

# 1

## Metode de analiză bazate pe detecția radiației $\gamma$ prompte

### 1.1 Introducere

Detecția radiației  $\gamma$  este una dintre cele mai convenabile metode experimentale de analiză datorită progresului imens înregistrat în tehnologia detectorilor cu semiconductori [14]. Rezoluția foarte bună (1.5 keV la radiații  $\gamma$  cu energia de 1 MeV), simplitatea tehnicii de calibrare în energie și eficacitate, precum și robustețea detectorilor GeHP (Germaniu hiperpur), fac ca această metodă să fie utilizată foarte frecvent.

Atunci când o probă este iradiată cu un fascicul de particule încărcate sau cu radiații electromagnetice provenind de la un accelerador, au loc reacții nucleare în urma cărora sunt emise radiații  $\gamma$  prompte,  $\gamma$  întârziate (discutate în Capitolul 11), precum și particule încărcate sau neutroni. Detecția acestor radiații provenite din reacțiile nucleare au aplicații analitice dintre cele mai diverse.

Radiațiile gamma prompte sunt emise de nucleele reziduale ale reacțiilor nucleare care trăiesc puțin (în general timpi de viață mai mici ca 1 secundă) și sunt detectate în timpul iradierii. Tehnica experimentală constă în bombardarea probei de investigat cu un fascicul bine colimat de radiații corpusculare sau electromagnet-

sau scintilatori (NaI(Tl), CsI(Tl), BGO) cu eficiența ridicată. Informațiile primare constau în determinarea poziției și ariilor picurilor de absorbție totală din spectrul energetic al radiațiilor  $\gamma$ . Aceste informații primare sunt afectate de mai multe efecte parazite, fiind necesară efectuarea unei secvențe de corecții numerice.

## 1.2 Efecte cinematice

### 1.2.1 Efecte datorate reculului

Fotonii sunt caracterizați de energie  $E_\gamma$  și impuls  $\vec{p}_\gamma$ , mărimi ce sunt legate prin relația

$$p_\gamma = \frac{E_\gamma}{c} \quad (1.1)$$

unde  $c$  este viteza luminii în vid. Energia și impulsul sunt mărimi care se conservă în reacțiile nucleare, având consecințe observabile importante asupra emisie și absorbției radiației gamma. Un nucleu aflat într-o stare excitată care se poate dezexcita prin emisia unei cuante  $\gamma$ , va recula în direcție opusă fotonului emis atunci când are loc dezexcitarea. Un fenomen similar are loc la absorbția unei cuante gamma, așa cum este ilustrat schematic în Figura ??.

În cele urmează vom alege un sistem de coordonate cu axa  $z$  determinată de direcția probă-detector. Viteza de recul  $v$  a nucleului este determinată de legea conservării impulsului

$$mv = \frac{E_\gamma}{c} \quad (1.2)$$

în care  $m$  este masa nucleului care emite o cuanta gama cu energia  $E_\gamma$ . Legea conservării energiei pentru emisia cuantei gamma se scrie

$$E = \frac{1}{2}mv^2 + E_\gamma \quad (1.3)$$

în care  $E$  este energia disponibilă în tranziția care conduce la emisia  $\gamma$ .

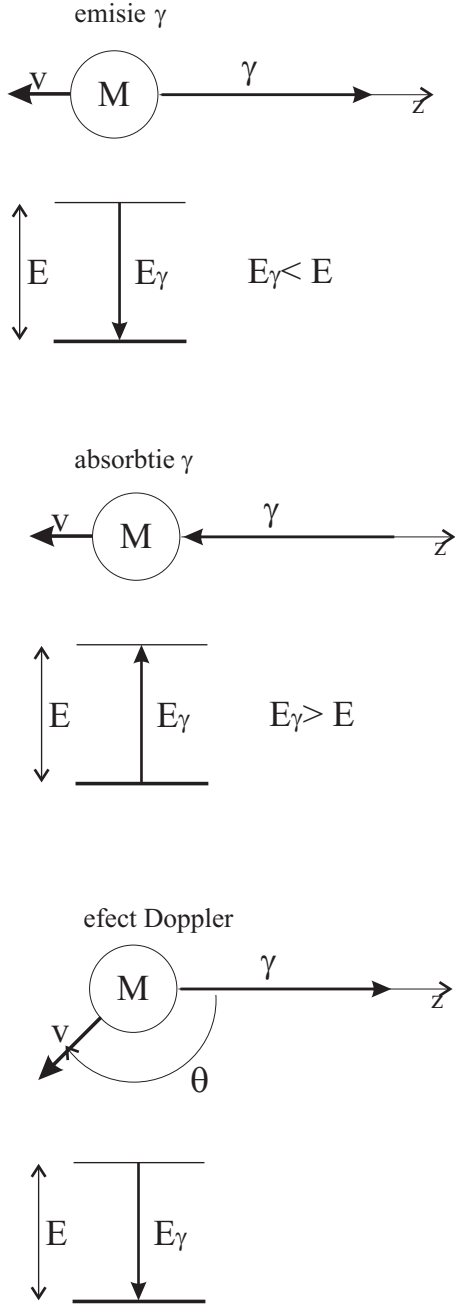


Figure 1.1: Efectul reculului în emisia și absorbția radiației  $\gamma$

$$E = E_\gamma + \frac{E_\gamma^2}{2mc^2} \quad (1.4)$$

Se observă că energia  $E_\gamma$  a radiației emise este mai mică decât energia disponibilă în tranziție, diferența fiind dată de relația

$$E - E_\gamma = 0.0005 \frac{E_\gamma^2}{A} \quad [\text{MeV}] \quad (1.5)$$

unde  $A$  este numărul de masă a nucleului emițător (absorbant) al radiației  $\gamma$ . Deoarece diferența între  $E$  și  $E_\gamma$  este mică, în locul relației anterioare se utilizează relația

$$E - E_\gamma = 0.0005 \frac{E^2}{A} \quad [\text{MeV}] \quad (1.6)$$

Un fenomen similar se observă la absorbția radiației gamma (vezi Figura ??). O parte din energia cuantei fiind cedată nucleului absorbant acesta capătă o mișcare de recul. Energia  $E_\gamma$  necesară unui foton pentru a induce o tranziție nucleară cu energia  $E$  este obținută din aplicarea legii conservării energiei și impulsului

$$E_\gamma = E + \frac{E^2}{2mc^2} \quad (1.7)$$

În consecință, fotonul emis într-o tranziție care are energia disponibilă  $E$  nu poate fi reabsorbit în aceeași tranziție (se află în afara rezonanței), diferența energetică care apare datorită efectelor de recul fiind  $E/mc^2$ .

## 1.2.2 Efectul Doppler

Dacă un detector aflat în repaus înregistrează unde (mecanice, electromagnetice etc.) cu lungimea de undă  $\lambda_0$  emise de o sursă aflată de asemenea *în repaus*, el va înregistra unde cu lungimea de undă

$$\lambda \neq \lambda_0$$

atunci când aceeași sursă se află *în mișcare* cu viteza  $\vec{v}$  (Figura (??)). Acest fenomen este cunoscut din mecanica clasică sub numele de efect Doppler [1]. Legătura între  $\lambda$  și  $\lambda_0$  este dependentă

de propagare a undei cu direcția de mișcare a nucleului

$$\lambda = \lambda_0 \left( 1 - \frac{v}{c} \cos(\phi) \right) \quad (1.8)$$

Deoarece pentru fotonii undelor electromagnetice care se propagă cu viteza  $c$ , lungimea de undă  $\lambda$  determină energia cuantelor

$$E_\gamma = h \frac{c}{\lambda}$$

se obține

$$E_\gamma = E_{\gamma 0} \left( 1 + \frac{v}{c} \cos(\phi) \right) \quad (1.9)$$

în care  $E_\gamma$  este energia cuantei, așa cum este măsurată de detectorul aflat în repaus în sistemul de referință al laboratorului (SL), iar  $E_{\gamma 0}$  este energia cuantei emise de nucleu. Așa cum am aratat în paragraful precedent, energia  $E_{\gamma 0}$  este diferită de energia  $E$  disponibilă în tranziție datorită efectului de recul. Combinarea efectelor Doppler și de recul conduce la următoarea relație între  $E$  și  $E_\gamma$

$$E_\gamma = \left( E - \frac{E^2}{2mc^2} \right) \left( 1 + \frac{v}{c} \cos(\phi) \right) \quad (1.10)$$

Lărgimea naturală a nivelelor nucleare care se dezexcită prompt (stabilită pe baza relațiilor fundamentale de nedeterminare timp - energie) induce o anumită lărgime naturală liniilor  $\gamma$ . În cazul domeniului energetic de interes pentru aplicații [ $10^{-7} - 10^{-2}$ ] eV, această lărgime este mult mai mică decât rezoluția energetică a instrumentelor de uz curent. Cu toate acestea, lărgimile aparente sunt mult mai mari datorită mișcării termice a nucleelor care produce efecte parazite de tipul "recul" și "Doppler". În lucrarea [10] se arată că pentru cazul în care nucleele emițătoare gamma se află în agitație termică, având o distribuție a vitezelor de tip Maxwell cu temperatura  $T$ , lărgimea Doppler -termică a liniilor gamma este

$$\Delta = 0.43 \times 10^{-6} E_\gamma \left( \frac{T}{A} \right)^{1/2} \text{ MeV} \quad (1.11)$$

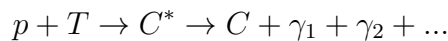
$\gamma$  fac parte din rețeaua cristalină a unui solid, temperatura  $T$  din relația anterioară se înlocuiește cu o temperatură efectivă  $T_{ef}$

$$\frac{T_{ef}}{T} = 3 \frac{T}{\theta} \int_0^{\theta/T} t^3 \left[ \frac{1}{e^t - 1} + \frac{1}{2} \right] dt \quad (1.12)$$

unde  $\theta$  este temperatura Debye a cristalului în care este înglobată sursa emițătoare  $\gamma$  [1].

