutronic și mediul moderator. Mediile moderatoare reale sunt finite, neutronii putându-le părăsi prin suprafața lor. Din acest motiv, distribuția de echilibru este doar o aproximație a distribuției reale a câmpului de neutroni. Având în vedere importanța specială pentru aplicații a câmpurilor de neutroni termici în continuare ne vom referi la activarea probelor în aceste câmpuri.

Asemănător cu ceea ce se cunoaște de la termodinamica statistică, distribuția Maxwell consideră următoarea expresie pentru numărul de neutroni din unitatea de volum care au energia cuprinsă în intervalul energetic  $[K, K + dK]$

$$dn = n(K) dK = \frac{2\pi n}{(\pi kT)^{3/2}} e^{-K/kT} \sqrt{K} dK \quad (1.9)$$

unde

$$n = \int_0^\infty n(K) dK$$

este densitatea totală de neutroni. Prin rearanjarea relației anterioare rezultă

$$\frac{n(K)}{n} dK = \frac{2}{\sqrt{\pi}} e^{-K/kT} \sqrt{K/kT} \frac{dK}{kT} \quad (1.10)$$

Mărimile caracteristice spectrului Maxwell descris prin distribuția (1.10) sunt

$$\bar{K} = \frac{\int_0^\infty Kn(K) dK}{\int_0^\infty n(K) dK} = \frac{3}{2}kT$$

care se observă că este legată direct de parametrul *temperatură a mediului T*

- viteza cea mai probabilă

$$v_T = \sqrt{\frac{2kT}{m}}$$

unde  $m$  reprezintă masa neutronului

- viteza medie

$$\bar{v} = \frac{2}{\sqrt{\pi}} v_T$$

de care se leagă fluxul scalar  $\Phi$

$$\Phi = \int_0^\infty n(v) v dv = n \bar{v} \frac{2}{\sqrt{\pi}} n v_T$$

Din relațiile anterioare se obțin următoarele expresii pentru fluxul scalar de neutroni

$$\frac{\Phi(K)dK}{\Phi} = e^{-K/kT} \frac{K}{kT} \frac{dK}{kT} \quad (1.11)$$

sau

$$\frac{\Phi(v)dv}{\Phi} = 2e^{-(v/v_T)^2} \left(\frac{v}{v_T}\right)^3 \frac{dv}{v_T} \quad (1.12)$$

Deoarece neutronii parcurg distanțe mari în mediile materiale, este uzuală definirea mărimii secțiune eficace *macroscopică* de interacție  $\Sigma$  care se leagă de secțiunea microscopică  $\sigma$  prin relația

$$\Sigma = \sigma N$$

unde  $N$  este numărul de nuclee țintă pe unitatea de volum. Dacă plasăm proba de activat care conține urme din substanța cu secțiunea eficace  $\Sigma(K)$  într-un câmp de neutroni caracterizat de

nucleare care se produc pe secundă în unitatea de volum este

$$\mathfrak{R} = \int_0^{\infty} \Sigma(K) \Phi(K) dK \quad (1.13)$$

care poartă și numele de *viteză de reacție*. În unele studii se adoptă denumirea de *viteză efectivă de reacție* (sau pe scurt viteză de reacție) pentru mărimea  $\bar{\Sigma}$  calculată prin

$$\bar{\Sigma} = \frac{\int_0^{\infty} \Sigma(K) \Phi(K) dK}{\int_0^{\infty} \Phi(K) dK}$$

ceea ce conduce la următoarea expresie pentru viteza de reacție

$$\mathfrak{R} = \bar{\Sigma} \Phi \quad (1.14)$$

larg utilizată în teoria fenomenelor de activare în câmpuri de neutroni și în fizica reactorilor nucleari.

Un caz particular foarte important pentru aplicații este acela în care materialul probei pentru activat are o secțiune eficace care variază proporțional cu inversul vitezei neutronilor  $v^{-1}$ . Acest tip de dependență face ca legătura între fluxul de neutroni și rata de activare (viteza de reacție) să fie foarte simplă. În Tabelul 1.2.2 sunt prezentați principalii izotopi pentru care secțiunea eficace prezintă o variație de tip  $v^{-1}$  la energii apropiate de cea corespunzătoare vitezei termice a neutronilor ( viteza termică este de  $2200 \text{ ms}^{-1}$  și reprezintă viteza cea mai probabilă la temperatura  $T_0=293.6$  Kelvin).

