

BUREAU INTERNATIONAL DES POIDS ET MESURES



Rapport sur la comparaison internationale de la mesure du taux d'émission
de la source de neutrons Ra-Be (α, n) du Conseil National de Recherches n° 200-1
par la méthode de ralentissement des neutrons dans une solution de sulfate de manganèse

V. NAGGIAR

27 Février 1967
PAVILLON DE BRETEUIL
SÈVRES (S.-et-O.)
France

Table des matières

	page
Introduction	1
1. Constitution, croissance, spectre de neutrons de la source Ra-Be (α, n)	3
2. La méthode du bain de manganèse	4
3. Sections efficaces de capture des neutrons thermiques. Hydrogène. Manganèse. Soufre	6
4. Corrections pour la capture des neutrons par les résonances du manganèse. Méthode De Juren et Chin. Méthode d'Axton	7
5. Mesure d'activité du ^{56}Mn de la solution. Reproductibilité des mesures	12
6. Etalonnage du détecteur	15
7. Mesure de la concentration $n_{\text{H}}/n_{\text{Mn}}$	16
8. Corrections. Pertes de neutrons hors de la solution. Auto-absorption dans les matériaux constituant la source de neutrons et ses enveloppes. Absorption des neutrons rapides par l'oxygène et le soufre	16
9. Estimation des erreurs. Résultats	22
Tableau I Dimensions et concentration des solutions SO_4Mn . Géométries utilisées dans les mesures d'activité et leur étalonnage	24
Tableau II Méthodes de mesure	25
Tableau III Correction pour la capture des neutrons dans les résonances du manganèse	26
Tableau IV Pertes de neutrons hors de la solution SO_4Mn	27
Tableau V Corrections d'absorption des neutrons rapides par l'oxygène et le soufre, corrections d'auto-absorption	28
Tableau VI Estimation des erreurs dans la méthode du bain de manganèse	29
Tableau VII Résultats communiqués normalisés à janvier 1962 et à janvier 1966 et aux sections efficaces de référence	30
Tableau VIII Analyse des mesures effectuées par la méthode du bain de manganèse affectées d'une erreur partielle pour tenir compte d'erreurs systématiques communes	31
Tableau IX Comparaison des mesures du taux d'émission de sources de neutrons Ra-Be (α, n) par différentes méthodes	32
Figure 1 Spectre de neutrons d'une source Ra-Be (α, n)	33
Figure 2 Schéma de désintégration du ^{56}Mn	34
Figure 3 Correction appliquée à σ_{Mn} pour la capture des neutrons par les résonances du manganèse	35
Figure 4 Estimation par les laboratoires des pertes de neutrons hors de la solution de sulfate de manganèse	36
Figure 5 Résultats des mesures du taux d'émission de la source de neutrons Ra-Be (α, n) du N.R.C. n° 200-1 normalisés à janvier 1962	37
Annexe 1 Rendement en neutrons Be (α, n) d'une cible épaisse pour les α d'une source de radium	38
Annexe 2 Taux de croissance de la source Ra-Be (α, n) du N.R.C.	39
Annexe 3 Mesures de la période du ^{56}Mn (décembre 1963 et avril 1964). Méthode des moindres carrés avec poids statistique pour chaque observation	41
Annexe 4 Mesure d'activité de la solution de sulfate de manganèse	42
Annexe Conditions de mesure des 6 sources comptées en coïncidence $4\pi\beta\text{-}\gamma$ pour l'étalonnage du scintillateur dans le bain de manganèse	43
Liste des références	45

Introduction

Ce rapport contient une analyse comparative des mesures du taux d'émission de la source de neutrons du Conseil National de Recherches N-200-1 Ra-Be (α, n) effectuées entre janvier 1962 et mars 1965 par les laboratoires suivants:

- E.T.L. Electrotechnical Laboratory, Tokyo, Japon,
Janvier 1962
- I.K.O. Instituut voor Kernfysisch Onderzoek, Amsterdam,
Pays-Bas, août 1962
- C.E.N.S. Centre d'Etudes Nucléaires de Saclay, France,
octobre 1962
- I.M.M. Institut de Métrologie D.I. Mendéléev, Leningrad,
U.R.S.S., janvier 1963
- S.R.E. Soreq Research Establishment, Rehovoth, Israël,
mai 1963
- B.C.M.N. Bureau Central de Mesures Nucléaires d'Euratom,
Geel, Belgique, novembre 1963
- B.I.P.M. Bureau International des Poids et Mesures, Sèvres,
France, avril 1964
- A.E.E.T. Atomic Energy Establishment Trombay, Inde, mai 1964
- N.R.C. Conseil National de Recherches, Ottawa, Canada,
septembre 1964
- N.B.S. National Bureau of Standards, Washington D.C.,
U.S.A., mars 1965.

La source de neutrons NRC avait déjà été comparée à leur propre source étalon en 1959 par six laboratoires nationaux (Geiger, 1960):

- N.R.C. Conseil National de Recherches, Ottawa, Canada
- A.B.A. AB. Atomenergi, Nyköping, Suède
- U.M.H.K. Union Minière du Haut-Katanga, Bruxelles, Belgique
- P.T.B. Physikalisch Technische Bundesanstalt, Braunschweig, Allemagne
- N.P.L. National Physical Laboratory, Teddington, Grande-Bretagne
- N.B.S. National Bureau of Standards, Washington D.C., U.S.A.

Des mesures effectuées au N.R.C. avant et après la comparaison de 1959 ont montré que le taux d'émission de la source n'avait pas varié du fait de sa circulation de plus de $\pm 0,3\%$, limite de la précision des mesures. De même, pendant la comparaison organisée par le B.I.P.M. la source est revenue à différentes reprises à Sèvres, en avril, août, novembre 1962, mars et décembre 1963, pour un contrôle de fidélité dans les intervalles de temps séparant les mesures des laboratoires participants. A cet effet nous avons comparé la source NRC à une source Ra-Be (α, n) de 200 mCi, de géométrie très voisine de celle du N.R.C. Nous avons également constaté une reproductibilité de $\pm 0,3\%$, limite de la précision de nos mesures pendant cette période.