### 1.3 Radiațiile $\gamma$ emise din captura radiativă ( $p, \gamma$ )

Reacțiile de captură radiativă ( $p, \gamma$ ) decurg prin mecanismul de nucleu compus. Protonul incident este captat de țintă formând nucleul compus la o energie de excitație egală cu energia cinetică disponibilă în centrul de masă plus energia de legatură a protonului în sistemul compus. În notație simbolică, o reacție ( $p, \gamma$ ) se reprezintă prin relația



Nucleul compus se dezexcită prin emisia unei cascade de radiații  $\gamma$ . La fiecare emisie  $\gamma$ , nucleul emițător capătă o anumită viteză de recul  $v$ , cu o valoare ce rezultă din ecuația (??)

$$v_r = \frac{E_\gamma}{m_C \cdot c} \quad (1.13)$$

dezexcitățile gamma succesive producând o distribuție medie a vitezelor nucleului compus. Această viteză de recul este în general neglijabilă comparativ cu viteza imprimată nucleului compus de către protonul incident. Considerând ciocnirea centrală, legea de conservare a impulsului de-a lungul axei oz (Figura ??) conduce la următoarea relație pentru viteza  $v$  a sistemului compus C

$$v = \frac{p}{m_c} = \frac{(2m_p K_p)^{1/2}}{m_c} \quad (1.14)$$

$\phi$ , așa cum rezultă din combinarea relațiilor (??), (??) și (??)

$$E_\gamma = \left( E - \frac{5.37 \times 10^{-4} E^2}{A_T} \right) \left( 1 + \frac{\sqrt{2m_p K_p}}{m_C c} \cos(\phi) \right) \quad (1.15)$$

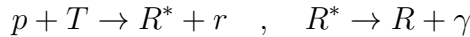
unde  $E$  este energia maximă disponibilă în tranziție radiativă și (b) reacții cu emisia de particule

Energia maximă este observată pe direcția "înainte", iar cea minimă pe direcția "înapoi". O linie gamma îngustă este observată la fiecare unghi, lărgimea ei fiind determinată de următoarele efecte: (i) dimensiunea finită a detectorului, (ii) efectul imprimării unei anumite viteze de recul, de către dezintegrări  $\gamma$  anterioare, (iii) lărgimea naturală a liniei, (iv) efectul Doppler cauzat de agitația termică

Relația (??) arată că reacțiile  $(p, \gamma)$  pe ținte ușoare pot fi folosite ca surse de radiație gamma cu energie variabilă, de interes practic.

## 1.4 Radiații $\gamma$ emise în reacțiile $(p, p'\gamma)$ și $(p, \alpha\gamma)$

Aceste procese fac parte din categoria mai generală a proceselor de *împrăștiere inelastică*, respectiv de *transfer*



Nucleele reziduale  $R^*$  sunt ejectate în toate direcțiile, având o anumită distribuție unghiulară. Aceasta face ca spectrul radiațiilor  $\gamma$  emise prin dezintegrarea lor să fie lărgit datorită efectului Doppler discutat anterior.

Energia cinetică a nucleului rezidual  $K_R$  se obține dintr-o relație similară cu relația (??) din Capitolul 3

$$K_R^{1/2} = \frac{(m_p m_R K_p)^{1/2}}{m_r + m_R} \cos(\varphi) \pm \frac{D^{1/2}}{m_r + m_R} \quad (1.16)$$

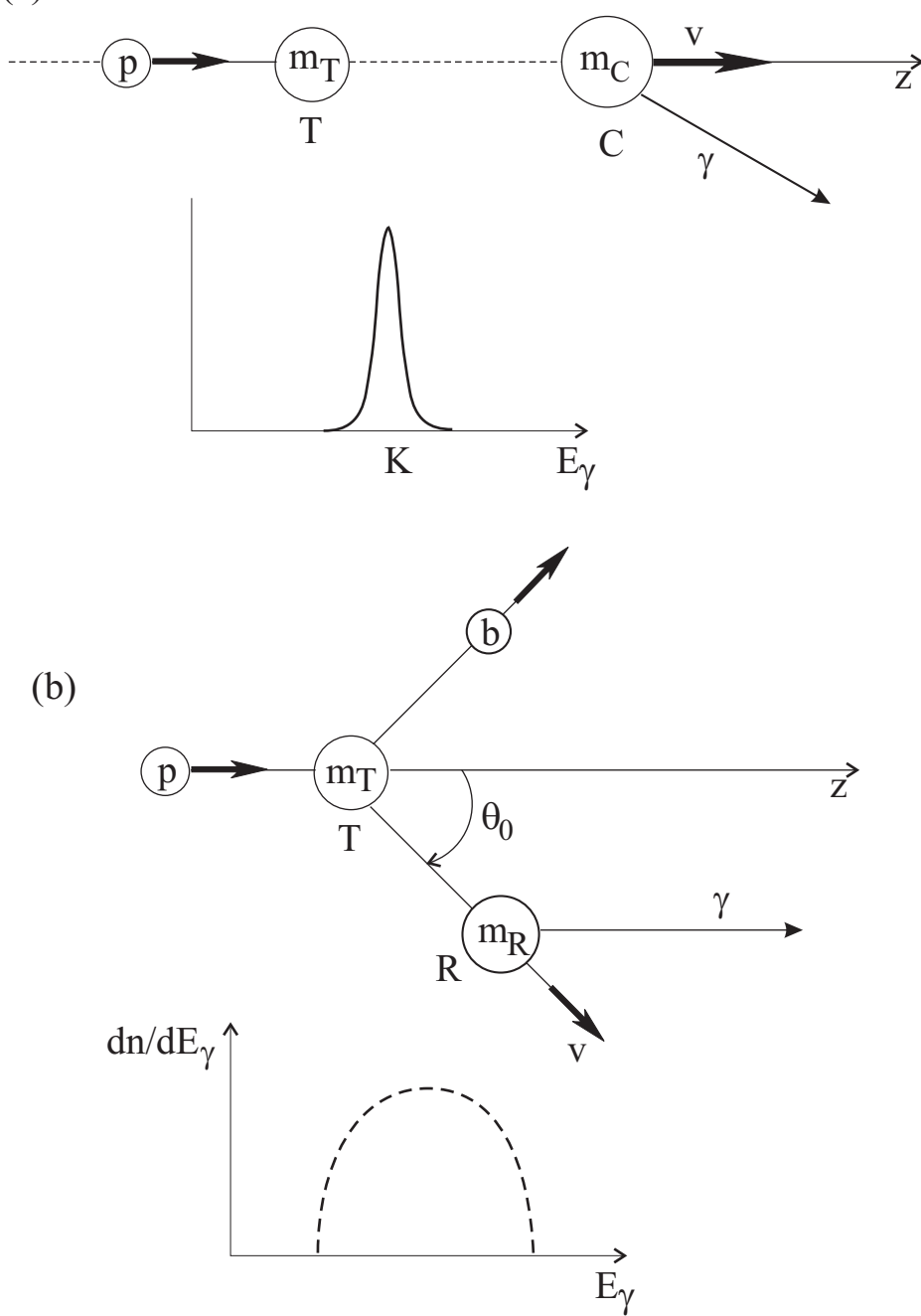


Figure 1.2: Distribuția energetică a produșilor de reacție pentru (a) captura radiativă și (b) reacții cu emisia de particule



$$D = m_p m_R K_p \cos^2(\varphi) + (m_r + m_R)[m_r Q + (m_r - m_p)K_p]$$

în care  $Q$  este căldura de reacție dată de diferența maselor între canalul de intrare și cel de ieșire.

Atunci când  $K_p > -Q m_r / (m_r - m_p)$  nucleul rezidual R poate fi emis în orice direcție și semnul *plus* trebuie folosit în relația (??). Dacă detectorul radiațiilor  $\gamma$  este așezat de-a lungul axei Oz (vezi Figura ??), spectrul  $\gamma$  înregistrat are o valoare maximă  $E_\gamma^{max}$  la  $\varphi = 0^\circ$  și o valoare minimă  $E_\gamma^{min}$  la  $\varphi = 180^\circ$ . Valorile corespunzătoare ale vitezelor sunt date de relația

$$v = \pm \left( \frac{2K_R}{m_R} \right)^{1/2} \quad (1.17)$$

$E_\gamma^{max}$  și  $E_\gamma^{min}$  sunt obținute prin aplicarea relației (??) particularizată pentru  $\phi = 0^\circ$

$$E_\gamma = \left( E - \frac{5.4 \times 10^{-4} E^2}{A} \right) \left( 1 + \frac{v}{c} \right) \quad (1.18)$$

În cazul în care  $K_p < -Q m_r / (m_r - m_p)$ , nucleul rezidual (care emite prin dezintegrare radiație  $\gamma$ ) este emis în emisfera centrată pe direcția "înainte" și ambele semne sunt permise în relația (??). Dacă detectorul de radiație gamma este poziționat de-a lungul axei Oz, spectrul are o energie maximă și o energie minimă pentru  $\varphi = 0^\circ$ ,  $E_\gamma^{max}$  corespunzând semnelui plus din relația (??), iar  $E_\gamma^{min}$  semnelui minus din aceeași relație.

În afara contribuției reculului, asupra distribuției energetice a radiațiilor gamma detectate, apar și efecte de ordinul doi cum sunt

1. Lărgimea naturală a liniei.
2. Efectul Doppler.
3. Unghiul solid finit al detectorului.
4. Reculul indus de dezexcitări gamma anterioare celei considerate.

mai sus, să considerăm cazul de interes practic al reacției nucleare  $^{15}\text{N}(p, \alpha\gamma)^{12}\text{C}$  indusă de protoni cu energia de 9 MeV. Din schema de nivele a nucleului  $^{12}\text{C}$  [8] rezultă valoarea energiei disponibile în tranziția de interes  $E=4.433$  MeV. Aranjamentul experimental necesar detecției radiațiilor gamma are detectorul cu scintilație așezat la  $0^\circ$  față de direcția protonilor incidenti. Procesele care conduc la emisia  $\gamma$  pot fi simbolzate prin ecuațiile

$$^{15}\text{N} + p \rightarrow ^{12}\text{C}^* + \alpha \quad (+0.531 \text{ MeV}) \quad (1.19)$$

$$^{12}\text{C}^* \rightarrow ^{12}\text{C} + \gamma \quad (+4.433 \text{ MeV}) \quad (1.20)$$

În notațiile din Figura ??b avem pentru acest caz concret

$$m_p = 1, \quad m_r = 4, \quad m_R = 12, \quad Q = 0.531, \quad K_p = 0.1, \quad \cos(\varphi) = 1$$

$$K_R^{1/2} = \frac{\pm 3.29 + 9.38}{16} = \begin{cases} 0.792 & (\text{maxim}) \\ 0.380 & (\text{minim}) \end{cases}$$

Utilizând unități convenabile în relația (??)

$$\frac{v}{c} = \pm \left( \frac{2}{937 \cdot m_R} K_R \right)^{1/2} \quad (1.21)$$

se obțin următoarele valori numerice extreme

$$\left( \frac{v}{c} \right)_{max} = 1.06 \cdot 10^{-2} \quad \left( \frac{v}{c} \right)_{min} = -5.0 \cdot 10^{-3}$$

Din aceste valori, prin aplicarea relației (??) rezultă

$$E_\gamma^{max} = 4.480 \text{ MeV} \quad , \quad E_\gamma^{min} = 4.410 \text{ MeV}$$

Datorită vitezei căpătate de nucleul rezidual, spectrul  $\gamma$  are o lărgime totală de 70 keV.