În cazul dependenței de tip  $1/v$  a secțiunii eficace, avem în expresia secțiunii eficace macroscopice efective o separare a părții ce depinde de energia neutronilor

$$\overline{\Sigma(K)} = \Sigma_a(kT) \sqrt{\frac{kT}{K}}$$

de unde se obține pentru rata de reacție expresia

$$\mathfrak{R} = \frac{\sqrt{\pi}}{2} \Sigma(K_{th}) \Phi = \Sigma_a(\bar{v}) n \bar{v} \quad (1.15)$$

$b$ $^{55}_{25}\text{Mn}$	$13.2 \pm 0.1$	2.58 ore ( $\gamma$ )
$^{59}_{27}\text{Co}$	$16.9 \pm 1.5$	10.5 min ( $\gamma$ )
$^{63}_{29}\text{Cu}$	$4.41 \pm 0.2$	12.87 ore ( $\beta$ )
$^{65}_{29}\text{Cu}$	$56 \pm 12$	49 zile ( $\gamma, \beta$ )
$^{113}_{49}\text{In}$	$160 \pm 2$	54.12 min ( $\gamma, \beta$ )
$^{115}_{49}\text{In}$	$42 \pm 1$	14.1 sec
$^{164}_{69}\text{Dy}$	$2000 \pm 200$	1.3 min ( $\beta$ )
$^{197}_{79}\text{Au}$	$98.5 \pm 0.4$	2.69 zile ( $\gamma, \beta$ )

din care se observă faptul că pentru un absorbant de tip  $1/v$  viteza de reacție nu depinde de energia termică  $K_{th} = kT$  și de spectrul câmpului de neutroni, fiind proporțională cu densitatea medie de neutroni.  $\mathfrak{R}$  este mărimea care se determină din analiza activității probei prin măsurători spectrometrice beta sau gamma.

La energiile ale neutronilor mai mari decât cele din domeniul termic (epitermice) secțiunile eficace de interacție prezintă rezonanțe localizate la anumite energii ( $K_i$ ) cu lărgimi ( $\Gamma_i$ ). În acest caz, activarea probei este proporțională cu fluxul neutronilor de energie corespunzătoare energiilor acestor rezonanțe. Pentru eliminarea neutronilor termici este necesară acoperirea probelor cu foițe de Cd, material care are secțiuni eficace urișe pentru absorbția neutronilor termici. Pentru a obține informații asupra întregului domeniu de energie al neutronilor epitermici, este necesar să se folosească mai mulți detectori de rezonanță. Componenta rapidă a spectrului neutronilor poate induce reacții cu prag de tipul  $(n, p)$ ,  $(n, \alpha)$ ,  $(n, 2n)$ . Energia de prag  $E_{th}$  poate fi determinantă pentru o secțiune eficace modelată printr-o funcție treaptă

$$\sigma = \begin{cases} 0 & k < E_{th} \\ \sigma_0 & k \geq E_{th} \end{cases} \quad (1.16)$$

Activarea va fi egală cu

$$\mathfrak{R} = \sigma_0 \int_{E_{th}}^{\infty} \Phi(K) dK$$

Depenența de tip funcție treaptă pentru secțiunea eficace este doar o aproximație, în cazul secțiunilor eficace reale definindu-se



$$\int_0^\infty \sigma_{act}(K)\Phi(K) dK = \sigma_0 \int_{E_{th}^{eff}}^\infty \Phi(K) dK$$

Proba ce urmează a fi activată se prepară preferabil cu grosimi cât mai mici cu scopul minimizării a două efecte parazite: (i). perturbarea locală a fluxului de neutroni și (ii). autoabsorbția radiațiilor emise atunci când proba este măsurată. Dacă materialul care urmează a fi dozat în probă are secțiunea macroscopică de activare  $\Sigma_{act}$  și este plasat într-un flux de neutroni cu distribuția energetică și spațială  $\Phi(\vec{r}, K)$  atunci activarea probei se evaluează prin integrala

$$= \int_{K_1}^{K_2} \int_V \Phi(\vec{r}, K) d\vec{r} dK \quad (1.17)$$

unde  $K_1$  și  $K_2$  sunt limitele de integrare după energie. Pentru un câmp general de neutroni se disting trei regiuni ale spectrului:

(I). zona termică, cu  $\Phi_{th}$  și  $K_1 = 0$  iar  $K_2 = K_{Cd}$  energia de tăiere a filtrului de Cd.

