

- Note CEA-N-1212 -

Centre d'Etudes Nucléaires de Fontenay-aux-Roses  
Direction des Productions  
Département des Prospections et Recherches Minières  
Service de Minéralogie

**QUELQUES EXEMPLES D'APPLICATION DE L'ANALYSE  
PAR ACTIVATION A LA GEOLOGIE**

par

---

Jean-Claude SCHILTZ

- Octobre 1969 -

CEA-N-1212 - SCHILTZ Jean-Claude

QUELQUES EXEMPLES D'APPLICATION DE L'ANALYSE  
PAR ACTIVATION A LA GEOLOGIE

Sommaire. - Depuis une quinzaine d'années, l'analyse par activation connaît un développement considérable. De nouvelles facilités viennent d'être offertes aux chercheurs et aux industriels pour l'installation de laboratoires spéciaux, à proximité de réacteurs à flux élevé, dans les Centres d'Etudes Nucléaires de Saclay et Grenoble. D'autres appareils de laboratoires et sources de particules sont également utilisés (générateurs de neutrons rapides, accélérateurs, etc.). Notre laboratoire contribue depuis quelques années à l'étude des applications de l'analyse par activation au domaine des Sciences de la Terre, en particulier à la géochimie. Rassemblant ici notre expérience et celle d'autres laboratoires,

./.

CEA-N-1212 - SCHILTZ Jean-Claude

SOME EXAMPLES OF APPLICATION OF ACTIVATION  
ANALYSIS TO GEOLOGY

Summary. - For some fifteen years, activation analysis knows a considerable development. New facilities have become to be done to research workers and industrials by the fitting up of special laboratories near high flux reactors, in the Centre d'Etudes Nucleaires de Saclay and Grenoble. Other laboratories apparatus and particles sources are also used (fast neutrons generators, accelerators, etc.). For some years, our laboratory contribute to study of activation analysis applications to the field of Earth Sciences, particularly to geochemistry. Collecting here our experience and that of other laboratories, we have wished to give a glimpse of the diversity of applications and their as well economical

nous avons voulu donner un aperçu de la diversité des applications et de leur intérêt tant économique que purement technique. Cette étude, trame initiale d'une conférence faite à la semaine de l'ADERP en février 1969, ne prétend évidemment pas à l'exhaustion du sujet. Nous avons simplement choisi des exemples parmi les plus typiques de nos travaux et parmi ceux qui ont présenté un intérêt bibliographique pour nous.

1969 16 p.

Commissariat à l'Energie Atomique - France

as purely technical interest. This job, initial web of a conference done to the ADERP week in february 1969, doesn't obviously pretend to the exhaustion of the subject. We have simply chosen examples among the most typical of our works and among those which have shown a bibliographical interest for us.

1969 16 p.

Commissariat à l'Energie Atomique - France

## QUELQUES EXEMPLES D'APPLICATION DE L'ANALYSE PAR ACTIVATION A LA GEOLOGIE

—oOo—

Depuis quelques années, l'analyse par activation a trouvé de nombreuses applications dans le domaine des Sciences de la Terre. Dans cet exposé, au cours duquel seront soulignés divers aspects économiques du sujet, on essaiera de montrer que :

- le dosage des traces fait partie des méthodes de prospection minière, même si le but ultime est de trouver des amas minéralisés à haute teneur;
- l'analyse par activation étant souvent la meilleure méthode en ce qui concerne la sensibilité, elle convient particulièrement bien au dosage des traces, notamment par l'utilisation des neutrons thermiques;
- cette technique peut être utilisée sur le terrain, dans certains cas particuliers où il est important d'obtenir des résultats immédiats;
- elle convient parfaitement dans le dosage instrumental de quelques éléments majeurs, en particulier par l'irradiation au moyen des neutrons de 14 Mev, alors qu'il n'existe pratiquement aucune autre méthode pour doser certains d'entre eux (oxygène, par exemple).

On ne reviendra pas sur les principes physiques de l'analyse par activation, ni sur le traitement des échantillons irradiés (comptage direct ou radiochimie). Ces principes ont été décrits par ailleurs d'une manière précise et complète (1).

Il est certain que les exemples donnés ici ne concernent qu'une faible partie des éléments d'intérêt géochimique et ne représentent pas tous les domaines de la géologie auxquels a été appliquée l'analyse par activation : c'est le cas, en particulier, de la géochronologie et de l'hydrogéochimie.

.../...

---

(\*) Conférence faite à la semaine d'étude de l'A.D.E.R.P. (Association pour le Développement de l'Enseignement et des Recherches auprès des Facultés des Sciences de l'Université de Paris) le 5 Février 1969.