Alte efecte Doppler produc lărgimi ale spectrului care sunt cu multe ordine de mărime mai mici. Spre exemplu, efectul Doppler indus de agitația termică produce o lărgire a spectrului dată de relația (??) cu  $T=300$  K,  $A=12$ ,  $E_\gamma = 4430$  keV,  $\Delta = 9.5 \times 10^{-3}$  keV.

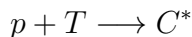
# emisie de radiație gamma

Mecanismele de producere a acestor reacții se încadrează în clasificarea generală descrisă în Capitolul 3. Ele determină atât mărimea secțiunii eficace de interacție, cât și forma distribuțiilor unghiulare și energetice ale produșilor de reacție detectați. Așadar pentru o anumită aplicație, este deosebit de importantă cunoașterea ponderilor diferitelor mecanisme de reacție pentru a putea face predicții asupra observabilelor măsurate.

## 1.5.1 Absorbția directă și reacțiile rezonante

### I. Captura radiativă

Interesante din punctul de vedere a utilizării lor ca metode de analiză, sunt reacțiile de captură radiativă induse de particule accelerate. În acest tip de reacții, în canalul de ieșire se emite exclusiv radiație  $\gamma$ . Reacțiile de captură radiativă ale protonilor ( $p, \gamma$ ) au secțiuni eficace ridicate și sunt bine izolate, atunci când ținta este un nucleu ușor și energia incidentă este sub valoarea de prag a emisiei particulelor din sistemul compus. Pentru reacția



nucleul compus  $C^*$  este produs într-o stare cu energie de excitație ridicată  $E_C^*$ :

$$E_C^* = \frac{1}{1 + m_p/m_T} K_p \quad (+Q) \quad (1.22)$$

Atunci când  $E_C^*$  este mult diferită de energia unei stări legate în sistemul compus  $C$ , avem de-a face cu procesul denumit *absorbție directă*. Acest proces este observat la energii foarte joase ale protonilor care bombardează ținte ușoare ( $Z < 20$ ). Acest mecanism este caracterizat de secțiuni eficace mici, care au o dependență slabă de energie.

În cazul în care  $E_C^*$  ajunge în apropierea unei stări legate din nucleul compus  $C$ , fenomenul de absorbție crește brusc ca intensitate, având loc un proces care se numește *absorbție rezonantă*. Starea înalt excitată a nucleului compus se dezintegrează

de energie joasă. Spectrul radițiilor  $\gamma$  conține în mod uzual câteva picuri de absorbție totală corespunzătoare acestor tranziții. Secțiunea eficace  $\sigma(K)$  pentru emisia radiației  $\gamma$  este de tip Breit - Wigner [5] și, conform celor discutate în Capitolul 3, are forma

$$\sigma_{p,\gamma}(K) = \pi\lambda^2 g \frac{\Gamma_p \Gamma_\gamma}{(K - E_R)^2 + \Gamma^2/4} \quad \text{barni} \quad (1.23)$$

unde  $K$  reprezintă notația pentru energia cinetică a protonului incident.

Relația anterioară reprezintă secțiunea eficace *totală* pentru captura radiativă a protonului. În aplicațiile practice, detectorul pentru radiații  $\gamma$  este poziționat la un anumit unghi  $\theta$ , acoperind un unghi solid  $\Delta\Omega$ , ceea ce face necesară introducerea în relația anterioară a unui factor care să țină cont de distribuția unghiulară a radiației emise. În mod practic, aceasta se face prin următorul tip de parametrizare a relației (??)

$$\sigma(K, \theta) = \sigma_0(\theta) \frac{1}{\left(\frac{K - E_R}{\Gamma/2}\right)^2 + 1} \quad \text{barni/steradian} \quad (1.24)$$

unde  $\sigma_0(\theta)$  este secțiunea eficace la rezonanță, în a cărei evaluare se ia în considerare factorul unghiular care depinde de poziția detectorului. În relațiile (??) și (??),  $E_R$  este energia rezonanței, iar  $\Gamma$  este lărgimea sa la semiînălțime (FWHM), ambele în sistemul de referință al laboratorului. Pentru reacțiile de interes practic,  $E_R$  și  $\Gamma$  sunt tabelati în ref.[10]. Curbele  $\sigma(K, \theta)$  se obțin experimental prin bombardarea unei ținte subțiri cu protoni de diverse energii în jurul energiei de rezonanță  $E_R$ . Intensitatea radiației gamma detectate se poate reprezenta grafic în funcție de energia protonilor  $K$ . Pentru acest tip de măsurători, grosimea ținte trebuie să fie mică pentru a evita degradarea spectrului energetic al protonilor, asigurându-se condiția  $\Delta K \ll \Gamma$ .

### Exemple

(a) Reacții de captură directă

$$p + n \rightarrow d^* + \gamma, \quad Q = 2.224 \text{ MeV}, \quad E_\gamma = 2.224 + \frac{1}{2}K_p(\theta = 90^\circ)$$

Reacția a doua este utilizată la calibrarea în energie a acceleratoarelor, prin măsurători de radiație gamma.

(b) Reacții rezonante

Determinarea profilului de concentrație (în adâncimea materialului) pentru  $^{27}\text{Al}$  și  $^{31}\text{P}$  se poate face la un accelerator de particule folosind următoarele reacții rezonante

$$^{27}\text{Al}+p \rightarrow ^{28}\text{Si}+\gamma, \quad E_R = 991.8 \text{ MeV}, \quad \Gamma = 0.1 \text{ keV}, \quad E_\gamma = 1778.7 \text{ keV}$$

$$^{31}\text{P}+p \rightarrow ^{32}\text{S}+\gamma, \quad E_R = 811.3 \text{ keV}, \quad \Gamma = 0.45 \text{ keV}, \quad E_\gamma = 2237.0 \text{ keV}$$

## II. Alte reacții rezonante

Alte reacții rezonante implică emisia unei particule încărcate sau a unui neutron, alături de radiația  $\gamma$  în canalul de ieșire. Pentru nuclee ușoare ( $Z < 20$ ), bariera Coulomb are înălțime redusă și un număr mare de reacții pot avea loc:  $(p, p'\gamma)$ ,  $(p, \alpha\gamma)$ ,  $(p, n\gamma)$ ,  $(d, p\gamma)$ ,  $(d, n\gamma)$ ,  $(^3\text{He}, p\gamma)$ ,  $(\alpha, n\gamma)$ , toate aceste reacții au secțiuni mari de producere, și de aceea sunt de interes pentru analiza elementală.

Pentru reacțiile induse de protoni, secțiunile au un puternic caracter rezonant dar și o componentă mică directă poate fi superimpusă peste forma tipică Breit-Wigner pentru secțiunea eficace de interacție.

În cazul împrăștierii inelastice  $(p, p')$ , secțiunea eficace pentru emisia de protoni are forma

$$\sigma_{pp'}(K) = \pi\lambda^2 g \frac{\Gamma_p \Gamma_{p'}}{(K - E_R)^2 + \Gamma^2/4} \quad [\text{b}] \quad (1.25)$$

În cazul reacțiilor cu transfer  $(p, \alpha)$ , secțiunea eficace pentru emisia  $\alpha$  are forma [10]

$$\sigma_{p\alpha}(K) = \pi\lambda^2 g \frac{\Gamma_p \Gamma_\alpha}{(K - E_R)^2 + \Gamma^2/4} \quad [\text{b}] \quad (1.26)$$

groase prin detecția razelor  $\gamma$  prompte

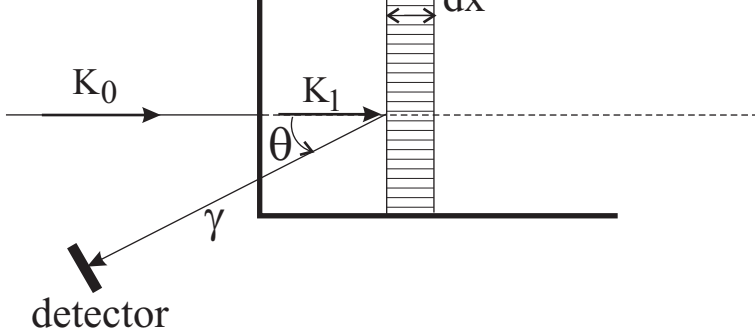


Figure 1.3: Geometria de iradiere și cea de detecție pentru analiza probelor groase prin detecția razelor  $\gamma$  prompte

Așa cum se poate vedea din Figura ??, odată cu creșterea energiei proiectilului  $K$ , se suprapun tot mai multe rezonanțe, secțiunea eficace medie având un aspect continuu.

Secțiunea eficace pentru emisiile radițiilor gamma are de asemenea o comportare rezonantă și, la fel ca în cazul reacțiilor de captură radiativă, parametrizarea lor se face luând în considerare distribuția unghiulară a produșilor de reacție și a radiației gamma

$$\sigma(K, \theta) = \sigma_0(\theta) \frac{1}{\left(\frac{K-E_R}{\Gamma/2}\right)^2 + 1} \quad [ \text{b/str} ] \quad (1.27)$$

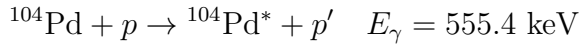
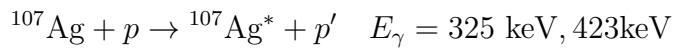
unde  $\sigma_0(\theta)$  reprezintă secțiunea eficace măsurată la energia de rezonanță ( $K = E_R$ ) de către un detector situat la unghiul  $\theta$ .

La energii peste prag, secțiunea eficace a reacțiilor ( $p, n$ ) crește foarte rapid, inhibând toate celelalte procese cu care se află în competiție.

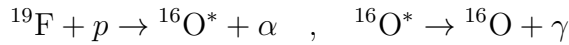
În cazul în care nucleul țintă are masă mare (implicit numărul atomic  $Z$  este mare), secțiunea de formare a nucleului compus este mică la energii mai mici decât bariera Coulomb. Singura reacție importantă indusă de protonii de energie joasă este împrăștierea Coulomb ( $p, p'\gamma$ ).