(II). zona epitermică sau intermediară cu  $\Phi_{epi}$  iar  $K_1 = K_{Cd}$  și  $K_2 \rightarrow \infty$  cuprinde de fapt zona rezonanțelor.

(III). zona neutronilor rapizi,  $\Phi_r$  cu  $K_1 = K_{prag}$  și  $K_2 \rightarrow \infty$  in-cepe de la energia efectivă de prag.

În funcție de tipul izotopului ce urmează a fi detectat (dozat) prin activare și de forma spectrului energetic, una sau mai multe dintre cele 3 zone energetice anterioare sunt importante. În laborator, eșantionul de măsurat se plasează în același câmp de neutroni cu un etalon în care dozajul izotopului vizat s-a făcut controlat. Măsurile speciale (cum ar fi spre exemplu închiderea probei în tuburi de cuarț) trebuiesc luate atunci când probele emit vapori în timpul iradierii sau în timpul măsurării. Pe lângă faptul că ar afecta în mod necontrolat balanțul activității ele sunt deosebit de periculoase din punctul de vedere al protecției radiologice.

### 1.2.3 Perturbarea fluxului de către probă

Perturbarea introdusă de absorbant poate fi separată în doi factori

1. *Autoecranarea*, care descrie reducerea fluxului în absorbant

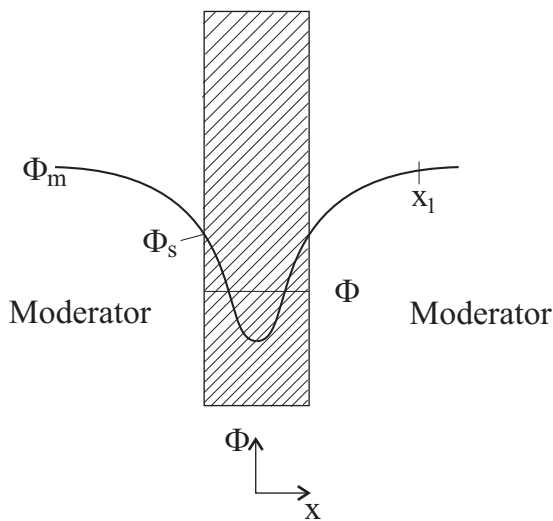


Figure 1.1: Depresiunea de flux și autoecranarea datorate prezenței unei probe absorbante într-un câmp de neutroni

datorită atenuării în straturile lui exterioare.

2. *Depresiunea de flux*, care ia în considerare reducerea fluxului la suprafața absorbantului datorită retroâmprăștierii neutronilor în materialul probei.

probe absorbante într-un câmp de neutroni

În notațiile din Figura 1.1 factorul de autoecranare este definit astfel

$$F_{ae} = \frac{\bar{\Phi}}{\Phi_s}$$

unde  $\bar{\Phi}$  reprezintă fluxul mediu pe volumul absorbantului iar  $\Phi_s$  este fluxul mediu la suprafața sa.

Factorul de depresiune de flux este definit prin

$$F_{df} = \frac{\Phi_s}{\Phi_m}$$

unde  $\Phi_m$  este fluxul neperturbat în moderator.

deci cunoașterea mărimii  $H = \Phi_{ae} \cdot \Phi_{df}$  este importantă pentru a obține valoarea  $\Phi_m$  - fluxul de neutroni în moderator. Factorul  $H$  se poate modela teoretic în teoria difuziei. El este tabelat și are utilitate practică în măsurătorile de activare sau de determinare a fluxului în reactorii nucleari.