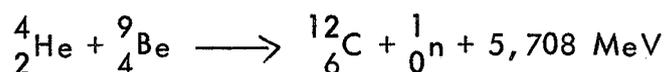
La plupart des laboratoires dont les résultats sont analysés ici ont utilisé pour la mesure du taux d'émission de la source de neutrons NRC la méthode de ralentissement et capture des neutrons dans une solution de sulfate de manganèse et mesure de l'activité du ^{56}Mn . Le laboratoire E.T.L. a comparé la source NRC à sa source étalon en mesurant l'activité de feuilles d'or irradiées par chacune des sources dans un empilement de graphite, activité mesurée dans un compteur proportionnel $4\pi\beta$; cependant la source étalon

de ce laboratoire a été mesurée par la méthode du bain de manganèse, ainsi que par ralentissement dans l'eau et intégration dans tout le volume de l'activité de feuilles d'or (Michikawa et al., 1959). Le laboratoire B.C.M.N. a comparé la source NRC à sa source étalon par activation de feuilles d'or dans l'eau et par activation d'un bain de $MnSO_4$ de dimensions réduites; la source étalon de ce laboratoire a été mesurée par activation de feuilles d'or dans l'eau; une mesure dans un bain $MnSO_4$ de grandes dimensions est également prévue. Le tableau II indique pour chaque laboratoire la méthode de mesure utilisée et la référence de la mesure de leur source étalon.

1. Constitution, croissance, spectre de neutrons de la source

Ra-Be (α, n)

La source de neutrons NRC N-200-1 a été préparée en 1948; elle est constituée de 0,183 g de radium élément sous forme de carbonate, mélangé à 2 g de beryllium en poudre, contenus dans une capsule cylindrique en alliage monel de 19 mm de diamètre, 19 mm de hauteur, 2 mm d'épaisseur de paroi. Le $^{226}_{88}\text{Ra}$ émetteur α ($T = 1\,620$ a) est en équilibre radioactif avec ses premiers descendants jusqu'au $^{210}_{82}\text{Pb}$ (Ra D) émetteur β^- ($T = 22$ a) et son descendant $^{210}_{84}\text{Po}$ émetteur α ($T = 138$ j) qui s'accumulent dans la source avec la période de 22 a. Les neutrons sont produits principalement d'après la réaction



dans laquelle le ^{12}C est formé dans son état fondamental ou dans un de ses états excités.

Le rendement en neutrons, sur cible épaisse de beryllium, pour chacun des 5 émetteurs α d'une source de radium est indiqué dans un tableau (annexe 1) d'après les mesures de Anderson et Feld (1947), Runnalls et Boucher (1956). Pour la source NRC l'accumulation du $^{210}_{84}\text{Po}$ donne lieu en 1962 à une augmentation du taux d'émission de 0,3% par an (voir calcul annexe 2).

La fig. 1 représente le spectre de neutrons d'une source Ra-Be (α, n) d'après l'observation des traces de proton de recul dans une émulsion nucléaire par Miedveczky (1961) et par Geiger et al. (1964). L'allure du spectre ne peut être déterminée qu'au-dessus de 0,750 MeV. La fraction de neutrons émis au-dessous de cette énergie est estimée à $(37 \pm 15)\%$ (Geiger et al., 1964).

2. La méthode du bain de manganèse

La mesure du taux d'émission d'une source par la méthode de ralentissement des neutrons, développée à partir des travaux d'Amaldi et Fermi (1936), est appliquée principalement suivant deux variantes:

1) Les neutrons sont ralentis dans l'eau, leur distribution dans le régime stationnaire est déterminée point par point par activation de feuilles d'or; l'intégration à tout le volume de l'activité β^- de ^{198}Au mesurée par comptage en coïncidence $4\pi\beta-\gamma$ dans un compteur proportionnel détermine le taux d'émission de la source de neutrons;

2) les neutrons sont ralentis et capturés dans une solution de sulfate de manganèse; après retrait de la source et brassage de la solution, l'activité gamma provenant de la désintégration β^- du ^{56}Mn (fig. 2) est mesurée dans une géométrie dont l'étalonnage s'effectue par l'intermédiaire d'une petite quantité pondérée d'une solution de ^{56}Mn de forte activité massique étalonnée.

La méthode du bain de manganèse, qui est susceptible de la meilleure précision, est adoptée par la plupart des laboratoires. Nous analysons ici plus particulièrement les résultats obtenus par cette méthode.

Le bain de sulfate de manganèse est assez étendu pour capturer la presque totalité des neutrons émis par la source

$$Q = Q_{\text{Mn}} \times \frac{1}{F} \times K s^{-1} \quad (1)$$

où Q est le taux d'émission des neutrons,

Q_{Mn} le taux de capture des neutrons par les noyaux de manganèse contenus dans la solution,

F le rapport des neutrons capturés par les noyaux de manganèse aux neutrons capturés par tous les éléments,

K un facteur de correction qui comprend l'absorption des neutrons dans la source (auto-absorption), l'absorption des neutrons rapides par réaction (n, p) et (n, α) sur l'oxygène et le soufre et la perte des neutrons hors du bain de manganèse.