### Exemple

Detectarea urmelor de Pd și Ag în cele mai diverse probe poate fi făcută cu ajutorul excitației Coulomb a protonilor cu energia de



Detecția urmelor de F în probele solide se face în mod frecvent cu ajutorul următoarei reacții rezonante



cu parametrii

$$Q = 1.984 \text{ MeV}, \quad E_\gamma = 6.131 \text{ MeV}, \quad E_R = 0.872 \text{ MeV}, \quad \Gamma_R = 4.5 \text{ keV}$$

## 1.5.2 Reacții fotonucleare

Reacții nucleare pot fi de asemenea induse de către fotonii de energii mari. Acești fotoni sunt produși de către surse radioactive, reacții nucleare sau de către radiația de frânare a electronilor care se mișcă pe traiectorii accelerate (bremsstrahlung).

Producția de reacție pot emite la rândul lor radiații gamma caracteristice prompte sau întârziate prin excitarea unor stări izomere. În mod generic, toate reacțiile nucleare induse de către fotoni poartă numele de reacții fotonucleare. După mecanismul de evoluție, cele mai importante reacții fotonucleare se clasifică astfel

- **Împrăștierea Thomson**

La energii mici ale fotonului incident, unda asociată are o întindere spațială mare, interacționând cu nucleul țintă în ansamblul său. În urma interacției, fotonul incident este împrăștiat elastic. Acest proces, numit împrăștierea Thomson, are un caracter dipolar electric. Secțiunea eficace a procesului este cu multe ordine de mărime mai mică decât secțiunea de interacție cu electronii din atom.

- **Împrăștierea cu emisie fluorescentă**

Nivelele nucleare pot fi excitate prin absorbția radiațiilor  $\gamma$ ,

rezonant fiind dată de relația (??)

$$E_{\gamma}^i = E \left( 1 + \frac{1}{2Mc^2} \right) \quad (1.28)$$

$E$  fiind energia de excitare a nivelului nuclear, iar  $M$  masa nucleului absorbant.

După excitare, nivelul nuclear se dezintegrează pe starea fundamentală prin emisia unei cuante  $\gamma$  cu energia

$$E_{\gamma}^f = E \left( 1 - \frac{E}{2Mc^2} \right) \quad (1.29)$$

Diferența de energie între  $E_{\gamma}^i$  și  $E_{\gamma}^f$  este  $E/Mc^2$  și are o valoare mult mai mare decât lărgimea naturală a nivelelor nucleare joase. Așadar, datorită acestei diferențe energetice nu este posibilă fluorescența într-un izotop folosind radiații  $\gamma$  emise de același izotop. Compensarea acestei diferențe se poate face mecanic (în tehnicile Mössbauer) sau folosind dezintegrări radioactive  $\alpha$  și  $\beta$  care precedă emisia  $\gamma$ . În multe aplicații practice se utilizează o sursă de radiație gamma care are un spectru de emisie continuu (surse bremsstrahlung). Din spectrul incident numai porțiunea corespunzătoare formulei (??) este activă în excitarea unui anumit nivel nuclear. Linia de absorbție  $N(E)$  are o formă Breit-Wigner, lărgimea naturală fiind puternic marită de către efectul Doppler al agitației termice. Secțiunea eficace de fluorescență în cazul excitării produse de o sursă gamma cu spectru energetic larg este [10]

$$\sigma(E) = \frac{g_2}{g_1} \frac{2.53}{E^2 \tau} \frac{N(E)}{N} \quad [b] \quad (1.30)$$

unde  $E$  este energia radiației  $\gamma$  (în MeV),  $\tau$  timpul de înjumătățire al nivelului (în picosecunde),  $N(E)/N$  reprezintă fracțiunea din spectrul  $\gamma$  care produce fluorescență rezonantă iar  $g_1$  și  $g_2$  sunt factorii statistici pentru starea fundamentală și respectiv starea excitată. Dacă  $J_1$  și  $J_2$  sunt spinii stării fundamentale, respectiv al stării excitate, atunci  $g_1 = 2J_1 + 1$  și  $g_2 = 2J_2 + 1$ . Atunci când radiația excitantă este produsă



este o cameră de reacție montată la extremitatea unui tub de accelerare. Atunci când este o sursă gamma izotopică, ea este plasată într-o incintă închisă, convenabil aleasă din punctul de vedere a ecranării și protecției biologice. Detectorul pentru radiația de fluorescență este un scintilator sau cristal GeHP montat la un unghi bine precizat și măsurabil, fiind ecranat cu plumb împotriva vizării directe a sursei de radiații incidente.

- **Reacții fotonucleare cu producere de particule**

În reacțiile fotonucleare se pot produce particule (protoni, neutroni, alfa, etc...) dacă energia radiațiilor incidente este suficient de mare pentru a depăși energia lor de legătură în nucleul țintă. Mecanismul de producere poate fi de proces direct sau de excitare - evaporare. Schematic acest proces poate fi reprezentat astfel



Căldura de reacție  $Q$  pentru acest proces este egală cu energia de legătură a ejectilului  $r$  în ținta  $R$  și este negativă pentru nucleele țintă stabile.

Rezonanțele gigant în nucleele medii-grele își ating maximum între 12 și 25 MeV. Prin urmare un flux  $\gamma$  având un spectru energetic larg între 0-30 MeV poate excita aceste rezonanțe gigant care se pot dezintegra prin emisia de protoni și neutroni. În dezintegrarea rezonanței gigant dipolare, dominante sunt procesele  $(\gamma, n)$ ,  $(\gamma, 2n)$  și  $(\gamma, pn)$ . Atunci când nucleul rezidual  $R$  evoluează spre o stare cu timp de viață lung, procesul se numește fotoactivare și metodele corespunzătoare de analiză sunt cele prezentate în Capitolul 11. În scopul detectării nucleelor ușoare ( $^{12}\text{C}$ ,  $^{14}\text{N}$ ,  $^{16}\text{O}$ ,  $^{19}\text{F}$ ) fotoactivarea este o tehnică de interes deosebit datorită secțiunilor sale eficace mari [10].

### **Exemple de reacții fotonucleare de interes practic**

Detecția urmelor de carbon în probe de oțel poate fi făcută prin

$$^{12}\text{C}(\gamma, n)^{11}\text{C}, \quad E_{\text{prag}} = 18.7 \text{ MeV}$$

$^{11}\text{C}$  fiind un emițător  $\beta^+$  cu  $T_{1/2} = 20.3$  minute. Sunt posibile următoarele interferențe:

$$^{14}\text{N}(\gamma, t)^{11}\text{C}, \quad E_{\text{prag}} = 22.7 \text{ MeV}$$

$$^{16}\text{O}(\gamma, \alpha n)^{11}\text{C}, \quad E_{\text{prag}} = 26.0 \text{ MeV}$$

care pot afecta precizia determinării concentrației de  $^{12}\text{C}$  dacă rapoartele secțiunilor eficace ale celor 3 procese de mai sus nu sunt bine cunoscute.

## 1.6 Efectul unei ținte groase

În procesul de analiză elementală prin folosirea de particule încărcate, de multe ori grosimea probei este mai mare decât parcursul particulelor incidente. Intensitatea de producere a reacțiilor nucleare de către fasciculul incident depinde evident de secțiunea eficace de interacție care la rândul ei depinde de energia la care are loc procesul de interacție. Ca urmare, distribuția de energie a fasciculului incident în proba va fi determinantă pentru intensitatea proceselor de interacție în probă. Procesele de stopare care determină această distribuție au fost prezentate în Capitolul 5, incluzând formulele practice pentru împrăștierea energetică (straggling).

Fasciculele de particule încărcate produse de acceleratori au o anumită distribuție energetică rezultată în urma unui parcurs tipic de generare în sursa de ioni, accelerare, analiză magnetică și focalizare pe ținta. O primă aproximație rezonabilă pentru această distribuție energetică este cea Gaussiană [33]

$$b(K_0, K) = \frac{1}{\delta\sqrt{2\pi}} e^{-\frac{(K-K_0)^2}{2\delta^2}} \quad (1.32)$$

unde  $K_0$  este energia incidentă medie, iar lărgimea la semiînălțime a distribuției energetice a fasciculului incident (FWHM) este egal cu  $\Delta = 2.355 \delta$ .

culului incident care penetrează suprafața probei capătă rapid o distribuție statistică în energie. Pentru adâncimi mici de penetrare această distribuție este dată de modelul Vavilov [22] iar pentru adâncimi mari forma Gaussiană este cea mai apropiată de realitate. În ambele modele, distribuția se descrie printr-o funcție  $f(K, K_1, x)$  care reprezintă densitatea de probabilitate pentru o particulă cu energia (cinetică)  $K$  la suprafața probei să aibă energia  $K_1$  la adâncimea  $x$ ,  $K_1$  fiind energia cu care particula intră în reacția nucleară vizată pentru analiză.

Să considerăm în continuare că particula incidentă "p" interacționează prin procese nucleare cu nucleul "T" aflat în proba care este bombardată. Mai presupunem că atomii de tip "T" se află în concentrație suficient de redusă în probă încât nu afectează procesul de stopare. Acest scenariu este tipic pentru cazurile reale în care se urmărește detectarea unor "urme" ale unui anumit element într-o probă alcătuită în mod dominant din alte elemente sau specii izotopice.

*Concentrația izotopică* este dată de  $c f_T$  unde  $c$  este *concentrația atomică* a elementului chimic la care aparțin nucleele țintă ( $T$ ) iar  $f_T$  *abundența izotopică* a izotopului de tip  $T$ . Ea este legată de *densitatea izotopică*  $\rho_T$  (numărul de nuclei de tip "T" pe gram) prin relația

$$\rho_T = c f_T \frac{\aleph}{A_T} \quad [ \text{gram}^{-1} ] \quad (1.33)$$

unde  $\aleph$  este numărul Avogadro iar  $A_T$  masa atomică a izotopului  $T$ .

Dacă considerăm fasciculul incident ca fiind normal pe probă atunci intensitatea radiației  $\gamma$  emise în urma reacțiilor nucleare dintre fasciculul incident și nucleele de tip  $T$  aflate în probă are următoarea formă generală [10]

$$Y(K_0) = \frac{\aleph f_T}{A_T} \int_{x=0}^{\infty} \int_{K=0}^{\infty} \int_{K_1=0}^{\infty} c(x) b(K_0, K) f(K, K_1, x) \sigma(K_1) e^{-\frac{\mu x}{\cos(\theta)}} dx dK dK_1 \quad (1.34)$$

unde

$Y(K_0)$  – rata de reacție pentru o probă groasă (cu grosimea mai

$\sigma(K_1)$  – secțiunea eficace pentru emisia radiației  $\gamma$  la un unghi fixat prin alegerea poziției detectorului (Figura ??)