Intr-o primă aproximație se poate considera o atenuare exponențială a fluxului de neutroni în interiorul probei

$$\Phi_x = \Phi_m e^{-\Sigma x} \quad (1.18)$$

în care secțiunea macroscopică  $\Sigma \simeq \Sigma_a$ , ceea ce implică aproximația neglijării efectului depresiunii de flux (absorbția este mult mai puternică decât împrăștierea).

Daca  $d$  este grosimea probei și notam cu  $\tau = \Sigma_a d$  atunci integrarea relației (1.18) pe toată grosimea probei conduce la următoarea valoare pentru parametrul  $H$

$$H = \frac{\bar{\Phi}}{\Phi_m} = \frac{1 - e^{-\tau}}{\tau}$$

Depresiunea de flux termic care a fost neglijată în raționamentul schematic anterior, prezintă însă importanță deoarece un neutron absorbit în timpul trecerii prin foiță nu mai are posibilitatea de a fi împrăștiat și a contribui deci la fluxul din vecinătate. Această corecție are cea mai mare importanță în cazul moderatorilor hidrogenoizi (apa ușoară) și prezintă relativ puțină importanță pentru alți moderatorii cum ar fi  $D_2O$ , Be sau grafit.

### 1.3 Activarea indusă de particulele încărcate

În cazul activării probei prin reacții nucleare induse de particule încărcate, problema este mai simplă din cauza faptului că fascicolul incident are o definiție experimentală clară. Datorită parcursului relativ redus al particulelor încărcate în corpul solid, zona din probă în care se produc nucleele radioactive  $T'$  este bine definită. De asemenea, atenuarea fascicolului incident poate fi evaluată numeric și procesele nucleare din probă nu au nici o

așa cum era cazul la activarea cu neutroni (vezi secțiunea precedentă). Dacă  $I(t)$  reprezintă numărul de particule incidente pe probă în unitatea de timp, atunci tot în unitatea de timp se crează un număr  $N'(t)$  de nuclee active de tip  $T'$  (în notațiile din relația (1.1))

$$N'(t) = I(t) \frac{f_T}{A_T} \int_{x=0}^{\infty} \int_{K=0}^{\infty} \int_{K_1=0}^{\infty} c(x) b(K_0, K) f(K, K_1, x) \sigma(K_1) dK dK_1 dx \quad (1.19)$$

unde:

$f_T$  - abundența izotopică a nucleelor țintă  $T$

$c(x)$  - concentrația atomică a elementului chimic la care aparține izotopul  $T$

$\rho_T$  = numărul de atomi de tip  $T$  pe gram și este legat de  $c$  și  $f_T$  prin relația

$$\rho_T = \frac{c f_T}{A_T} \text{ grame}^{-1}$$

$b(K_0, K)$  = distribuția energetică a fasciculului incident se ia de obicei o funcție Gauss

$$b(K_0, K) = \frac{1}{\delta_b \sqrt{2\pi}} e^{-(K-K_0)^2/2\delta_b^2}$$

unde  $K_0$  este energia incidentă medie iar lărgimea la semiînălțime (FWHM) a distribuției este dată de  $\Delta_b = 2.355 \delta_b$ .

$f(K, K_1, x)$  = densitatea de probabilitate ca o particulă incidentă cu energia  $K$  la suprafața probei să aibă energia  $K_1$  la adâncimea  $x$  în material,  $K_1$  fiind energia la care se produce reacția nucleară de activare cu secțiunea eficace microscopică  $\sigma(K_1)$ . Pentru adâncimi mici de pătrundere această funcție este descrisă de teoria Vavilov [10], iar la adâncimi mari este de tip Gauss.