Si l'on admet que la section efficace de capture du neutron par le noyau d'espèce i suit la loi de variation en $1/v$ avec la vitesse v du neutron, le nombre de neutrons capturés par unité de volume est, par unité de temps:

$$n_i \int_{v=0}^{v_{\max}} \sigma_i(v) \rho(v) v dv = n_i \rho \sigma_i(v_0) v_0$$

où n_i est le nombre de noyaux par unité de volume de l'espèce i ,

$\rho(v) dv$ le nombre de neutrons par unité de volume de vitesse v ,

ρdv le nombre de neutrons par unité de volume quelle que soit leur vitesse,

$\sigma_i(v_0)$ la section efficace de capture pour le neutron thermique de vitesse $v_0 = 2,2 \times 10^5 \text{ cm s}^{-1}$.

Si les sections efficaces de capture de tous les éléments contenus dans la solution suivent cette loi de variation en $1/v$, on peut écrire

$$F = \frac{n_{Mn} \sigma_{Mn}}{n_{Mn} \sigma_{Mn} + n_S \sigma_S + n_H \sigma_H} \quad (2)$$

où les σ_i sont les sections efficaces $\sigma_i(v_0)$.

3. Sections efficaces de capture des neutrons thermiques

Hydrogène

D'après l'analyse de Hughes et al. (1960) s'étendant sur 9 travaux, parmi lesquels on peut citer:

Hamermesh et al. (1953)	$\sigma_H = 0,329 \pm 0,004$
Von Dardel et Sjostrand (1954)	$0,333 \pm 0,003$
Mead et al. (1956)	$0,335 \pm 0,004$
Baker (1958)	$0,327 \pm 0,004,$

on peut adopter pour la section efficace de capture des neutrons thermiques de vitesse $v_0 = 2,2 \times 10^5 \text{ cm s}^{-1}$, $\sigma_H = 0,332 \pm 0,002$ barns.

Des mesures plus récentes de KÜchle (1960)	$0,326 \pm 0,006$
de Meadows et Whalen (1961)	$0,325 \pm 0,005$

n'étant pas plus précises que les mesures antérieures, nous utiliserons la valeur de Hughes et al. (1960)

$$\sigma_H = 0,332 \pm 0,002 \text{ barns.}$$

Manganèse

Après analyse de 11 travaux, Hughes et Schwartz (1958) adoptent

$$\sigma_{Mn} = 13,2 \pm 0,2 \text{ barns.}$$

Une mesure plus récente de Meadows et Whalen (1961) $13,2 \pm 0,1$ confirme cette valeur.

Dans la méthode du bain de manganèse la mesure ne dépend que du rapport σ_H / σ_{Mn} . Une mesure directe de ce rapport peut être plus précise que le résultat de mesures distinctes de σ_H et σ_{Mn} . Wunderer (1958) et Axton (1965) ont effectué une mesure directe.

Ils obtiennent

$$\begin{aligned}\sigma_H / \sigma_{Mn} &= 0,0249 \pm 1,6\% \text{ (Wunderer)} \\ &= 0,02498 \pm 0,4\% \text{ (Axton)},\end{aligned}$$

en accord avec $0,02515 \pm 1\%$ déduit des mesures distinctes

$$\sigma_H = 0,332 \pm 0,6\% \text{ et } \sigma_{Mn} = 13,2 \pm 0,8\%.$$

Soufre

$$\sigma_S = 0,52 \pm 0,02 \text{ barns (Hughes et Schwartz, 1958).}$$

4. Corrections pour la capture des neutrons par les résonances du manganèse

A cause de la résonance du manganèse à 337 eV et des résonances au-dessus de cette énergie de neutrons, l'expression (2) doit être corrigée (De Juren et Chin, 1955; Wunderer, 1958; Geiger, 1964; Axton, 1965).

Méthode De Juren et Chin

La correction est déduite des résultats de Walker (1944) obtenus pour des neutrons en ralentissement dans l'eau. Au moyen d'un compteur à bore, le rapport, avec et sans cadmium, de la distribution des neutrons, intégrée dans tout le volume d'eau autour de la source, est de 0,71%; quand on remplace le bore, détecteur en $1/v$, par la détection par activation de feuilles de manganèse, ce rapport est de 1,5%.

Pour un spectre de neutrons en ralentissement dans l'eau, dont la distribution est en $1/E$, la probabilité p_H pour le neutron d'échapper à la capture par l'hydrogène avant d'atteindre l'énergie de coupure du cadmium E_{Cd} est

$$p_H = \exp - \int_{E_{Cd}}^{E_{max}} \frac{\sigma_H(E)}{\sigma_{s,H}(E)} \frac{dE}{E}$$

où $\sigma_H(E)$ est la section efficace de capture de l'hydrogène à l'énergie E ,

$\sigma_H(E) = \sigma_H \left(\frac{E_0}{E}\right)^{1/2}$, où σ_H est la section efficace de capture de l'hydrogène pour les neutrons thermiques d'énergie $E_0 = 0,025$ eV correspondant à $v_0 = 2,2 \times 10^5$ cm s⁻¹. $\sigma_{s,H}(E)$ est la section efficace de diffusion de l'hydrogène; elle est constante et égale à 20 barns pour des neutrons d'énergie inférieure à 10 keV. p étant voisin de l'unité, on obtient

$$(1 - p)_H \approx \frac{2 \sigma_H}{\sigma_{s,H}} \times \left(\frac{E_0}{E_{Cd}}\right)^{1/2} = \frac{2 \times 0,332}{20} \times \left(\frac{0,025}{0,5}\right)^{1/2} = 0,0073$$

résultat en bon accord avec la mesure effectuée par Walker au moyen du compteur à bore.