Factorul exponențial reprezintă absorbția radiației  $\gamma$  în probă (acest factor este de obicei neglijabil pentru radiațiile gamma cu energii de ordinul sutelor de keV sau MeV).

Numărul total de cuante gamma detectate în perioada de măsură  $N_t$  depinde de numărul total de particule incidente în acest interval  $N_0$ , de  $Y(K_0)$  și de eficiența totală de detecție (intrinsecă și geometrică)  $\epsilon$

$$N_t(K_0) = Y(K_0) \epsilon N_0 \quad (1.35)$$

Forma finală a funcției  $Y(K_0)$  depinde puternic de secțiunea eficace  $\sigma(K_1)$  care înglobează în expresia sa mecanismul de reacție particular.

### (I). Reactii non-rezonante

În acest caz  $\sigma(K_1)$  are o variație lentă cu energia. Este cazul reacțiilor ( $p, p'\gamma$ ) pe elementele grele. Drept urmare efectul degradării energiei fasciculului datorită stopării în probă poate fi neglijat și expresia (??) devine

$$Y(K_0) = \frac{\aleph f_T}{A_T} \int_{K_1=0}^{K_0} \frac{c(x)\sigma(K_1)}{S(K_1)} dK_1 \quad (1.36)$$

unde  $S(K_1)$  este *puterea de stopare* a materialului probei la energia  $K_1$  iar  $x$  este obținut din relația

$$x = \int_K^1 \frac{d\epsilon}{S(\epsilon)} \quad \text{g} \cdot \text{cm}^{-2}$$

Dacă concentrația  $c(x)$  este constantă ( $= c$ ) atunci

$$Y(K_0) = \frac{\aleph f_T \cdot c}{A_T} \int_0^{K_0} \frac{\sigma(K_1)}{S(K_1)} dK_1 \quad (1.37)$$

Această relație arată că intensitatea câmpului de radiație  $\gamma$  este proporțional cu inversul puterii de stopare  $S^{-1}(K)$  favorizând proiectilele cu putere de stopare mică cum sunt protonii, deuteronii, tritonii sau particulele alfa.

Pentru aceste reacții secțiunea eficace este dată de relația (??)

$$\sigma(K_1) = \sigma_0 \frac{\Gamma^2/4}{(K_1 - E_R)^2 + \Gamma^2/4} \quad (1.38)$$

unde  $E_R$  este energia rezonanței iar  $\Gamma$  este FWHM în sistemul laboratorului.

Atunci când  $\Gamma$  este mare ( de exemplu 4 keV pentru protoni cu energia de 1 MeV), distribuția energetică a fasciculului în probă în timpul stopării este de tip Gaussian. Lărgimea efectivă a rezonanței  $\Gamma$  va fi rezultatul contribuției a 2 efecte:

(i). lărgimea energetică a fasciculului produsă de procesele de accelerare și focalizare

(ii). împrăștierea în energie datorată procesului de stopare

Aceste două efecte pot fi contopite într-o singură curbă de tip Gauss

$$F(K_0, K_1, x) \simeq \frac{1}{1.06\Gamma_t} e^{-\frac{(K_0 - K_1 - \Delta_b)^2}{0.36\Gamma_t^2}} \quad (1.39)$$

unde  $\Gamma_t$  este lărgimea totală

$$\Gamma_t = \sqrt{\left(\Delta_b^2 + 0.86z^2 \frac{Z}{A}\right) x} \quad [ \text{MeV} ] \quad (1.40)$$

iar intensitatea emisiei  $\gamma$  devine

$$Y(K_0) = \frac{\aleph f_T}{A_T} \int_{x=0}^D \int_{K_1=0}^{\infty} c(x) F(K_0, K_1, x) \sigma(K_1) dK_1 dx \quad (1.41)$$

aceasta fiind relația de bază în determinarea profilului concentrației  $c(x)$  prin reacții rezonante. În această tehnică intensitatea  $Y(K_0)$  este măsurată pentru valori ale lui  $K_0$  localizate în jurul energiei de rezonanță  $E_R$  iar  $c(x)$  este obținut prin deconvoluție numerică a ecuației integrale (??).

## 1.7 Analiza elementală pentru probe subțiri

În Capitolul 6 s-a arătat că determinarea urmelor de elemente în straturile din imediata vecinătate a suprafeței unui solid se poate

sensibilă în cazul elementelor grele dar este lipsită de efectivitate în cazul elementelor ușoare. Pentru elemente situate între Li și P o metodă de analiză eficace este aceea a reacțiilor rezonante discutată în secțiunile anterioare din acest capitol. În continuare ne propunem particularizarea metodei reacțiilor rezonante pentru cazul determinării de urme în straturi subtiri (100-2000 Å) straturi localizate în imediata vecinătate a suprafeței probei de studiat.

O secțiune de grosime  $dx$  din proba de analizat emite  $dN$  raze  $\gamma$  într-o anumită perioadă de timp stabilită pentru colectarea datelor primare necesare analizei

$$dN = N_0 \sigma(K_1) dn \quad (1.42)$$

unde  $N_0$  este numărul de particule incidente pe probă (în aceeași perioadă de măsură considerată),  $K_1$  este energia fascicului incident la adâncimea  $x$  în probă (straggling-ul este neglijabil),  $dx$  este elementul de grosime al materialului (în unități "gram  $\text{cm}^{-2}$ " iar  $dn$  numărul de nuclee din specia "T" pe  $\text{cm}^2$  de material la adâncimea  $x$ .

$$dn = \frac{cf_T}{A_T} \epsilon dx, \quad \text{unde } dx = \frac{dK_1}{S(K_1)} \quad (1.43)$$

atunci numărul razelor  $\gamma$  detectate dintr-un strat de grosime  $\Delta x$  în care fasciculus incident pierde energia  $\Delta K$  devine

$$N(K_0) = \frac{cf_T}{A_T} \epsilon N_0 \int_{K_0 - \Delta K}^{K_0} \frac{\sigma(K_1)}{S(K_1)} dK_1 \quad (1.44)$$

Pentru cazul unei rezonanțe înguste,  $\sigma(K_1)$  este o funcție nenulă numai într-un domeniu mic de energie situat în jurul lui  $E_R$ . Puterea de stopare este practic constantă în acest interval energetic. Așadar

$$S(K_1) \simeq S(E_R) \quad (1.45)$$

$$\sigma(K_1) = \sigma_0 \frac{1}{1 + \left(\frac{K_1 - E_R}{\Gamma/2}\right)^2} \quad (1.46)$$

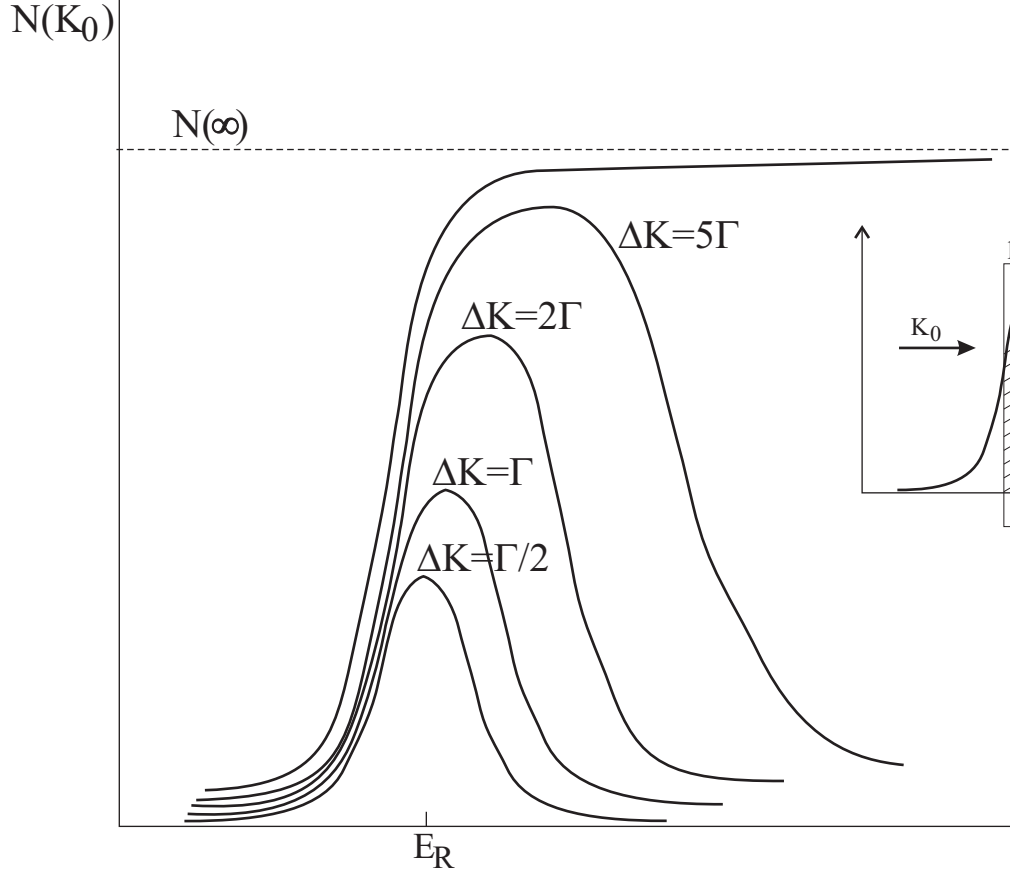


Figure 1.4: Intensitatea radiației gamma emisă dintr-o reacție rezonantă

făcând posibilă integrarea expresiei (??)

$$N(K_0) = \frac{c f_T \aleph \sigma \Gamma \epsilon N_0}{2 A_T S(E_R)} \left[ \tan^{-1} \frac{K_1 - E_R}{\Gamma/2} \right]_{K_0 - \Delta K}^{K_0} \quad (1.47)$$

Dependența lui  $N(K_0)$  din ecuația (??) de raportul valorilor  $\Delta K$  și  $\Gamma$  este prezentat în Figura ???. Se observă că aceste curbe sunt simetrice în jurul maximumului la energia

$$K = E_R + \frac{\Delta K}{2}$$

lărgimea curbei crește ajungând să aibă o formă de funcție treaptă netezită. Este importantă de reținut pentru aplicații expresia ei asimptotică care se obține pentru

$$\frac{K - E_R}{\Gamma/2} \gg 1$$

și are expresia

$$N(\infty) = \frac{\pi c f_T}{2 A_T} \times \frac{\Gamma}{S(E_R)} \epsilon N_0 \quad (1.48)$$

formulă care arată că se poate obține valoarea concentrației "c" dintr-o singură măsurătoare  $N(\infty)$  făcută la o valoare a energiei incidente mult deasupra valorii rezonanței ( $K_0 > E_R + 5\Gamma$ ). În plus, valoarea obținută nu depinde de efectele de împrăștiere în energie.