În multe cazuri, concentrația  $c(x)$  este o constantă  $c_0$  și proba are forma unui strat de grosime  $\Delta x$  în care fasciculul pierde energia  $\Delta K$ . Dacă secțiunea eficace are o variație lentă cu energia în intervalul  $(K_0 - \Delta K, K_0)$  atunci relația (1.19) devine

$$N'(t) = I(t) \frac{c_0 f_T \Delta x}{A_T} \bar{\sigma} \quad (1.20)$$

$$\bar{\sigma} = \frac{1}{\Delta K} \int_{K_0 - \Delta K}^{K_0} \sigma K dK$$

După timpul de iradiere  $t_i$  numărul de atomi radioactivi prezenți în probă va fi deveni

$$N'_r = \int_{t=0}^{t_i} N'(t) e^{-\lambda(t_i-t)} dt$$

Dacă intensitatea fasciculului este constantă, rata de producție a nucleelor radioactive este constantă și deci numărul de nuclee radioactive la sfârșitul iradierii va fi

$$N'_r = I \aleph \frac{c_0 f_T \Delta x}{A_T \lambda} \bar{\sigma} (1 - e^{-\lambda t_i}) \quad (1.21)$$

unde  $I$  este intensitatea fasciculului activator.

Să considerăm în continuare un alt caz de interes - concentrație constantă și secțiune eficace slab dependentă de energie. Atunci ecuația (1.19) devine

$$N'(t) = I(t) \aleph \frac{c f_T}{A_T} \int_{K_1=0}^{K_0} \frac{\sigma(K_1)}{S(K_1)} dK_1$$

iar dacă dependența intensității fasciculului de timp  $I(t)$  este înregistrată între momentul  $t = 0$  și  $t = t_i$  avem pentru numărul de nuclee radioactive la sfârșitul iradierii expresia

$$N'_r = \aleph \frac{c f_T}{A_T} e^{-\lambda t_i} \int_{K_1=0}^{K_0} \frac{\sigma(K_1)}{S(K_1)} dK_1 \int_{t=0}^{t_i} I(t) e^{\lambda t} dt \quad (1.22)$$

în care  $S(K_1)$  este puterea de stopare a mediului în care se află urmele care se activează. Integralele se efectuează numeric atunci când secțiunea eficace  $\sigma(K_1)$  și istoria de iradiere  $I(t)$  sunt cunoscute.

În practică intervin însă de cele mai multe ori situații simplificatoare prin care formulele anterioare se pot aproxima cu relații mult mai ușor de aplicat

intervalului energetic  $\Delta K$ , atunci (1.22) devine

$$N'_r = \aleph \frac{cf_T \Delta x}{A_T} \bar{\sigma} e^{-\lambda t_i} \int_0^{t_i} I(t) e^{\lambda t} dt$$

(II.) *Timp scurt de iradiere*, atunci când  $t_i$  este mult mai mic decât  $T_{1/2}$ , implică faptul că dezintegrarea este neglijabilă în timpul iradierii și (1.22) devine

$$N'_r = \aleph \frac{cf_T}{A_T} \int_0^{K_0} \sigma(K_1) \frac{dK_1}{S(K_1)} \int_0^{t_i} dt \quad (1.23)$$

în care integrala după timp se obține din integrarea sarcinii electrice transportate de fascicul. În mod practic aceasta este valoarea citită de integratorul curentului de pe cușca Faraday.

(III.) *Timp de înjumătățire mult mai scurt decât timpul de iradiere* ( $T_{1/2} \ll t_i$ ), implică faptul că procesele de dezintegrare în timpul bombardării țintei sunt atât de importante încât se atinge echilibrul înainte de terminarea iradierii,  $N'_r$  fiind practic independent de timpul de iradiere  $t_i$ .  $t_i/T_{1/2} \gg 1$  implică o valoare foarte mică pentru  $e^{-\lambda t_i}$  și pentru o intensitate constantă a fasciculului  $I$  se obține din relația (1.22)

$$N'_r = \aleph \frac{cf_T}{A_T \lambda} I \int_0^{K_0} \sigma(K_1) \frac{dK_1}{S(K_1)}$$

care în cazul unei probe subțiri devine

$$N'_r = \aleph \frac{cf_T}{A_T \lambda} I \bar{\sigma} \Delta x \quad (1.24)$$

Numărul de raze gamma detectate în intervalul de timp  $\Delta t_m$  măsurat de la un moment  $t_m$  după terminarea iradierii este dat de relația

$$n_\gamma = \frac{\epsilon}{s} N'_r e^{-\lambda t_m} (1 - e^{-\lambda \Delta t}) \quad (1.25)$$

în care  $\epsilon$  reprezintă eficiența totală de detecție iar  $s$  este factorul de schemă al radiației gamma măsurate.