Par ailleurs, le résultat obtenu avec le détecteur de manganèse est utilisé par De Juren et Chin pour considérer que le facteur de correction qu'il faut appliquer à la détection par le manganèse du fait de son absorption dans les résonances est de $1,5/0,72 = 2,08$ par rapport à une activation supposée en $1/v$. On admet ainsi que la probabilité de capture dans les résonances du manganèse

$$(1 - p)_{Mn, \text{rés.}} = 1,08 (1 - p)_{Mn, 1/v}$$

Ce résultat obtenu à partir de la détection par des feuilles de manganèse est appliqué au bain de manganèse. La probabilité $p_{Mn, 1/v}$ d'échapper à la capture supposée en $1/v$, par le manganèse, pour un neutron en ralentissement dans une solution de manganèse, avant d'atteindre E_{Cd} est

$$p_{Mn, 1/v} = \exp - \int_{E_{Cd}}^{E_{\max}} \frac{n_{Mn} \sigma_{Mn}(E)}{n_H \sigma_{s,H}(E)} \frac{dE}{E}$$

$$(1 - p)_{Mn, 1/v} \approx \frac{2 n_{Mn} \sigma_{Mn}}{n_H \sigma_{s,H}} \left(\frac{E_o}{E_{Cd}} \right)^{1/2}$$

d'où

$$(1 - p)_{Mn, rés.} = 1,08 \frac{2 n_{Mn} \sigma_{Mn}}{n_H \sigma_{s,H}} \left(\frac{E_o}{E_{Cd}} \right)^{1/2}$$

Le taux de réaction sur le manganèse dans la solution pour la partie de la section efficace en $1/v$ est

$$p_{Mn, rés.} \times Q \times \frac{n_{Mn} \sigma_{Mn}}{\sum n_i \sigma_i}$$

Le taux de réaction dans les résonances du manganèse est

$$(1 - p)_{Mn, rés.} \times Q$$

$$\text{d'où taux de réaction } \left(\frac{1/v + \text{rés.}}{1/v} \right) = 1 + (1 - p)_{Mn, rés.} \times \frac{\sum n_i \sigma_i}{n_{Mn} \sigma_{Mn}} =$$

$$1 + 1,08 \times 2 \left(\frac{E_o}{E_{Cd}} \right)^{1/2} \times \frac{\sum n_i \sigma_i}{n_H \sigma_{s,H}} = 1 + a$$

En fonction du rapport du nombre de noyaux de manganèse et d'hydrogène $c = \frac{n_{Mn}}{n_H}$, on trouve pour le terme de correction

$$a = (33 \times c + 0,80)\% .$$

Méthode d'Axtou

Axtou et al. (1965) déterminent la section efficace effective $\hat{\sigma}$ définie d'après la convention de Westcott (1958)

$$R = n v_o \hat{\sigma}$$

où R est le taux de réaction

n le nombre total de neutrons thermiques et épithermiques par unité de volume

$$\hat{\sigma} = \sigma_{Mn} (g + G \bar{r} s)$$

g et s sont les facteurs de correction par rapport à un détecteur en $1/v$, respectivement pour la partie maxwellienne du spectre et pour la partie en dE/E . Pour le manganèse (Walker et al. 1960)

$$g = 1 \text{ et } s = \frac{1}{\sigma_{Mn}} \sqrt{\frac{4}{\pi}} \times J = 0,666, \text{ d'après la valeur de l'intégrale}$$

de résonance

$$J = \int_{\text{rés.}} \left[\sigma_{Mn}(E) - \sigma_{Mn}(E_0) \left(\frac{E_0}{E} \right)^{1/2} \right] \frac{dE}{E} = (7,8 \pm 0,8) 10^{-24} \text{ cm}^2$$

\bar{r} est l'indice de densité épithermique $\bar{r} = f \sqrt{\pi\mu/4}$, où f est la fraction de la densité épithermique par rapport à la densité totale de neutrons,

μkT est la limite inférieure de l'énergie du spectre en dE/E ,

$$\bar{r} = \sqrt{\frac{\pi}{4}} \frac{\sum n_i \sigma_i}{\sum n_i \sigma_i \xi_i}$$

ξ_i est le décrétement logarithmique de l'énergie perdue par choc,

G est un facteur qui représente l'effet d'écran de la solution SO_4Mn à l'énergie de résonance. Dans le calcul de De Juren et Chin on admet implicitement que ce facteur est inchangé, que ce soit dans la détection avec une feuille de manganèse ou dans la détection par le manganèse en solution. L'effet d'écran par la solution diminue la probabilité de capture dans la résonance. Un des modes de calcul utilisé par Axton et al. (1965) consiste à considérer que durant son ralentissement dans la solution la probabilité de capture dans la résonance est réduite par la probabilité qu'a le neutron d'être diffusé

$$G = \frac{\sum_i n_i \sigma_{s,i}}{\sum_i n_i \sigma_{s,i} + n_{Mn} \sigma_r}$$

$\sigma_r = 320$ barns est la section efficace fictive pour la capture des neutrons de résonance; cette valeur a été obtenue d'après le calcul de l'effet d'écran dans les mesures effectuées au moyen de feuilles de manganèse (Axton, 1963).

En fonction du rapport c de la solution SO_4Mn , on obtient:

$$G = \frac{23,8 + 30,4 c}{23,8 + 350 c} \quad \bar{r} = 0,886 \frac{0,332 + 13,72 c}{20,42 + 3,65 c} .$$

En particulier pour le rapport $c = 0,034$ on trouve par cette méthode $G \bar{r} s = 0,016$, alors que le calcul par la méthode de De Juren et Chin donne pour le facteur de correction a qui est l'équivalent du terme $G \bar{r} s$, $a = 0,019$.

La figure 3 représente la variation de a en fonction de la concentration en manganèse d'après les deux méthodes de calcul.

Louwrier et Aten Jr. (1965) ont mesuré le rapport cadmium pour des feuilles de manganèse activées dans une solution de SO_4Mn , dans laquelle les neutrons d'une source Pu-Be (α, n) sont en ralentissement. Ils obtiennent pour l'intégrale de résonance, après déduction de la capture en $1/v$,

$$J_{\text{rés.}} = (9,4 \pm 1,4) 10^{-24} \text{ cm}^2 ,$$

résultat compatible avec le résultat de Walker et al. ($7,8 \pm 0,8$). Malgré la différence de 17% entre ces deux valeurs de $J_{\text{rés.}}$, l'écart sur le taux d'émission de la source qui en résulte est

$$\frac{\Delta Q}{Q} = 0,002 .$$

Le tableau III compare la correction adoptée par les laboratoires aux corrections calculées d'après les méthodes De Juren et Axton.