Secțiunea eficace pentru cazul în care "urmele" sunt constituite din elemente ușoare prezintă o succesiune de rezonanțe pe măsura ce crește energia fascicului incident. Intensitatea radiației gamma produse atunci când proba în care se află "urmele" este groasă constituie o suprapunere de trepte, fiecare treaptă corespunzând unei anumite rezonanțe. Odată cu creșterea energiei particulelor incidente numărul rezonanțelor crește iar succesiunea de trepte caracteristică funcției de excitație a intensității radiațiilor gamma devine o curbă continuă. În Figura ?? este reprezentată grafic funcția de excitație a intensității radiațiilor  $\gamma$  pentru reacția rezonantă  $^{35}\text{Cl}(p, \gamma)$  având ca scop determinarea clorului aflat într-o probă groasă.

dintr-o probă groasă. Se observă efectele rezonanțelor tipice pentru nucleele ușoare

Reacțiile nucleare sunt produse de protoni pe un nucleu de masă medie. Forma crescătoare continuu al funcțiilor de excitație este tipică excitației Coulomb



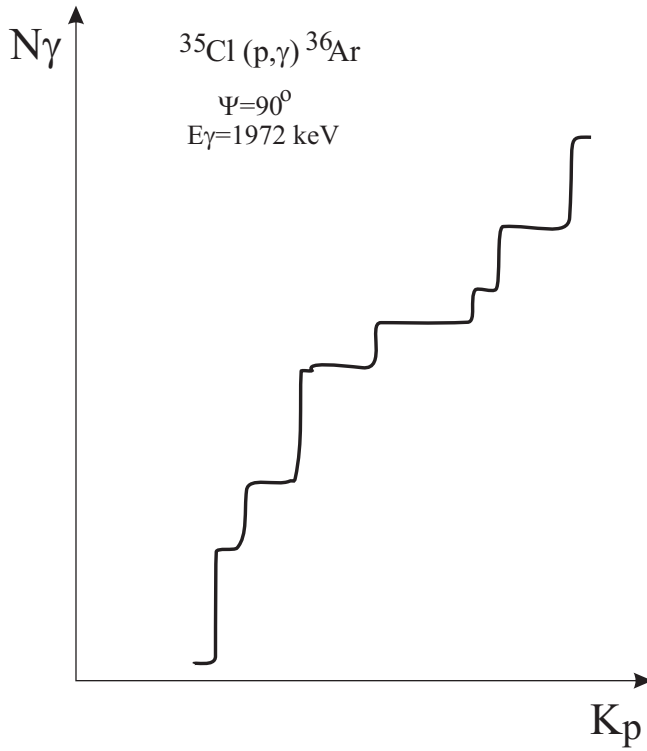


Figure 1.5: Funcția de excitație pentru razele  $\gamma$  prompte provenite dintr-o probă groasă. Se observă efectele rezonanțelor tipice pentru nucleele ușoare

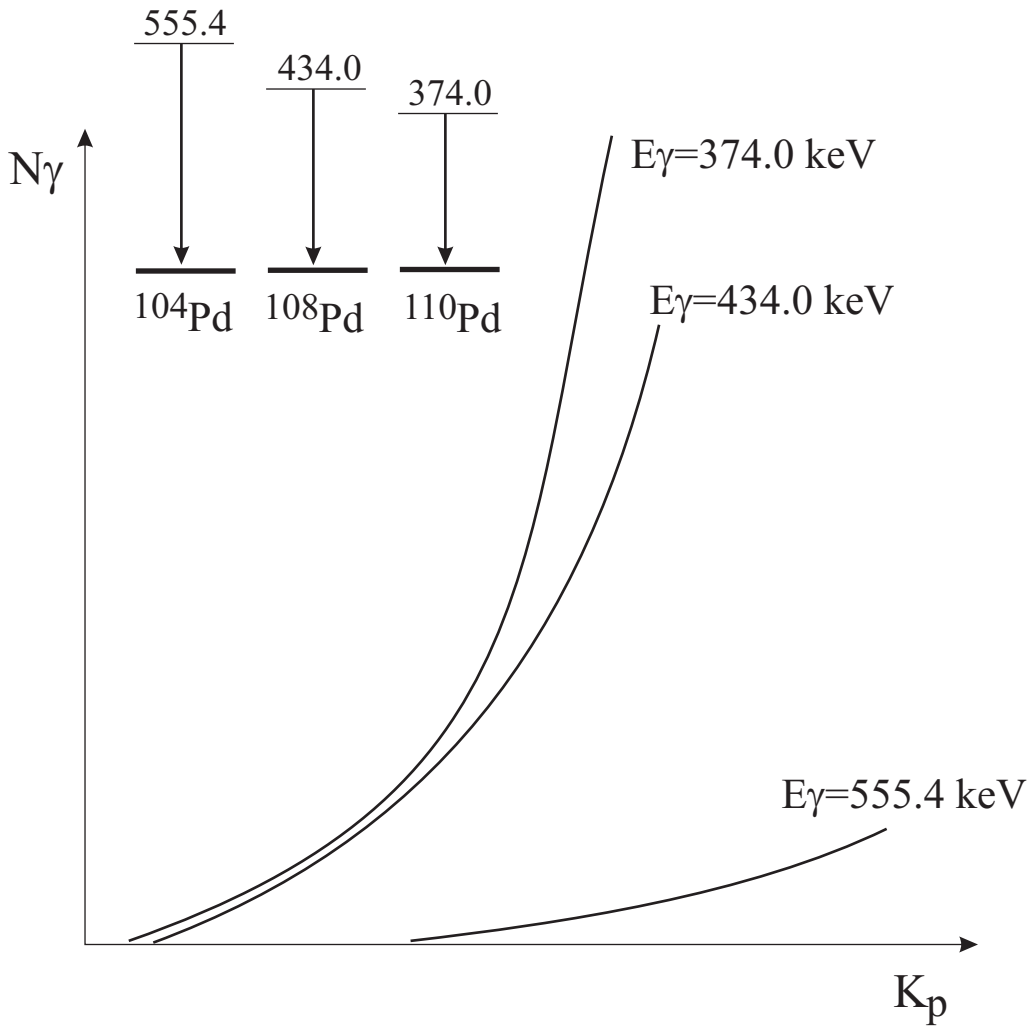
$^{104,108,110}\text{Pd}(p,p'\gamma)$ 

Figure 1.6: Funcția de excitație pentru razele  $\gamma$  provenite dintr-o probă groasă. Reacțiile nucleare sunt produse de protoni pe un nucleu de masă medie. Forma crescătoare continuu al funcțiilor de excitație este tipică excitației Coulomb

, intensitatea câmpului radiațiilor gamma pentru o probă groasă este o funcție crescătoare de energia incidentă. Un exemplu este prezentat în Figura ?? în care funcția de excitație a radiațiilor  $\gamma$  este prezentată pentru cazul împrăștierii Coulomb pe o probă care conține izotopii naturali ai Pd.

Atunci când energia incidentă  $K_0$  este mult mai mare decât energia de rezonanță  $K_0 - E_R > 5\Gamma$ , numărul de raze gamma provenite dintr-o singură rezonanță este dat de (??)

$$N(\infty) = (\epsilon N_b f_T c) (\sigma \Gamma) \frac{\aleph \pi}{2 A_T S(E_R)} \quad (1.49)$$

Numărul  $N(\infty)$  al razelor  $\gamma$  detectate corespunzătoare unei singure rezonanțe este proporțional așadar cu produsul  $(\Gamma \sigma)$ .

În practică, poziția relativă a probei și detectorului rămân fixe în cursul unei serii de măsurători. Aceasta implică faptul că eficacitatea totală  $\epsilon$  ca și secțiunea eficace  $\sigma$  rămân constante pentru o anumită reacție, indiferent de proba măsurată.  $\aleph$  și  $A_T$  sunt constante iar  $S(E_R)$  depinde de structura materialului fiecărei probe și trebuie calculat sau măsurat pentru fiecare probă în parte.

Determinarea parametrului nuclear  $(\sigma \Gamma)$  se poate face prin măsurarea lui  $N(\infty)$  pentru o probă de referință având o compoziție cunoscută

$$\sigma \Gamma = N(\infty) \frac{2 A_T S(E_R)}{\epsilon N_0 f_T \aleph \pi c} \quad [\text{MeV} \cdot \text{cm}^2 \cdot \text{sterad}^{-1}] \quad (1.50)$$

parametrul  $(\sigma \Gamma)$  poate fi obținut pentru fiecare rezonanță dintr-o țintă groasă prin măsurarea lui  $N(\infty)$ .

din reacții rezonante. (a) Funcția de excitație a razelor  $\gamma$  pentru un strat subțire și energia în jurul energiei de rezonanță  $E_R$ . (b) determinarea lui  $N(\infty)$  pe o probă standard

Concentrația  $c$  a unui atom ușor într-un strat subțire de grosime  $\Delta x$  se măsoară prin inducerea unor reacții rezonante într-un izotop al acestei specii nucleare. Pentru a avea precizie în determinare, energia pierdută de către proton în acest strat  $\Delta K$  trebuie