## I.- LE DOSAGE DES TRACES ET LA PROSPECTION MINIÈRE.-

En ce qui concerne les neutrons thermiques des réacteurs nucléaires ou des sources Sb-Be, l'analyse par activation trouve son champ d'application privilégié dans le domaine des traces. Or il est évident que le prospecteur, opérant pour le compte d'un organisme minier, recherche avant tout l'amas, la masse minéralisée à haute teneur en tel ou tel élément, facilement exploitable et d'un traitement commode. Il existe donc une contradiction apparente entre la nécessité de trouver des éléments à haute teneur et le domaine de l'analyse par activation, qui est généralement celui des traces (dont les teneurs sont définies habituellement comme inférieures à 1.000 p.p.m.).

Plusieurs raisons semblent plaider en faveur de l'analyse des traces dans la prospection minière. (4, 5, 15).

1°) - Dans toute étude d'ensemble de distribution d'éléments dans un dépôt minéralisé, il est très important de considérer toutes les phases de ce dépôt et pas seulement celles qui sont d'intérêt économique. En effet, si dans un dépôt, un minerai est formé par migration (lessivage, par exemple) d'un élément d'un massif rocheux à un autre, il est nécessaire de doser cet élément dans les matériaux initial et final, ce qui permet de déterminer les caractéristiques de la migration et d'en préciser les processus fondamentaux.

2°) - Si, dans un gisement, on trouve un élément dans quelques minéraux et pas dans d'autres, il est utile de pouvoir en calculer le coefficient de partage. C'est ce coefficient, et non simplement la composition d'une phase, qui est fonction de la température, de la pression et de la composition du milieu. Il pourra donc servir d'"indicateur géologique". L'intérêt de l'étude des coefficients de partage est mis en évidence par la mesure du fractionnement relatif des terres rares dans les laves. Le cérium et l'euprotium peuvent présenter un comportement anormal dû à des changements de valence :  $Ce^{3+} \rightarrow Ce^{4+}$ ,  $Eu^{3+} \rightarrow Eu^{2+}$ . Il est possible alors d'en tirer des conclusions sur le potentiel d'oxydo-réduction du milieu de formation. (6).

3°) - Certains éléments sont caractéristiques d'un milieu déterminé. C'est le cas du bore, pour une sédimentation en milieu marin, et du gallium, pour une sédimentation en milieu continental. Le dosage de ces éléments permet de déterminer de quel milieu il s'agit.

Ce qui semblait au premier abord relever de la recherche fondamentale se justifie donc en prospection minière, dans la mesure où les études entreprises débouchent sur une meilleure compréhension des gisements et apportent à la prospection minière une contribution efficace.

.../...

## II.- L'ANALYSE PAR ACTIVATION EN GEOCHIMIE.-

### 1.- Problèmes généraux de l'analyse par activation en géochimie.

#### A/ - Complexité des matériaux.

Les matériaux géologiques sont constitués de un ou quelques éléments dans les meilleurs des cas (minéraux), à la quasi totalité de la classification périodique dans la majorité des cas (roches). On sera donc très souvent amené à utiliser des méthodes de séparations radiochimiques, ce qui évidemment augmente le prix de revient des analyses, mais également augmente la certitude de l'analyste en ce qui concerne la sélectivité.

Dans certains cas d'éléments à périodes très courtes, comme le fluor et le vanadium en irradiation à neutrons thermiques, on ne peut utiliser de séparations radiochimiques. L'analyse instrumentale est alors la seule possible. Les meilleures conditions sont obtenues en irradiant les échantillons pendant un temps égal à une ou deux fois la période, mais il faut également disposer d'installations à transmission rapide des échantillons irradiés (canaux pneumatiques).

#### B/ - Hétérogénéité des échantillons.

Dans le cas des roches, il est nécessaire de remédier à l'hétérogénéité des échantillons par un broyage à partir de grandes quantités de blocs représentatifs et selon des règles statistiques précises. Le broyage présente un danger de contamination : par exemple, le tungstène et le cobalt, dans le cas des broyeurs à carbure de tungstène (le cobalt servant de liant). Il faut évidemment en tenir compte dans les analyses.

Dans le cas d'analyse de phases minérales des roches, il est possible de prélever au microscope quelques grains significatifs.

Lorsque le minéral est assez gros, on aura intérêt à décaper sa surface après irradiation, ce qui supprime les effets d'une contamination antérieure éventuelle.

#### C/ - Fortes teneurs en sodium et manganèse.

La plupart des roches contiennent en moyenne 5 % de Na et 0,5 % de Mn. Ces éléments ont des périodes respectives de 15 heures et 2,6 heures. Les sections efficaces sont de 0,5 et 13,2 barns. Dans ces conditions, le traitement radiochimique d'échantillons dans lesquels on veut doser des éléments à périodes moyennes ( $W^{187}$  : 24 h. -  $Ga^{72}$  : 14,1 h. -  $Cu^{64}$  : 12,8 h. -  $Eu^{152}$  : 9,3 h. -  $Dy^{165}$  : 2,3 h.) nécessitera une protection de plomb (sorbonne blindée, par exemple).