5. Mesure d'activité du ^{56}Mn de la solution. Reproductibilité des mesures

Pour une irradiation à saturation le taux de désintégration du ^{56}Mn à l'instant où la source est retirée de la solution (temps zéro) est égal à Q_{Mn} , taux de capture des neutrons par le manganèse. Pour une irradiation d'une durée égale à t l'activité au temps zéro est

$$A(t) = Q_{\text{Mn}} (1 - e^{-\lambda t})$$

où λ est la constante radioactive du ^{56}Mn . Les mesures de période citées dans la littérature sont celles de

Bishop et al. (1950)	$T = (2,586 \pm 0,005) \text{ h}$
Bartholomew et al. (1953)	$T = (2,578 \pm 0,003) \text{ h}$
Locket et Thomas (1953)	$T = (2,574 \pm 0,003) \text{ h.}$

Nous avons effectué des mesures au Bureau International des Poids et Mesures en 1963 et 1964 au moyen de sources minces de ^{56}Mn comptées dans deux compteurs $4\pi\beta$ proportionnels à circulation de méthane et avons obtenu $T = (2,578 \pm 0,003) \text{ h}$ (annexe 3). Pour une irradiation de 15 heures, la solution a une activité au temps zéro qui diffère de 2% de l'activité à saturation. Pour un comptage d'activité $\mathcal{A}(\tau)$ intégré pendant un temps τ (mouvement propre déduit) effectué à partir du temps (zéro + t_0), l'activité A_0 au temps zéro est donnée par

$$A_0 = \frac{\mathcal{A}(\tau) \lambda}{1 - e^{-\lambda \tau}} e^{\lambda t_0}$$

Pour deux activations effectuées à 24 heures d'intervalle il faut tenir compte dans la seconde activation d'un résidu d'activité de 0,16%. Le schéma de désintégration β^- du ^{56}Mn est représenté par la figure 2.

Pour mesurer l'activité de la solution, on peut soit détecter le rayonnement β^- du ^{56}Mn au moyen de compteurs à gaz à paroi mince fonctionnant en régime Geiger-Müller ou en régime proportionnel, soit détecter le rayonnement γ provenant des états excités du ^{56}Fe , au moyen d'un scintillateur accolé à un photomultiplicateur. Bien que

d'une façon générale les compteurs à gaz soient plus stables que les compteurs à scintillation, ces derniers ont la préférence parce que la détection des gamma permet l'utilisation d'un volume plus grand de solution SO_4Mn autour du détecteur, ce qui permet d'accumuler une plus forte statistique dans un temps donné.

Les géométries utilisées dans la détection par scintillateur sont différentes suivant que l'on compte une aliquote de la solution active ou que l'on utilise toute la solution active en immergeant le détecteur au centre de celle-ci. Les dimensions des cuves, la concentration en manganèse du bain, le détecteur et la géométrie utilisée pour la mesure d'activité, ainsi que la méthode de mesure de l'activité massique des solutions de ^{56}Mn qui servent à l'étalonnage du détecteur, sont rassemblés dans le tableau I.

La mesure d'activité au moyen d'un scintillateur NaI-photo-multiplicateur présente une difficulté: pendant chaque mesure, qui dure de 1 à 2 heures afin d'accumuler environ 10^6 impulsions, l'étalonnage du scintillateur peut varier. En particulier, nous avons observé sur notre dispositif une variation du gain du photomultiplicateur en fonction de la température produisant une variation d'amplitude de 12 keV par degré centigrade pour une énergie de 660 keV. Diverses méthodes sont utilisées pour corriger les fluctuations de gain. Au N.R.C. le gain est maintenu constant au moyen d'un asservissement de la tension appliquée aux dynodes du photomultiplicateur à la position du pic photoélectrique de 0,845 MeV du ^{56}Mn analysé sur un sélecteur d'impulsions. Le seuil de discrimination fixé à 0,670 MeV est ainsi stabilisé à $\pm 0,5$ keV. Au N.P.L. le gain est réglé de manière à obtenir une saturation des impulsions; on observe un palier de comptage qui s'étend sur 200 volts avec une pente inférieure à 1% pour 100 volts. Par ailleurs, la solution circule à raison de 4 l/min entre la cuve où elle est irradiée par les neutrons de la source et les deux enceintes qui contiennent deux dispositifs de comptage indépendants dans lesquels chaque scintillateur est entouré de 2 l de solution. Le comptage est ainsi constant en fonction du temps et la statistique peut être accumulée à volonté. Nous décrivons ci-dessous la méthode que nous avons utilisée au Bureau International. Pendant chaque mesure on enregistre au moyen d'un sélecteur à 400 canaux le spectre des impulsions; les pics photoélectriques de 0,840 MeV et de 1,810 MeV sont utilisés pour étalonner le scintillateur et déterminer dans chaque

mesure l'énergie du seuil de discrimination à partir duquel s'effectue le comptage au moyen d'une échelle. Le seuil fixé vers 0,720 MeV est ainsi défini à ± 1 keV près. A une variation de seuil de 0,5 keV correspond une variation de comptage de 0,1%. Toutes les mesures sont normalisées à une même énergie du seuil de discrimination. L'annexe 4 donne les résultats d'une série de mesures d'activité de la solution irradiée par la source de neutrons, série comportant 3 comptages d'une durée totale de 5 heures. Nous avons obtenu pour 8 séries de mesures échelonnées sur un mois et encadrant un étalonnage du bain, une activité au temps zéro normalisée à un même seuil de discrimination de

18 467 - 18 452 - 18 406 - 18 522 - 18 390 - 18 450

18 467 - 18 464 , moyenne 18 452.