În efectuarea unui experiment de acest tip trebuie considerate următoarele elemente de ordin practic

face prin integrare sarcinii electrice transportate de fascicul într-o cușca Faraday plasată în spatele probei (dacă proba este subțire) sau prin iradierea simultană a unei foițe subțiri de Au, Pt sau Al așezată în fața probei.

(ii). Nucleii de recul care părăsesc proba prin fața de ieșire a fascicului trebuie opriți într-un stopant gros.

(iii). Probele groase se încălzesc în timpul iradierii (energia preluată de la fascicul). Din acest motiv montura țintei trebuie racită prin intermediul circulației unui fluid de răcire sau prin efect termoelectric.

Pentru analiza elementelor ușoare ( $Z < 10$ ) se utilizează fascicule de  ${}^3\text{He}$  și protoni. Analiza elementelor grele se face prin reacții ( $\alpha, xn$ ). Folosirea ionilor mai grei este posibilă în principiu dar efectele lor distructive puternice (mecanice și termice) îi fac să fie o soluție mai puțin atractivă.

## 1.4 Fotoactivarea

Asa cum am văzut în capitolele precedente, reacțiile nucleare pot fi induse și de cuantele  $\gamma$  de mare energie. Datorită penetrării puternice a radiațiilor gamma în materia condensată, această metodă de activare produce reacții nucleare în tot volumul probei. O sursă intensă de raze gamma de energie variabilă este obținută din radiația de frânare a unui fascicul de electroni stopat într-o țintă cu  $Z$  ridicat (Pt, W, ...). Spectrul este continuu cu energia maximă egală practic cu energia maximă a electronilor. Radiația de frânare este emisă într-un con îngust localizat în jurul direcției definite de fasciculul de electroni, cu unghiul de deschidere [3]

$$\alpha = \frac{1}{0.5 + K_0} \quad \text{radiani}$$

unde  $K_0$  este energia electronilor exprimată în MeV.

La energii ale cuantelor gamma incidente mai mici de 7 MeV (practic sub pragul de emisie al neutronilor) spectrul de activare este dominat de radiația  $\gamma$  de fluorescență provenită din dezintegrarea stărilor nucleare izomere. Se constată experimental ca

Simultan cu proba de interes se iradiază o probă martor cu impurificare controlată, activitățile obținute fiind apoi analizate comparativ.

La iradierea probelor cu energii peste pragul de emisie al protonilor sau neutronilor se produc în proba reacțiile  $(\gamma, n)$  și  $(\gamma, p)$  care produc activități reziduale diferite ca natură de proba supusă iradierii. Secțiunea eficace prezintă o *rezonanță gigant* la energia  $E_{rg}$  care depinde de masa nucleului excitat prin relația [10]

$$E_{rg} = 73A^{-1/3} \text{ MeV}$$

cu secțiunea integrată

$$\int_{-}^{\infty} \sigma(E_{\gamma}) dE_{\gamma} = 0.058 \frac{NZ}{A} \text{ MeV barni} \quad (1.26)$$

unde  $Z, A$  și  $N$  caracterizează nucleele țintă.

Fotonii folosiți în fotoactivare sunt produși ca radiație de frânare a unui fascicul de electroni cu energia de 15-30 MeV stopat într-o placă de W. Numărul de reacții fotonucleare produse pe secundă într-o probă grosă iradiată cu radiație de frânare este

$$R^f \sim \int_0^{K_0} \Phi^f(E_{\gamma}) \sigma(E_{\gamma}) dE_{\gamma}$$

unde  $\Phi^f(K_{\gamma})$  este fluxul de fotoni de energie  $E_{\gamma}$  care este practic constant în regiunea rezonanțelor gigant. Deci

$$R^f \sim \Phi^f(E_{rg}) \int \sigma(E_{\gamma}) dE_{\gamma}$$

iar prin folosirea formulei (1.26) se obține în final

$$R^f \sim 0.058 \frac{NZ}{A} \Phi(E_{rg}) \quad (1.27)$$

La iradierea unei probe groase, fluxul de fotoni incidenți este redus datorită efectelor de unghi solid și absorbției  $\gamma$ . Coeficientul de atenuare masic este foarte mic pentru cuante gamma de energii mari făcând posibilă analiza unor probe groase. În experiment se iradiază probe cu grosimea între 1 și 10 cm folosind fotoni de



unu fascicul de electroni cu energia de 30 MeV într-o țintă de Pt. Simultan se măsoară folii ce conțin concentrații controlate de impurități pentru a se face analiza comparativă a rezultatelor.