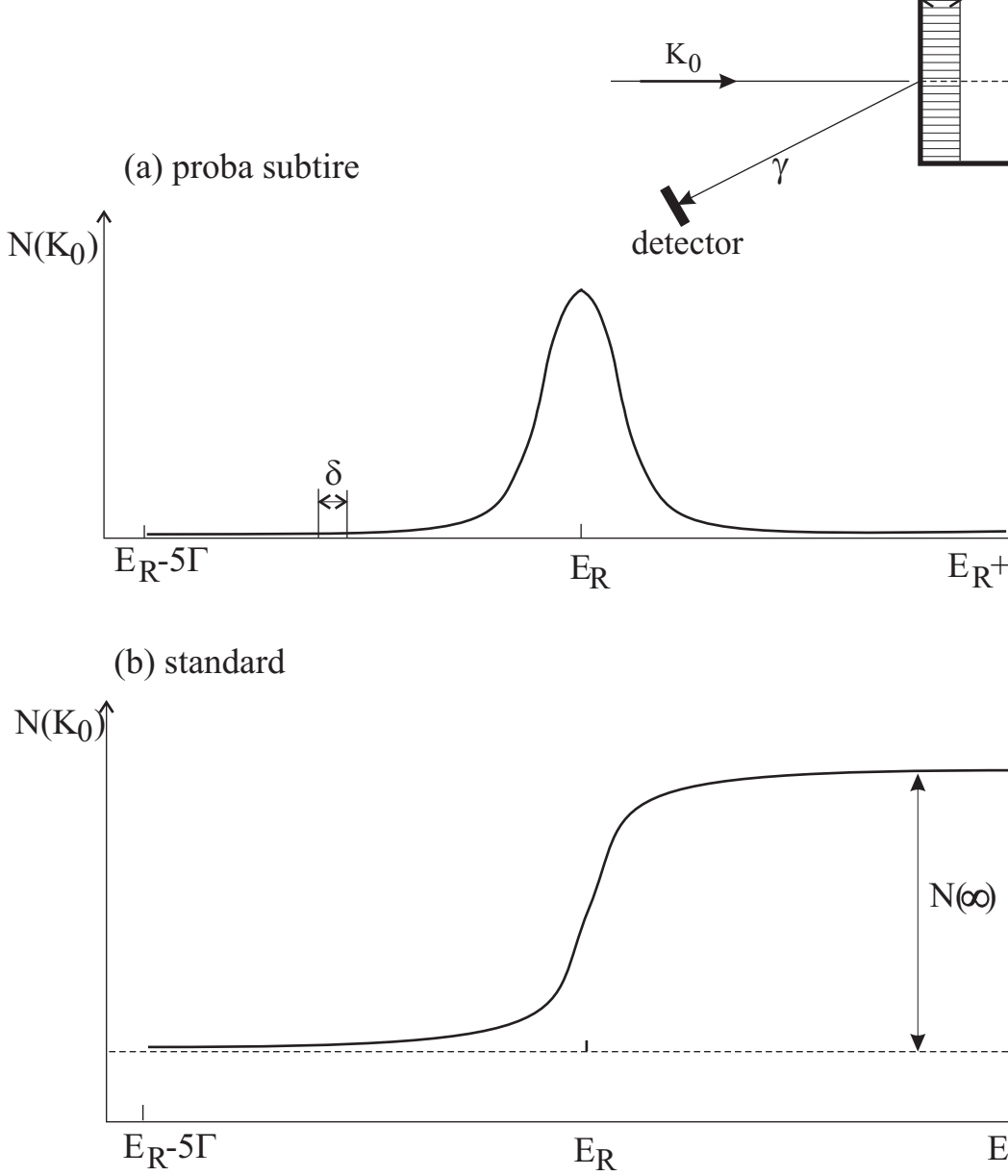


Figure 1.7: Analiza straturilor subțiri prin detecția razelor gamma provenite din reacții rezonante. (a) Funcția de excitație a razelor  $\gamma$  pentru un strat subțire și energia în jurul energiei de rezonanță  $E_R$ . (b) determinarea lui  $N(\infty)$  pe o probă standard

$$\Delta K = S(E_R) \Delta x$$

condiția anterioară se scrie

$$\Gamma \gg S(E_R) \Delta x$$

Curba de excitație pentru reacția rezonantă se determină printr-o succesiune de măsurători efectuate la diverse energii incidente  $K_0$  între  $(E_R - 5\Gamma)$  și  $(E_R + 5\Gamma)$ . Principiul metodei este ilustrat în Figura ???. Aria de sub curbă este determinată din relația

$$I \simeq \int_0^\infty N(K_0) dK_0 \quad [\text{MeV}] \quad (1.51)$$

în care înlocuim ecuația (??) și obținem

$$I = c \frac{f_T \aleph \sigma \Gamma \epsilon}{2A_T S(E_R)} N_0 \int_0^\infty \left[ \tan^{-1} \frac{(K_1 - E_R)}{\Gamma/2} \right]_{(K_0 - \Delta K)} K_0 dK_0 \quad (1.52)$$

de unde

$$I = c \frac{f_T \aleph \sigma \Gamma \epsilon}{2A_T S(E_R)} N_0 \pi \Delta K \quad [\text{MeV}] \quad (1.53)$$

și se calculează făcând o integrare numerică a datelor experimentale.

În pasul următor se măsoară  $N(\infty)$  pentru o probă standard,  $c_{st}$  fiind concentrația atomilor de tip  $T$  în proba standard.  $N(\infty)$  se obține făcând diferența între două măsurători la energiile  $E_R - 5\Gamma$  și  $E_R + 5\Gamma$ . În final se obțin formulele practice de evaluare a concentrației din relațiile (??) și (??)

$$c = \frac{I}{N(\infty)} \frac{c_{st}}{\Delta K} \frac{S(E_R)}{S_{st}(E_R)} \quad (1.54)$$

$$c = \frac{I}{N(\infty)} \frac{c_{st}}{\Delta x} \frac{1}{S_{st}(E_R)} \quad (1.55)$$

La interacția protonilor cu toate speciile atomice situate între Li și P se găsesc rezonanțe care se pot folosi la determinări de concentrații în straturi subțiri prin formalismul prezentat. Sensibilitatea metodei variază între 1 p.p.m. și 1000 p.p.m. depinzând de atomul identificat și de compoziția chimică a stratului subțire și a suportului său.

## în adâncime

Metoda reacțiilor nucleare rezonante poate fi utilizată și pentru măsurarea distribuției cu adâncimea a concentrației unei anumite specii atomice "T" într-o probă. Principiul metodei este ilustrat în Figura ???. În desfășurarea procedurii experimentale energia fasciculului incident este crescută în pași succesivi, fiecare pas  $\delta$  corespunzând unei "penetrări" suplimentare  $\delta \xi(E_R)$  a rezonanței în adâncimea probei. Intensitatea corespunzătoare a câmpului radiațiilor gamma  $Y_0(K_0)$  este proporțională cu concentrația  $c(x)$  la adâncimea  $x$  la care se produce reacția rezonantă

$$x = \frac{K_0 - E_R}{S(K)} \quad \text{unde} \quad S(K) = S\left(\frac{K_0 + E_R}{2}\right) \quad (1.56)$$

Rezoluția în adâncime  $\Delta x$  este determinată de către lărgimea rezonanței și de împrăștierea în energie a fasciculului incident.

Folosind rezonanțe înguste ( $\Gamma < 1 \text{ keV}$ ) și fascicule incidente cu rezoluție bună a fasciculului ( $\Delta_b \ll 1 \text{ keV}$ ) profilul de concentrație în adâncime este obținut cu acuratețe prin tehnici numerice folosind modelul Vavilov pentru evaluarea efectelor de împrăștiere energetică. [10]

Această metodă experimentală este folosită cu succes pentru determinarea unor concentrații mici ( $\bar{c} < 0.01$ ) de impurități localizate în imediata vecinătate a suprafeței, astfel încât grosimea efectivă a stratului este mică iar rezonanțele adiacente de energie joasă nu afectează rezultatul. În practică această situație corespunde unei adâncimi de penetrație între 1 și 10 microni. Aplicațiile reacțiilor rezonante de captură radiativă a protonilor de tipul  $(p, \gamma)$  și  $(p, \alpha\gamma)$  pentru determinarea concentrației atomilor de Li, Be, B, C, N și F în straturile subțiri sunt prezentate în lucrarea [10].

Limitările experimentale ale metodei descrise anterior provin din următoarele efecte:

- Interferențe provenite din faptul că nucleul de interes este produs și de alte reacții nucleare decât cea vizată de experiment. Spre exemplu în reacțiile  $^{27}\text{Al}(p, \alpha\gamma)^{24}\text{Mg}$  și  $^{23}\text{N}(p, \gamma)^{24}\text{Mg}$

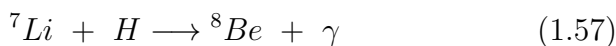
produsă de către fasciculul incident de protoni. Această interferență se elimină ușor în cazul în care energiile de prag sunt foarte diferite, energiile rezonanțelor sunt foarte diferite sau secțiunile eficace se află într-un raport bine cunoscut.

- Contaminarea spectrului gamma cu linii care provin din alte surse decât proba de investigat. In cele mai multe cazuri aceasta se elimină prin ecranări active (detector anti-Compton) sau pasive (ecran de Pb).
- Degradarea probei prin acțiunea fasciculului de particule încărcate incidente este un efect mai puțin important pentru protoni dar foarte semnificativ pentru ionii grei. Acest efect limitează timpul maxim care poate fi alocat unei anumite măsurători.

razelor gamma provenite din reacții rezonante. Razele  $\gamma$  provin din zona hașurată. Intensitatea este proporțională cu concentrația locală  $c(x)$ . Funcția de excitație este  $Y(K_0)$  este similară cu profilul concentrației  $c(x)$ . Rezoluția în adâncime este  $\Delta x = \Gamma_{tot}/S(E_R)$ .

## 1.9 Exemple de analiză elementală prin măsurarea radiației $\gamma$ prompte

*Hidrogen.* Detectarea prezenței urmelor de hidrogen în probe se face prin următoarele reacții nucleare în care se masoara radiația gamma promptă



este o reacție folosită pentru măsurarea profilului de concentrație în adâncime a hidrogenului în probele aduse de pe Lună. Au fost detectate razele gamma de energie mare din  ${}^8\text{Be}$ , energia de bombardare a protonilor fiind cuprinsă între 2.7 și 4.8 MeV. Rezoluția în adâncime este de 1000 Åiar sensibilitatea de 80 p.p.m.