L'écart-type de chaque mesure est

$$\sigma = \sqrt{\frac{\sum \varepsilon^2}{n-1}} = 0,22\%$$

et l'écart-type de la moyenne $\sigma_{\bar{x}} = \frac{\sigma}{\sqrt{n}} = 0,08\%$.

D'après les résultats obtenus par un certain nombre de laboratoires on peut admettre que l'activité de la solution peut être repérée à $\pm 0,1\%$.

La distribution des impulsions du scintillateur est fonction du volume de solution entourant le cristal NaI. Pour un petit volume de quelques litres les gammas de désexcitation du ^{56}Fe ont une faible probabilité d'être diffusés par la solution avant d'atteindre le cristal NaI. Par contre les gammas provenant d'une région assez distante du cristal, lorsque celui-ci est contenu dans la cuve où s'effectue l'irradiation, ont une probabilité non négligeable d'être diffusés avant d'atteindre le cristal, ce qui explique que le nombre d'impulsions dans les pics photoélectriques par rapport au nombre total d'impulsions est plus faible dans cette géométrie que dans la précédente. La stabilité du comptage est donc plus facile à obtenir dans une géométrie de petite dimension. D'autre part, le maintien du cristal et de son photo-

multiplicateur dans une enceinte dont la température peut être contrôlée est favorable à la stabilité du comptage. C'est pourquoi la méthode de mesure par circulation de la solution irradiée présente des avantages certains.

6. Etalonnage du détecteur

Pour étalonner le détecteur utilisé pour mesurer l'activité du bain de manganèse, les laboratoires préparent une solution de forte activité massique de ^{56}Mn qui est ajoutée au bain inactif et comptée dans les mêmes conditions que pour une irradiation du bain par la source de neutrons. La solution de forte activité massique est obtenue soit en irradiant du manganèse élément, soit en irradiant une solution SO_4Mn dans un flux de neutrons de pile. L'activité massique est déterminée au moyen de gouttes déposées sur film mince comptées soit en $4\pi\beta$ simple, soit en coïncidence $4\pi\beta\text{-}\gamma$ dans un compteur proportionnel à circulation de méthane pour le comptage β et dans un scintillateur pour le comptage γ . La méthode de comptage en coïncidence $4\pi\beta\text{-}\gamma$ est préférable puisque le rapport des comptages coïncidence/gamma détermine l'efficacité β du compteur pour la source. Pour diminuer la correction qu'il faut appliquer pour tenir compte des efficacités gamma différentes du scintillateur pour les divers gammas de désexcitation du ^{56}Fe , il convient de sélectionner sur la voie gamma le pic photoélectrique de 0,845 MeV (Axton, 1963).

Nous donnons dans l'annexe 5 les conditions de mesure et les formules employées au B.I.P.M. pour la mesure de l'activité massique d'une solution de ^{56}Mn utilisée pour l'étalonnage du bain.

La mesure de sources solides et de solutions de ^{60}Co par la méthode de comptage en coïncidence $4\pi\beta\text{-}\gamma$ a fait l'objet d'une comparaison internationale, de sorte que les dispositifs utilisés dans les différents laboratoires nationaux, les formules et corrections appliquées à cette méthode de mesure sont mutuellement contrôlés (Rytz, 1964, 1965).

7. Mesure de la concentration n_H/n_{Mn}

Le rapport n_H/n_{Mn} de la solution SO_4Mn est obtenu soit par analyse chimique, soit par mesure de masse volumique, soit par pesée d'une masse de solution et du résidu après élimination de l'eau qu'elle contient par chauffage prolongé à $300^\circ C$. Cette dernière méthode susceptible d'une grande précision n'est valable que si elle est accompagnée d'un contrôle de pureté chimique.

8. Corrections

8.1. Pertes de neutrons hors de la solution

Le tableau IV donne l'estimation par les différents laboratoires des pertes de neutrons pour les dimensions des solutions et pour les concentrations utilisées. Le rayon R de la sphère équivalente qui figure dans la colonne 2 de ce tableau a été obtenu en retranchant du rayon de la sphère de même volume que celui de la solution le rayon de la source ou le rayon de la cavité utilisée. La figure 4 rassemble l'estimation des pertes en fonction du rayon de la sphère équivalente. On voit que toutes ces estimations sont compatibles avec la relation

$$k_p = 2,0 \exp(-R/9,7) .$$

La colonne 4 du tableau III donne le calcul des pertes d'après cette formule.

Les méthodes utilisées par les laboratoires pour effectuer l'estimation des pertes sont indiquées ci-dessous.