Sensibilitatea metodei depinde considerabil de condițiile experimentale cum sunt

- (i). intensitatea fascicului de fotoni,
- (ii). interferența radiațiilor din alte reacții,
- (iii). prezența fondului de radiații gamma parazite.

### Exemplu

Reacția fotonucleară  $^{59}\text{Co}(\gamma, n)^{58}\text{Co}^*$  este folosită pentru analiza cobaltului ( $E_{rg}^{Co} \simeq 19\text{MeV}$ ) prin măsurarea activității gamma reziduale cu  $T_{1/2} = 71.3$  zile și  $E_\gamma = 810$  keV. O interferență posibilă este produsă de către reacția  $^{59}\text{Ni}(\gamma, p)^{58}\text{Co}$ .

## 1.5 Domenii industriale în care se aplică tehnicile de activare

Analiza prin activare constituie una dintre cele mai larg utilizate metode de microanaliză. O comparare a performanțelor acestei metode cu alte metode analitice arată superioritatea ei în parametrul *sensibilitate*. Astfel, folosind ca metode de măsurare gravimetria sau volumetria limita de măsură este de  $10^{-2}$  %, prin calorimetrie sau spectrometrie optică  $10^{-5}$  %, prin spectrometria de masă  $10^{-6}$  % în timp ce prin activare nucleară această limita se situează în domeniul  $10^{-9}$ . Domeniile de aplicare a acestei metode sunt foarte numeroase. În cele ce urmează vor fi menționate doar câteva

- Analiza de materiale: determinări de impurități în materiale pure și nuclear pure (Hf în Zr sau Si, Ge, Al, etc.).
- În industria minieră: determinarea compoziției în elemente a mineralelor complexe (C, Ta, Se, Th), determinarea de pământuri rare, etc.

zăcământ, pentru punere în evidență a unor elemente chimice caracteristice celor trei medii.

- In industria metalurgică: dozarea impurităților sau a unor componente în oțeluri (Ni, Co, Nb, W, Sb, Se, Ta).
- In industria chimică și petrochimică: determinari de microelemente în materia primă, produse și subproduse.
- In biologie și medicină: determinarea conținutului în microelemente a unor țesuturi biologice având corelație directă cu ciclul metabolic.

# Bibliography

- [1] I.M. Popescu, *Fizică, vol. I (1982), vol. II (1983)*, Editura Didactică și Pedagogică - București
- [2] A.H. Wapstra, G. Audi and R. Hoekstra, *Atomic and Nuclear Data Tables 39 (1988)* 1988
- [3] K. Heyde, *Basic Ideas and Concepts in Nuclear Physics*, Institute of Physics Publishing, London (1994)
- [4] W. Greiner, J.A. Maruhn, *Nuclear Models*, Springer-Verlag Berlin Heidelberg 1996
- [5] G. Vlăducă, *Elemente de Fizică Nucleară*, partea I (1988), partea a II-a (1990), Tipografia Universității București
- [6] J. Kantele, *Handbook of Nuclear Spectrometry*, Academic Press Limited 1995
- [7] E. Segree, *Nuclei and Particles*, W.A. Benjamin, Inc., Reading, Massachusetts 1977
- [8] C.M. Lederer, V.S. Shirley (eds), *Table of Isotopes*, John Wiley & Sons, New York 1987
- [9] A. Messiah, *Mecanică Cuantică*, Editura Științifică, București 1974
- [10] G. Deconninck, *Introduction to Radioanalytical Physics*, Elsevier Scientific Publishing Company, Amsterdam 1978
- [11] A. Berinde, G. Vlăducă, *Reacții Nucleare Neutronice în Reactor*, Editura Tehnică, București 1978