D'autre part, les mesures de spectrométrie  $\gamma$  peuvent être gênées par ces taux élevés d'activité. Il sera alors nécessaire de discriminer les énergies.

.../...

D/ - Matrice.

Elle est souvent silicatée, ce qui ne perturbe pas l'irradiation, le silicium n'absorbant que faiblement les neutrons. Par ailleurs, l'attaque fluorhydrique de l'échantillon permet de la concentrer dans un volume de solution moindre, la silice étant éliminée sous forme de complexe fluoré volatil. Ceci est appréciable dans une méthode comme la chromatographie sur papier, qui n'est pas compatible avec des prélèvements de solution de volume élevé. L'alumine a un pouvoir absorbant des neutrons encore plus faible. Le fer et l'alumine peuvent être utilisés comme auto-entraîneurs par précipitations à l'ammoniaque : les terres rares, le protactinium, le gallium, le chrome, etc... sont entraînés, alors que les alcalins, les alcalino-terreux et les éléments à complexes aminés solubles (Cu, Co, Ni) restent en solution.

E/ - Etalons.

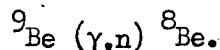
L'analyse par activation est utilisée pour doser des étalons qui serviront à d'autres méthodes. En particulier, en géochimie, les teneurs des étalons internationaux G1 et W1 ont été précisées lorsque l'analyse par activation a été employée.

Il est d'ailleurs toujours préférable, au cours d'une analyse comportant l'irradiation d'échantillons et d'un ou deux étalons, de faire en sorte que ceux-ci soient de même nature que les échantillons. Les étalons G1, W1, GR, etc..., ayant été dosés par des méthodes variées, conviennent parfaitement.

2.- Description de quelques exemples d'application.

A/ - Le dosimètre à béryllium ou "béryllomètre". (12).

Instrument destiné au dosage du béryllium, le "béryllomètre" est à la fois un équipement portable de terrain et un appareil de laboratoire. Son fonctionnement est basé sur la réaction nucléaire :



Cette réaction nécessite un rayonnement  $\gamma$  d'au moins 1,7 Mev; on utilise celui de  $\text{Sb}^{124}$  de période 60 jours. Le nombre de neutrons émis est proportionnel à la quantité de béryllium. On le mesure avec un détecteur au  $\text{BF}_3$ . Signalons qu'il s'agit de neutrons thermiques. L'appareil indique la teneur moyenne sur quelques dizaines de centimètres.

La source est constituée par 31 petites sources "ponctuelles" de 0,65 mCi de  $\text{Sb}^{124}$  disposées longitudinalement sous l'appareil. Elles sont recouvertes d'une protection de plomb (l'appareil pèse 20 kg). L'ensemble est entouré de paraffine servant de réflecteur et de modérateur pour les neutrons; les détecteurs au  $\text{BF}_3$  (1 de chaque côté de la source, mais séparés de celle-ci par du plomb) y sont inclus.

.../...

L'appareil comporte la batterie d'alimentation des détecteurs et une plaque de référence à 2 % de BeO.

B/ - Equipement de terrain pour l'analyse par activation. (14).

On a l'exemple d'un véhicule routier comportant une remorque de 12 mètres (R.W. TOLMIE et C.J. THOMSON) dans laquelle est installée une source de 6.000 Ci de  $Sb^{124}$  dans Be, donnant un flux thermique de  $2.10^8$  neutrons/cm<sup>2</sup>/s. L'eau est utilisée comme réflecteur. On réalise ainsi le meilleur compromis possible entre poids (5.000 kg) et volume de protection d'une part, et prix de revient d'autre part.

L'équipement de détection comporte un sélecteur à 1.024 canaux, avec détecteurs Ge-Li et Na-I (Tl). Une calculatrice est couplée au sélecteur. L'équipement ne comporte pas de laboratoire.

Des analyses de U et Th dans l'eau (jusqu'à  $10^{-2}$  p.p.m.) et des dosages de Au, As, Hf et terres rares ont pu ainsi être réalisés.

C/ - Prospection dans le sédimentaire : dosage du vanadium, de l'uranium et du thorium.

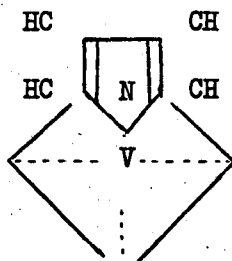
a) - Vanadium et uranium -

Ces 2 éléments sont liés aux problèmes des sédiments d'origine biogéochimique.