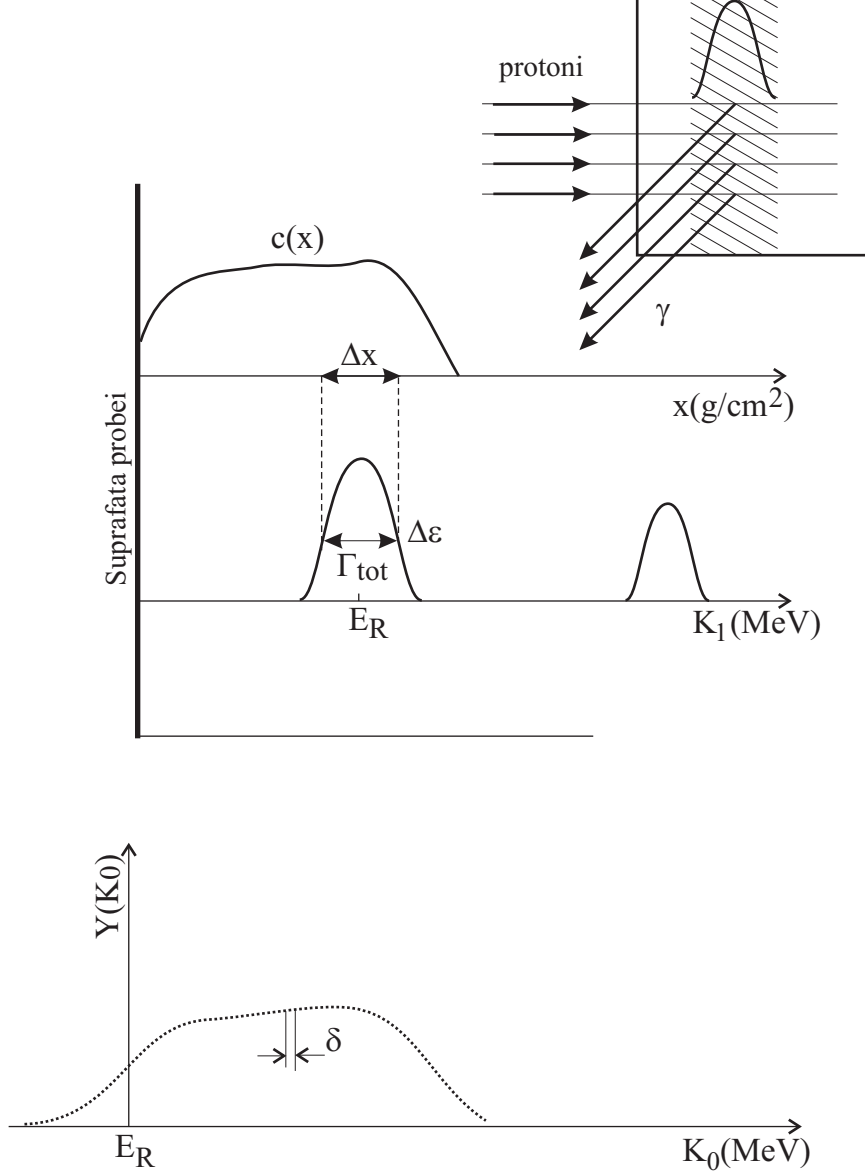
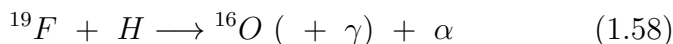


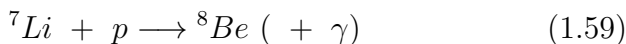
Figure 1.8: Determinarea profilului de concentrație a urmelor prin detecția razelor gamma provenite din reacții rezonante. Razele  $\gamma$  provin din zona hașurată. Intensitatea este proporțională cu concentrația locală  $c(x)$ . Funcția de excitație este  $Y(K_0)$  este similară cu profilul concentrației  $c(x)$ . Rezoluția în adâncime este  $\Delta x = \Gamma_{\text{tot}}/S(E_R)$ .





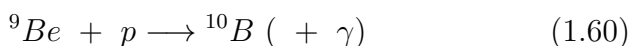
în care rezonanța este localizată la energia  $E_R = 16.586$  MeV având lărgimea  $\Gamma = 130$  keV.

*Litiul* se detectează prin următoarea reacție indusă de protoni



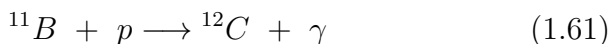
folosind rezonanța de la 441 keV și un detector NaI(Tl) cu volum mare.

*Beriliul*. Prezenta lui se detectează folosind reacția



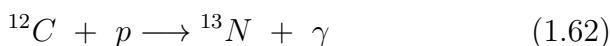
rezonanța de interes fiind prezentă la energia  $E_R = 991$  keV cu lărgimea  $\Gamma = 89$  keV

*Borul* are doi izotopi stabili  ${}^{10}\text{B}(19.78\%)$  și  ${}^{11}\text{B}(80.22\%)$  . Al doilea poate fi profilat în adâncimea probelor prin detecția radiației gamma prompte din reacția

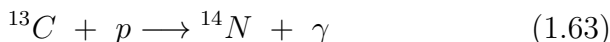


reacție care prezintă o rezonanță cu parametrii  $E_R = 163$  keV și  $\Gamma = 6$  keV.

*Carbonul* are doi izotopi stabili  ${}^{12}\text{C}(98.89\%)$  și  ${}^{13}\text{C}(1.11\%)$  care pot fi identificați prin reacțiile



și respectiv



Reacția (??) este utilizată frecvent pentru determinarea concentrației de carbon în oțeluri, semiconductori, probe biologice. Rezonanțele de la  $E_{R1} = 459$  keV, ( $\Gamma_1 = 42.8$  keV) și la  $E_{R2} = 1698$  keV, ( $\Gamma_2 =$

prin detectarea radiației gamma cu energia de 2.363 MeV emisă de  $^{13}\text{N}$ . Rezoluția în adâncime a metodei este redusă (5000 Å) dar datorită faptului că protonii incidenti au energie relativ ridicată (0.6 MeV) se pot detecta urme de carbon în straturile de sub suprafața probei. Reacția ( $??$ ) prezintă o rezonanță îngustă ( $\Gamma = 81$  eV) la  $E_R = 1.748$  MeV permițând analiza profilului în adâncime a concentrației prin detecția radiațiilor gamma de mare energie (2.73 MeV, 6.4 MeV și 9.17 MeV).

*Vanadiu* poate fi analizat prin reacția ( $p, p'\gamma$ ) utilizând protoni cu energia de 1-2.5 MeV. Se detectează radiațiile gamma cu energia de 320 keV, metoda având o sensibilitate de 1% [10]

*Cromul* este analizat prin reacția  $^{52}\text{Cr}(p, \gamma)^{53}\text{Mn}$  din care se detectează radiațiile gamma cu energia de 380 keV.

*Manganul* poate fi identificat prin detectia radiațiilor gamma prompte emise în urma reacțiilor ( $p, p'\gamma$ ) și ( $p, n\gamma$ ) utilizând protoni cu energia de 2-3MeV. Energiile radiațiilor gamma detectate sunt 126 keV pentru reacția  $^{55}\text{Mn}(p, p'\gamma)$ , 413 keV și 933 keV pentru reacția  $^{55}\text{Mn}(p, n\gamma)^{56}\text{Fe}$  și 874 keV pentru reacția  $^{55}\text{Mn}(p, \gamma)^{56}\text{Fe}$ . Limita de detecție estimată este de 5 p.p.m. în cazul probelor metalice.

*Fierul* este măsurat cu ajutorul reacției  $^{56}\text{Fe}(p, p'\gamma)$  indusă de protoni cu energia de 2-3 MeV. Radiațiile gamma detectate au energia de 847 keV.

## 1.10 Aplicații ale capturii radiative a neutronilor

Măsurarea emisiei fotonilor prompti emiși din nucleul compus format prin interacția unui neutron ( $n$ ) cu un nucleu țintă ( $T$ ) este o tehnică care se numește *captură radiativă*. Ea este o metodă complementară analizei prin activare cu neutroni, tehnică descrisă

Intensitatea razelor gamma prompte emise din captura neutronilor este dependentă de secțiunea eficace a procesului de formare a nucleului compus. Deoarece timpul de viață al stărilor nucleului compus care se dezexcită prin emisie gamma este scurt (de ordinul a  $10^{-9}$  -  $10^{-12}$  secunde) aceste radiații  $\gamma$  trebuie măsurate în timpul bombardamentului neutronic. Pentru aplicarea acestei tehnici este esențială o foarte bună colimare a fasciculului de neutroni proveniți din reactor. Un detector de tip GeHP sau Ge(Li) cu eficiența ridicată trebuie utilizat la capătul unui colimator cu rezoluție spațială fină.

Vom exemplifica aplicația acestei tehnici pentru analiza aliajelor. Astfel, în timpul iradierii cu neutroni a unei matrici elementale cu componentele  $A, B, C, \dots i$ . numărul reacțiilor pe secundă  $dN/dt$  cu un anumit element este

$$\frac{dN}{dt} = \Phi \sigma N \quad (1.64)$$

unde  $\Phi$  este fluxul neutronilor termici,  $\sigma$  este secțiunea eficace microscopică de interacție iar  $N$  este numărul de atomi ținta din elementul analizat. Numărul razelor  $\gamma$  prompte măsurate pe secundă este dat de ecuația

$$R = \Phi \sigma N I \epsilon_a \quad (1.65)$$

unde  $I$  este intensitatea absolută a fasciculului radiațiilor gamma provenite de la elementul investigat iar  $\epsilon_a$  este eficacitatea totală de detecție.

Factorul de senzitivitate  $S$  este definit prin relația  $S = I \sigma / M$  unde  $M$  este masa atomică a elementului considerat pentru analiza. Eficiența absolută  $\epsilon$  poate fi exprimată în funcție de o constantă  $k$  și eficiența relativă  $\epsilon_r$   $\epsilon_a = k \epsilon_r$ . Se preferă utilizarea în formule a eficienței relative  $\epsilon_r$  în locul eficienței absolute  $\epsilon_a$  deoarece ea rezultă direct din măsurarea unei surse de calibrare în eficiență a detectorului de GeHP - cum este spre exemplu  $^{152}\text{Eu}$ . Relația (??) devine

$$R = \Phi S W \aleph \epsilon_r k \quad (1.66)$$

gado. Dacă matricea este compusă din elementele  $A, B, C, \dots, i$  atunci suma maselor (procentuale) ale constituenților este

$$1 = w_A + w_B + w_C + \dots + w_i$$

Masa procentuală a constituentului  $A$  este dat de

$$w_A = \frac{W_A}{W_A + W_B + W_C + \dots + W_i} 100\% \quad (1.67)$$

Rezolvând ecuația (??) pentru  $W$  și înlocuind în ?? se obține

$$w_A = \frac{R_A/S_A \epsilon_r^A}{\sum_i (R_i/S_i \epsilon_r^i)} 100\% \quad (1.68)$$

care ecuație este folosită pentru a determina masa procentuală a elementului  $A$  într-un aliaj. Eficiența relativă a detectorului  $\epsilon_r^i$  se masoară experimental ca funcție de energie. Coeficienții  $S_i$  sunt tabelați și rezultă din măsurători precise ale secțiunilor eficace pe ținte formate din elemente pure.

# 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. Tsoulfanidis, *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 Annihilation*, 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