Laboratoires	Méthodes utilisées pour l'estimation des pertes de neutrons
ETL (Tokyo)	Extrapolation de la distribution exponentielle dans une cuve à eau $\exp(-R/L)$, $L = 10,5$ cm.
IKO (Amsterdam)	Mesure de l'activité totale pour 3 bains cylindriques de 56cm, 80cm et 99,4cm de diamètre. La perte de neutrons est compatible avec la relation $k_p = 1,87 \exp(-R/9,43)$.
CENS (Saclay)	Rapport des comptages d'un long-compteur pour la source dans l'air et pour la source entourée par la solution.
NRC (Ottawa)	<p>(1) D'après la mesure de Larsson (1954) de distribution dans une cuve à eau $k_p = 1,5 \exp(-R/10)$.</p> <p>(2) D'après les mesures de Rumsey et Ward (1948) pour des solutions de manganèse de différentes dimensions $k_p = 1,9 \exp(-R/9,523)$.</p> <p>(3) Rapport des comptages d'un long-compteur pour la source dans l'air et pour la source entourée par la solution; la perte mesurée par le long-compteur avec écran de cadmium est de 0,8%; elle est multipliée par 1,3 pour tenir compte de la perte de neutrons thermiques, soit au total 1%.</p>
SRE (Rehovoth)	Calcul de distribution des neutrons par Krumbein (1957), formule empirique déduite des mesures de Larsson $k_p = 1,29 \exp(-R/10,4)$.
BIPM (Sèvres)	<p>(1) Formule empirique déduite de Hanna et Runnalls (1956) $k_p = 1,9 \exp(-R/9,47)$.</p> <p>(2) Mesure au long-compteur avec et sans cadmium.</p>
NPL (Teddington)	Mesure des pertes au long-compteur pour 4 géométries différentes, formule empirique $k_p = 2,14 \exp(-R/8,62)$. (Axton et Cross, 1961).
AEET (Trombay)	Mesure de la distribution des neutrons dans l'eau avec un compteur à BF_3 $A \exp(-R/L) = A \exp(-R/9,247)$. On suppose qu'un élément absorbant ne perturbe pas cette distribution.
NBS (Washington)	Application de la formule empirique $1,9 \exp(-R/9,474)$. Un calcul de W. Murphey par une méthode de Monte Carlo est en cours.

Les méthodes expérimentales utilisées pour déterminer la perte de neutrons hors de la solution sont de trois types:

a) mesure au long-compteur des neutrons qui s'échappent de la solution. Cette méthode est tributaire de l'efficacité du long-compteur, laquelle est fonction de la répartition en énergie des neutrons détectés. Il faut éviter de disposer le long-compteur trop près de la solution car il modifierait la distribution spectrale des neutrons.

b) mesure de la distribution des neutrons en ralentissement dans l'eau. Au-delà de 15 cm la distribution des neutrons thermiques est une fonction exponentielle de la distance à la source

$$4\pi r^2 \rho(r) dr = a \exp(-r/L) dr$$

où $\rho(r)$ est le nombre de neutrons par centimètre cube à la distance r exprimée en cm

a et L sont deux constantes déterminées expérimentalement.

Si l'on admet la même distribution pour un milieu modérateur limité par une sphère de rayon R , la fraction des neutrons thermiques non capturés dans le milieu est

$$k_p = \int_R^{\infty} a \exp(-r/L) dr = A \exp(-R/L).$$

D'après les mesures de Rusch (1947) dans l'eau $A = 1,91$ et $L = 9,47$ cm. Hanna et Runnalls (1956) admettent que L est le même pour l'eau et pour SO_4Mn par compensation de deux effets: dans la solution SO_4Mn le nombre de noyaux d'hydrogène par unité de volume étant plus faible, L est plus grand; par contre la diffusion inélastique des neutrons sur le manganèse diminue L . Pour tenir compte du volume limité du milieu, ils appliquent un facteur de correction évalué à 1,4 dans le cas de l'eau et à 1,3 pour SO_4Mn .

c) mesure de l'activité produite par une même source en fonction du volume de la solution. Les résultats de Rumsey et Ward (1948) sont compatibles avec l'expression

$$k_p = 1,9 \exp(-R/9,47) .$$

Davy (1966) obtient $k_p = 2,1 \exp(-R/10,5)$. Pour une sphère $R = 50$ cm la correction serait de 1,8%, alors que l'expression indiquée à la 4^e colonne du tableau IV donnerait 1,2%. Louvrier (1966) trouve $k_p = 1,87 \exp(-R/9,43)$.

8.2. Auto-absorption dans les matériaux constituant la source de neutrons et ses enveloppes

Il est convenu de déterminer le taux d'émission des sources de neutrons en les supposant entourées d'air. Quand on mesure le taux d'émission par une méthode de ralentissement, le modérateur, en modifiant la répartition spectrale des neutrons dans le volume où se trouve localisée la source, augmente l'auto-absorption des neutrons. La correction qu'il faut appliquer résulte de l'absorption des neutrons thermiques et intermédiaires par les matériaux qui constituent la source: sel de radium, alliage monel de la capsule, enveloppe supplémentaire que chaque laboratoire utilise pour adapter la source aux conditions de son appareillage. Le taux d'absorption des neutrons par la source est donné par

$$Q_a = \sum_a \rho v_o$$

où \sum_a est la section efficace macroscopique "effective" d'absorption

ρ est le nombre de neutrons par unité de volume de toutes énergies au droit de la source

$$v_o = 2,2 \times 10^5 \text{ cm s}^{-1} .$$

En fait, on ne tient compte que de l'absorption des neutrons thermiques et on admet que les sections efficaces de capture des neutrons thermiques varient en $1/v$.

D'après la composition de la source NRC on a

pour 25,5 g de monel (Ni 60%, Cu 33%, Fe 7%)	$N\sigma = 1,07 \text{ cm}^2$
pour 0,2 g de radium	0,01
	$1,08 \text{ cm}^2$

Pour réduire le flux de neutrons thermiques au droit de la source, et par suite la correction à appliquer, le N.P.L. et le N.B.S. disposent la source au centre d'une cavité de 10 cm de diamètre (polystyrène, téflon). Cependant l'usage d'une cavité diminue les dimensions du modérateur et par suite augmente la correction de pertes de neutrons hors de la solution. Pour déterminer la correction d'auto-absorption un certain nombre de laboratoires mesurent directement le flux thermique au centre (A.E.E.T. au moyen d'un petit compteur à BF_3 dans l'eau, N.B.S. et N.P.L. respectivement par activation de feuilles d'indium et de manganèse dans la cavité). Une autre méthode consiste à calculer la correction d'après celle qui a été déterminée par De Troyer et Tavernier (1954) pour une source dans l'eau. Ils font varier la section efficace macroscopique de capture en entourant la source de feuilles d'argent et en extrapolant pour la valeur de la section efficace calculée pour la source; Geiger et Whyte (1959) en déduisent l'auto-absorption pour la source plongée dans SO_4Mn en multipliant l'auto-absorption dans l'eau par le rapport des vies moyennes du neutron thermique

dans les deux milieux $\left(\frac{n_{\text{H}} \sigma_{\text{H}}}{n_{\text{H}} \sigma_{\text{H}} + n_{\text{Mn}} \sigma_{\text{Mn}}} \right)$.