On trouve V et U dans de nombreuses plantes et dans des organismes marins. Ils peuvent être précipités à l'état de sulfures avec Fe, Mo, Ni dans les sapropels, constitués de plantes et d'organismes en putréfaction. Ces sapropels sont à l'origine des pétroles, des asphaltes et des schistes bitumineux. V et U peuvent donc s'accumuler dans ces éléments.

On trouve également U à l'état de phosphates et ces deux éléments peuvent se combiner pour former des minéraux tels que la carnotite (vanadate d'U et de K hydraté) et la francevillite (vanadate d'U et de Ba hydraté).

On pense que V a un rôle catalytique. Sa teneur croît pendant l'oxydation des hydrocarbures non saturés. Il facilite probablement les réactions entre l'hydrogène sulfuré et les substances organiques, par l'intermédiaire des organométalliques. On connaît des complexes porphyrinés de V, formés de 4 noyaux pyrrole cyclisés.



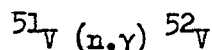
.../...



Le vanadium peut donc servir à caractériser un pétrole. D'autre part, et ceci est encore plus important, il est nécessaire de connaître les teneurs des pétroles en vanadium, car il empoisonne les catalyseurs de cracking. Signalons que des pétroles bruts d'Iran contiennent jusqu'à 2,8 % de V, des cendres d'asphaltes 43 %. Certains pétroles contiennent 100 p.p.m. d'U et des saumures de champs pétrolifères 10 p.p.m. d'U.

- Dosage de V - (LAVERLOCHERE).

La réaction nucléaire d'activation de V est la suivante :



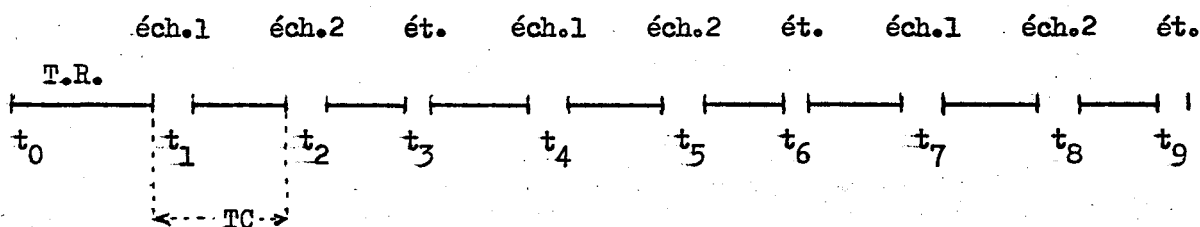
avec les caractéristiques ci-dessous :

Radioisotope formé	Période	% isotopique	$\sigma$ en barn	Energie $\gamma$
			(1 barn = $10^{-24}$ cm <sup>2</sup> )	
$V^{52}$	3,76 mn	100	5	1,44 Mev

La courte période de  $V^{52}$  exclut toute séparation chimique. Le temps d'irradiation optimum est de 3 mn environ. Une telle irradiation dans les pétroles de "révèle" que le vanadium. Un dispositif à transfert rapide du réacteur à la cellule de comptage est recommandé.

Le temps de comptage est de 1 minute. Il est nécessaire de tenir compte de ce temps de comptage dans le calcul des activités qui doivent être ramenées au temps  $t_0$  (on procède par l'exploitation de la courbe de décroissance).

Il faut donc établir une séquence de comptages.

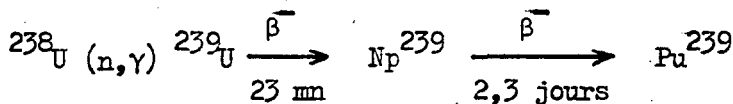


Le temps de cycle (TC) est de 1'53". T.R. est le temps de transfert des échantillons et de l'étalon. Les temps  $t_1, t_2, t_3$ , etc... sont pris à mi-comptage.

- Dosage de U -

Le dosage radiochimique de U est basé sur la réaction suivante :

.../...



La période de  $\text{U}^{239}$  est trop courte pour effectuer les séparations chimiques classiques. Par contre, la période de  $\text{Np}^{239}$  est favorable et c'est ce radioélément qui est utilisé pour doser l'U.

Le Np n'existe pas pondéralement dans la nature et on ne peut l'utiliser comme entraîneur. Si l'on veut utiliser une technique par entraîneur, on emploie  $\text{LaF}_3$ . L'inconvénient de ce processus est que l'entraînement n'est pas sélectif. De nombreux autres éléments, en particulier  $\text{Na}^{24}$ , sont également entraînés et nécessitent des purifications du précipité de  $\text{LaF}_3$ . (8).