- ciples*, Romanian Reports in Physics, vol.46, no.4, p.259-281 (1994)
- [13] S. Râpeanu, I. Pădureanu, I. Cristian, V. Cuculeanu, Gh. Rotărescu, M. Avrigeanu, *Tehnici și Măsuări la Reactorii Nucleari*, Editura Academiei, București 1983
- [14] G.F. Knoll, *Radiation Detection and Measurement*, John Wiley & Sons Inc., New York 1989
- [15] R.D. Evans, *The Atomic Nucleus*, Krieger, New York 1982
- [16] P. Marmier, E. Sheldon, *Physics of Nuclei and Particles*, Academic Press Inc. New York and London, 1971
- [17] J.D. Jackson, *Classical Electrodynamics, 2nd Ed.*, John Wiley & Sons, New York 1975
- [18] W.R. Leo, *Techniques for Nuclear and Particle Physics Experiments*, Springer-Verlag, Berlin-Heidelberg 1987, 1994
- [19] N. Tsoufanidis, *Measurement and Detection of Radiation*, Taylor & Francis, 1984
- [20] H.A. Bethe, J. Ashkin, *Passage of Radiations through Matter*, in *Experimental Nuclear Physics*, Vol.1, ed. by E.Segree, John Wiley & Sons, New York, N.Y. 1953
- [21] S.P. Ahlen, Rev. Mod. Phys. 52, 121 (1980)
- [22] F. Fano, *Penetration of Protons, Alpha Particles and Mesons*, Annual Review of Nuclear Science, v.13, p.1-66 (1963)
- [23] E.M. Abramovitz, I. Stegun, *Handbook of Mathematical Functions*, Dover Publ. Inc. New York (1965)
- [24] L.C. Northcliffe and R.F. Schiling, Nuclear Data Tables A7,233(1970)

- tons and mesons: *Tabulations of Vavilov Distribution*", in National Academy of Sciences Publication 1133, Nuclear Science Series Report No.39 (1964)
- [26] W. Heitler, *The Quantum Theory of Radiation*, 3rd ed., Oxford Univ. Press (Clarendon), London and New York 1954
- [27] J.F. Ziegler and W.K. Chu, "*Stopping Cross Sections and Backscattering Factors for  $^4\text{He}$  Ions in Matter*", Atomic Data and Nuclear Data Tables v.13, p.463 (1974)
- [28] P.A.M. Dirac, Proc. Royal Soc. v.126,p.361 (1930)
- [29] A.T. Steward, L.O. Roelling, *Positron Anihilation*, Academic Press, New York (1967)
- [30] P. Hantojarvi, A. Vehanen, *Applications of positron annihilation*, AIEA Conference (1978)
- [31] G.L. Brownell, C.A. Burnham, in *Instrumentation in Nuclear Medicine*, Vol.2, p.135, Academic Press, New York (1974)
- [32] M. Alonso, E. Finn, *Physics*, Addison - Wesley Publishing Company, 1992
- [33] A. Septier (ed.) *Focusing of Charged Particles*, Academic Press, New York 1967
- [34] E. Rodean, *Aparate și metode de măsură, analiză și control cu radiații*, Editura Academiei, București, 1986
- [35] E. Ligeon, M. Bruel, A.Bonetemps, "*Analyse du Phosphore dans le Silicium par Reactions Nucleaires*", Journal of Radioanalytical Chemistry v.16,p.537 (1973)
- [36] J. H. Fremlin, *Applications of Nuclear Physics*, The English Universities Press Limited, London (1964)
- [37] P. Theodorsson, *Measurement of Weak radioactivity*, World Scientific Co.,1996

John Wiley & Sons, New York, 1990

- [39] R. Muller, *Science*, v.196, p.489 (1977)
- [40] M. Ivascu et al. *Accelerator Mass Spectrometry - Applications*  
Romanian Reports in Physics, vol.46, no.4, p.283 (1994)
- [41] R.P. Gardner, R.L. Ely, *Radioisotope Measurement - Applications in Engineering*, Reinhold Publishing Co. New York 1967