Aussi préfère-t-on actuellement extraire  $\text{Np}^{239}$  par un solvant, le trifluoro-4,4,4-thiényl-1,2-butanedione-1,3, plus communément appelé T.T.A., en solution dans le xylène. On opère en milieu  $\text{HCl}$  1N. Np est amené à la valence IV par l'hydroxylamine. Les phases sont séparées par du papier séparateur de phases, ce qui évite lavages et centrifugations. On extrait  $\text{Np}^{4+}$  en retour par lavage de la phase xylénique avec son volume d' $\text{HNO}_3$  10N.

Une technique d'étude de la répartition de l'U s'apparente à l'autoradiographie. C'est la méthode d'enregistrement des fragments de fission dans les isolants. Elle est utilisée pour les faibles teneurs. Pendant l'irradiation d'une lame mince de l'échantillon, l'U subit la fission et les fragments de fission ainsi libérés provoquent des traces de leur passage dans un isolant appliqué étroitement sur la lame mince. Ces traces sont révélées par une attaque chimique appropriée : HF pour le verre ou le mica, soude ou potasse pour les hauts polymères (mylar, makrofol).

L'examen microscopique permet de déceler la position des traces, donc les inclusions à U dans la lame mince. Leur nombre est proportionnel à la quantité d'U, il suffit de les compter et de comparer ce nombre à celui d'une lame mince étalon.

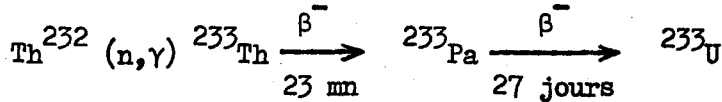
Ainsi 1 p.p.m. d'U irradié dans un flux de  $10^{12}$  neutrons/ $\text{cm}^{-2}/\text{s}^{-1}$  pendant 70 heures donne 100 traces par champ visuel. (9, 13).

#### b) - Thorium -

Comme nous l'avons vu précédemment, les prospecteurs de pétrole rencontrent très souvent des sédiments radioactifs au cours des campagnes de recherche. Il est alors intéressant de connaître la contribution de chacune des familles radioactives U et Th d'une part et de  $\text{K}^{40}$  d'autre part.

D'un autre point de vue, Th donne naissance par irradiation à un matériau fissile  $\text{U}^{233}$ , par la réaction suivie de désintégrations :

.../...



En réalité  $\text{U}^{233}$  n'est pas utilisé comme matériau fertile dans les réacteurs, mais il est nécessaire de connaître, en vue d'une utilisation ultérieure éventuelle, la répartition et la concentration de Th dans la croûte terrestre.

Une méthode de dosage des familles radioactives consiste à mesurer leur activité naturelle par spectrométrie  $\gamma$  directe, sans séparations chimiques.

En ce qui concerne Th, cette méthode n'est économiquement valable que pour les teneurs supérieures à 50 p.p.m. En deçà, l'analyse par activation neutronique est parfaitement adaptée.

L'irradiation de  $\text{Th}^{232}$  donne  $\text{Th}^{233}$  qui a 23 minutes de période et n'émet pas de rayonnement  $\gamma$ . Il donne lui-même naissance par désintégration  $\beta^-$  au  $\text{Pa}^{233}$  émetteur  $\gamma$  (0,310 Mev) ayant 27 jours de période. Cette période est très favorable au traitement radiochimique (décroissance complète de  $\text{Mn}^{56}$ ,  $\text{Na}^{24}$ , etc...).

Comme dans le cas de Np, il n'existe pas de composés de Pa pondéraux dans la nature. Les méthodes par entraînement sont donc à éviter, d'autant que Pa a une forte propension à se fixer sur beaucoup de précipités d'une manière qui n'est pas toujours quantitative.

On utilise essentiellement deux méthodes de séparation : les résines échangeuses d'ions et la chromatographie sur papier.

La résine est une résine amionique Dowex 1x10 en milieu HF. Elle permet de séparer le groupe Sc, terres rares, Pa. Les éléments du groupe sont eux-mêmes séparés par résine cationique Dowex 50 en milieu HCl. (2).

En ce qui concerne la chromatographie sur papier, on utilise un solvant acétone, HF, eau. Pa se situe au milieu de la bande de papier ( $R_f \approx 0,5$ ). (7).

Ces deux techniques sont complémentaires. En effet, la séparation sur résine permet l'isolement de plusieurs éléments W, Mo, Sn, Zr, Hg, Re, Pt, Au, mais on ne peut travailler que sur quelques échantillons.

La chromatographie sur papier sera surtout utilisée dans le cas où l'on ne veut doser que Pa, mais sur de nombreux échantillons. On utilisera la première méthode dans le cas d'analyse systématique, la seconde dans le cas d'analyse de grande série.

### c) - Le gallium -

Cet élément a surtout été étudié en fonction du problème des météorites et de celui de la latéritisation.

.../...

Les constituants majeurs des météorites (Fe et Ni notamment) sont bien connus. L'intérêt pour les constituants mineurs a rebondi depuis la découverte que la teneur en Ga des météorites ferreuses peut être utilisée pour leur classification en trois groupes distincts. On peut noter que le germanium ressemble à Ga dans son abondance météoritique. La latérite est le résultat de l'altération des feldspaths. Le gallium est géochimiquement lié à l'aluminium. Il peut y avoir substitution isomorphique  $(Al O_4)^{5-}$  et  $(Ga O_4)^{5-}$  ou encore  $Al^{3+}$  et  $Ga^{3+}$ . Au cours de l'altération, Ga et Al précipitent sur place à cause de leur tendance à l'hydrolise. Il y a donc enrichissement en gallium et aluminium. Les latérites peuvent donner naissance à la bauxite selon différents processus, parmi lesquels le transport joue un rôle certain. Au cours du transport, le gallium reste dans la phase détritique, sa teneur étant la plus forte dans les grains les plus gros. Cette phase se transforme en bauxite, et ceci expliquerait la forte teneur en gallium de ce minéral. L'analyse par activation a apporté une contribution décisive à cette étude, du fait de son excellente sensibilité (de l'ordre du p.p.m. pour le gallium). Les deux méthodes les plus couramment employées sont :

- l'entraînement isotopique, l'extraction par solvant (éther) et la précipitation (8-hydroxyquinoléine);
- la chromatographie sur papier : l'échantillon irradié, en milieu HCl, est séparé par un solvant composé d'acétone, d'HCl et d'eau. Le gallium reste au front du solvant ( $R_f = 1$ ). (7).

### III.- ACTIVATION ET DIAGRAPHIE DANS LES SONDAGES.-

#### 1.- Généralités.

On appelle diagraphie tout enregistrement, en fonction de la profondeur, d'une caractéristique physique des formations géologiques traversée par un sondage (résistivité, vitesse du son, radioactivité, etc...).

Les principales diagraphies concernent la polarisation spontanée, la résistivité, les mesures acoustiques, les mesures sismiques, la radioactivité (diagraphies nucléaires).

Les diagraphies nucléaires comportent :

- la mesure de la radioactivité naturelle;
- la diagraphie gamma-gamma, où l'on étudie l'absorption d'un rayonnement gamma par la formation traversée; ce qui permet d'étudier la densité de la formation et de déterminer la porosité;
- la diagraphie neutron-neutron, où l'on mesure l'humidité (concentration en atome H), donc la porosité, par l'étude de la thermalisation de neutrons rapides;

.../...

- la diagraphie neutron-gamma qui constitue un dosage d'élément par le rayonnement gamma de capture dans une réaction  $(n, \gamma)$  et l'étude de la section de capture du matériau traversé;
- la diagraphie d'activation neutronique proprement dite, où il s'agit de doser des éléments in situ par la mesure de l'activité induite par des neutrons thermiques : réaction  $(n, \gamma)$ , ou rapides : réactions  $(n, p)$ ,  $(n, \alpha)$ , etc...

## 2.- La diagraphie neutron-gamma. (3, 10).

Deux exemples de ce type de diagraphie sont donnés par le chlorinolog et la diagraphie de relaxation neutronique.

### A/ - Le chlorinolog.

Il s'agit d'un dosage du chlore. Cette diagraphie est basée sur le fait que lors de la capture neutronique, les rayons gamma émis ont une énergie caractéristique de l'atome qui a effectué la capture et aussi sur le fait que certains atomes sont beaucoup plus efficaces que d'autres pour effectuer cette dernière. La réaction mise en jeu est la suivante :

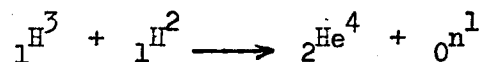


Simultanément à l'irradiation, on mesure le  $\gamma$  de capture.

Le chlore est particulièrement bien adapté pour ce phénomène : sa section efficace est de 32 barns. Les gamma émis ont des énergies élevées : entre 7 et 8 Mev (7,42 et 7,77). Les comptages sont effectués dans la "fenêtre" du spectre correspondante.

### B/ - Diagraphie de temps de relaxation neutronique.

On utilise des neutrons rapides de 14 Mev produits par des accélérateurs miniaturisés, selon la réaction :

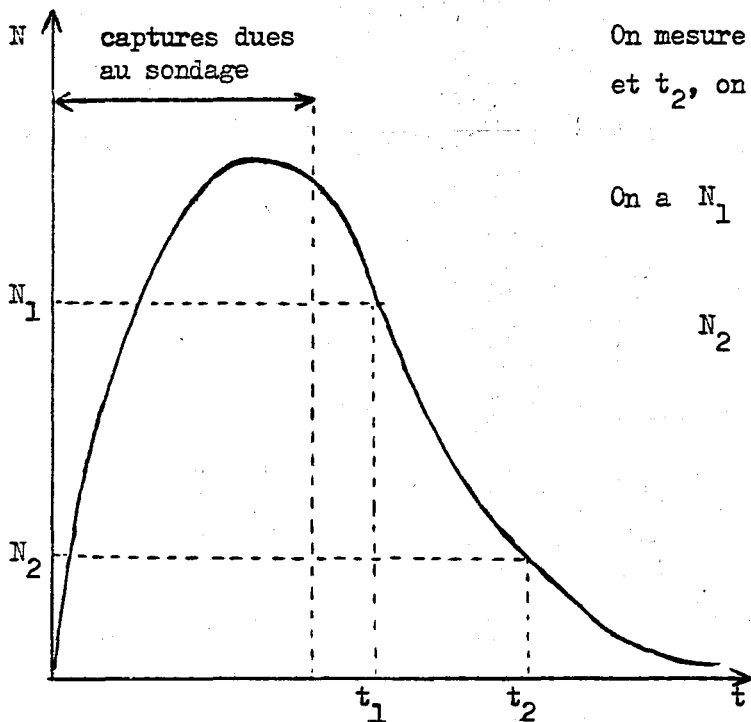


Il s'agit ici d'une application des neutrons pulsés. On envoie en effet une impulsion de neutrons pendant 30  $\mu\text{s}$ . Ces neutrons sont ralentis puis capturés. Au bout d'un temps  $t$ , le nombre de neutrons thermiques restant est :

$$N = N_0 e^{-\Sigma Vt}$$

$N_0$  étant le nombre de neutrons initial,  $\Sigma$  la section de capture du matériau en  $\text{cm}^2/\text{cm}^3$  ( $\text{cm}^{-1}$ ),  $V$  la vitesse des neutrons (2.200 m/s).

.../...



On mesure les gamma de capture aux temps  $t_1$  et  $t_2$ , on obtient  $N_1$  et  $N_2$ .

$$\text{On a } N_1 = N_0 e^{-\Sigma v t_1}$$

$$N_2 = N_0 e^{-\Sigma v t_2}$$

On en déduit  $\Sigma$  qui caractérise le terrain :

$$\Sigma = \frac{1}{v(t_1 - t_2)} \log \frac{N_1}{N_2}$$

Le temps de relaxation neutronique est

$$\tau = \frac{1}{\Sigma v}$$

On peut écrire alors : 
$$N = N_0 e^{-\frac{t}{\tau}}$$

Les sondes perfectionnées permettent d'enregistrer  $\tau$ . En principe, le processus de mesure est répété mille fois par seconde et l'enregistrement fait dans le sondage apparaît continu. Il existe une relation entre la porosité, le temps de relaxation neutronique et la saturation en eau dans les pores. Cette méthode permet donc, à l'aide d'abaques, de mesurer la saturation en eau.

C/ - La diagraphie d'activation neutronique proprement dite.

a) - Par les neutrons thermiques -

On peut utiliser les neutrons thermalisés lors des diagraphies neutrons-gamma, avec la source  $\text{Sb}^{124} \text{Be}$  qui émet des neutrons par réaction  $(\gamma, n)$ .

Rappelons qu'il s'agit du rayonnement gamma induit et non de celui de capture comme dans la diagraphie neutron-gamma. On peut ainsi doser les éléments suivants :

.../...

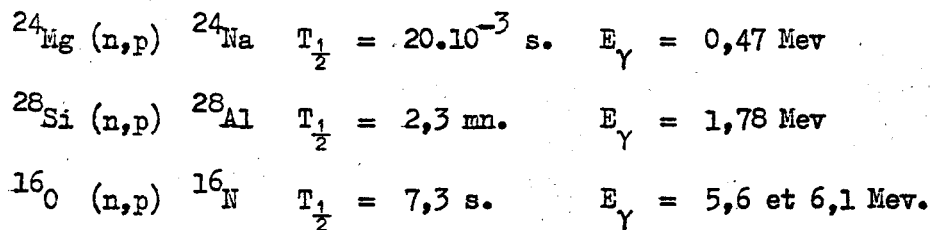
Elément	Radioélément	T	E (Mev)
Na	Na <sup>24</sup>	15 h.	1,38
Al	Al <sup>28</sup>	2,3 mn.	1,78
Si	Si <sup>31</sup>	2,6 h.	1,26
Cl	Cl <sup>38</sup>	37 mn.	2,15
Ca	Ca <sup>47</sup>	4,7 j.	1,31

b) - Par les neutrons rapides de 14 Mev -

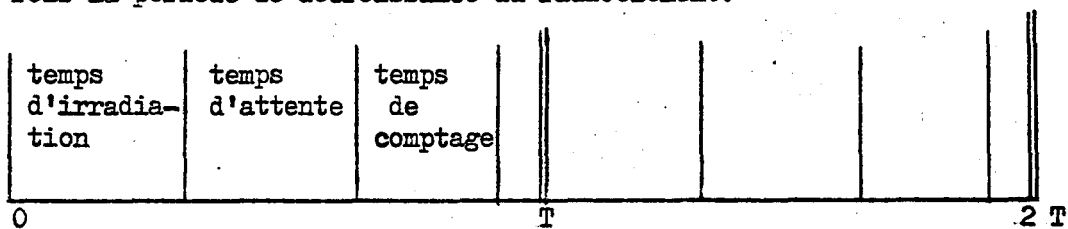
Deux applications très intéressantes des neutrons rapides sont l'activation cyclique utilisée pour doser directement les éléments majeurs (Mg, Al, O) et la technique des neutrons pulsés pour doser l'uranium.

- L'activation cyclique. (11).

Ce type d'analyse concerne essentiellement les éléments Mg, Si et O. Les neutrons rapides donnent les réactions suivantes :



La caractéristique de ces réactions est de donner naissance à des radioéléments de très courte période. L'activation cyclique consiste à irradier plusieurs fois les échantillons, selon un diagramme de temps et une période donnée dont l'optimum est 2,4 fois la période de décroissance du radioélément.



T est la période du cycle

$T \gg t$  irradiation + temps d'attente + temps de comptage.

Le détecteur donne une réponse cumulative.

Alors que l'analyse conventionnelle est utilisée pour des périodes de quelques secondes à quelques jours, l'analyse cyclique est employée pour les périodes de quelques dixièmes de milliseconde à quelques minutes.

.../...

- Dosage de l'uranium par les neutrons pulsés. (10).

Les neutrons pulsés pourraient être utilisés pour doser l'uranium in situ de la manière suivante : les neutrons de 14 Mev émis dans le milieu sont ralentis par lui et donnent des neutrons thermiques, ceux-ci provoquent la fission de l' $U^{235}$  avec émission de neutrons rapides proportionnellement à la quantité d'U. Il faut les mesurer avant la pulsation suivante.

Toutes ces diagraphies basées sur l'utilisation des neutrons sont encore plus ou moins à l'état de recherche et au stade du laboratoire. Elles offrent néanmoins des perspectives d'avenir très intéressantes, sur l'étude des matériaux géologiques et leur composition. Il faut souligner qu'il s'agit essentiellement de méthodes de terrain.-

*Manuscrit reçu le 15 Septembre 1969*



## B I B L I O G R A P H I E

- (1) - ALBERT Ph. - "L'analyse par radioactivation" - Editions Gauthier-Villars - Paris - 1965.
- (2) - AUBOIN G. & LAVERLOCHERE J. - "Séparations par résines échangeuses d'ions appliquées à l'analyse par radioactivation" - C.E.A. - DR/AR/G/ 63-18 - 1963.
- (3) - DESBRANDES R. - "Théorie et interprétation des diagraphies" - Editions Technip - Paris - 1968.
- (4) - SHAW D.M. - "Interprétation géochimique des éléments en traces dans les roches cristallines" - Editions Masson - Paris - 1964.
- (5) - WINCHESTER J.W. - "Progress in inorganic chemistry" - II, 1-32, Interscience Publishers - New-York - 1960.
- (6) - TREUIL M. - "Méthodes nucléaires d'analyse" - Conf. A.D.E.R.P. - Faculté des Sciences d'Orsay - 1969.

Colloque National du C.N.R.S. - Nancy - 1968  
(Comptes-rendus à paraître) :

- (7) - SCHILTZ J.-C. - "L'analyse par radioactivation de certains oligo-éléments dans les matériaux géologiques".
- (8) - DESCHAMPS N. & Coll. - "Dosage isotopique de l'uranium dans les roches par radioactivation neutronique".
- (9) - NEIGE R. - "Dosage de l'uranium dans des lames minces de roche par des détecteurs diélectriques".

Symposium on the use of Nuclear Techniques in the  
prospecting and development of mineral resources  
A.I.E.A. - Buenos-Aires - 1968  
(à paraître) :

- (10) - CSUBEK J.A. - SM - 112/5
- (11) - GIVENS W.W., MILLS W.R. Jr., CALDWELL R.L. - SM - 112/6
- (12) - LÖWBORG L., KUNZENDORF H., HANSEN J. - SM - 112/4
- (13) - SIRCANA S., GIORIA G. - SM - 112/19
- (14) - TOLMIE R.W., THOMSON C.J. - SM - 112/31
- (15) - WINCHESTER J.W., CATOGGIO J.A. - SM - 112/2

*Edité par*  
*le Service Central de Documentation du C.E.A.*  
*Centre d'Etudes Nucléaires de Saclay*  
*Boîte Postale n° 2*  
*91 - GIF-sur-YVETTE (France)*