Louwrier (1966) détermine l'auto-absorption dans la source par deux méthodes:

a) par la méthode précédente de variation d'absorption appliquée à une source plongée dans une solution de SO_4Mn dont on mesure l'activité,

b) en entourant la source de cavités de cadmium de différentes dimensions et en extrapolant l'activité mesurée pour le cas où la source est nue.

Le tableau V, colonne 3, rassemble l'estimation d'auto-absorption par les laboratoires.

8.3. Absorption des neutrons rapides par l'oxygène et le soufre

L'oxygène contenu dans la solution de sulfate de manganèse absorbe une fraction des neutrons rapides dont l'énergie est supérieure à 3,65 MeV, seuil de la réaction $^{16}\text{O} (n, \alpha) ^{13}\text{C}$. Il en est de même du soufre pour les neutrons au-dessus de 2 MeV par les réactions $^{32}\text{S} (n, p) ^{32}\text{P}$ et $^{32}\text{S} (n, \alpha) ^{29}\text{Si}$.

De Troyer et Tavernier (1954) déterminent la correction à appliquer en activant des feuilles d'indium soit avec une source Ra-Be (α, n) comportant des neutrons dont l'énergie est supérieure au seuil de la réaction $^{16}\text{O} (n, \alpha) ^{13}\text{C}$, soit avec une source Ra-Be (γ, n) dont le spectre inférieur à 1 MeV ne nécessite pas cette correction; pour chaque source l'activation est effectuée successivement dans de l'huile de paraffine et dans l'eau. On trouve ainsi que dans l'eau la correction est de $(2,2 \pm 0,3)\%$.

Par une méthode analogue Mc Taggart (1961), Ryves et Harden (1965) obtiennent respectivement $(0,7 \pm 1,3)\%$ et $(1,7 \pm 0,25)\%$.

Murphey (1965) calcule la perte de neutrons par réaction sur l'oxygène dans l'eau pure pour un spectre de neutrons d'une source Ra-Be (α, n) tel qu'il a été déterminé par Geiger et al. (1964) et obtient $(1,93 \pm 0,5)\%$. Cependant les sections efficaces qu'il utilise pour $^{16}\text{O} (n, \alpha)$ sont probablement trop fortes si l'on se réfère aux mesures de Bormann et al. (1963), Davis et al. (1963).

Pour une solution SO_4Mn de rapport c , on calcule absorption par l'oxygène $(\text{SO}_4\text{Mn}) = \text{abs. (eau pure)} \times (8/c + 1)$.

En ce qui concerne l'absorption des neutrons rapides par le soufre, on admet que la section efficace d'absorption est en moyenne deux fois celle de l'oxygène; d'où:

$$\text{absorption par le soufre} = \text{abs. par l'oxygène} (\text{SO}_4\text{Mn}) \times \frac{4}{8 + 1/c}$$

Louwrier (1966) donne une analyse détaillée des calculs d'absorption des neutrons dans les réactions (n, p) et (n, α) sur l'oxygène et le soufre. Pour une solution de SO_4Mn de 27,4% de concentration qui correspond à $c = n_{\text{Mn}}/n_{\text{H}} = 0,0163$, il calcule une perte de

neutrons de $(1,6 \pm 0,4)\%$. Pour cette concentration, la perte calculée en admettant une perte de 2,2% dans l'eau serait de 2,6%.

On trouvera dans le tableau V, colonne 2, l'estimation de cette correction par les laboratoires.

9. Estimation des erreurs. Résultats

Le tableau VI indique l'estimation des erreurs par les laboratoires dans la méthode de mesure du taux d'émission de la source Ra-Be (α, n) par ralentissement des neutrons dans une solution SO_4Mn . L'erreur totale est obtenue par addition quadratique des erreurs provenant des grandeurs mesurées ou des corrections appliquées. L'A.E.E.T. distingue les erreurs statistiques dont le total est obtenu par sommation quadratique et les erreurs systématiques dont le total est obtenu par sommation arithmétique; l'erreur totale est obtenue par addition des erreurs statistiques et systématiques. Si l'on adopte pour la mesure de l'A.E.E.T. la méthode d'estimation utilisée par les autres laboratoires on obtient une erreur de $\pm 1,7\%$. En dehors de la mesure de l'E.T.L. qui considère que sa mesure est entachée d'une erreur plus grande de $\pm 3\%$, probablement parce qu'elle se réfère à une mesure directe plus ancienne (1959), l'erreur estimée par les autres laboratoires varie de $\pm 0,7$ à $\pm 1,7\%$, avec une moyenne de $\pm 1,25\%$.

Les résultats obtenus sont indiqués dans le tableau VII et la figure 5. Ils sont normalisés à janvier 1962 et à janvier 1966 et aux sections efficaces de capture $\sigma_i(v_0)$ indiquées dans le tableau. Nous avons également porté dans ce tableau la mesure du N.P.L. de 1959, qui a été réévaluée par ce laboratoire d'après les mesures plus précises effectuées sur leurs sources étalons.

L'écart maximal entre les 11 résultats de mesure est de 3%. On peut adopter comme valeur la plus probable du taux d'émission de la source NRC la moyenne arithmétique de tous les résultats.

$$Q_{\text{NRC}} = (3,230 \pm 0,03) 10^6 \text{ neutrons s}^{-1} \text{ (janvier 1962)}$$

ou

$$= (3,269 \pm 0,03) 10^6 \text{ " (janvier 1966).}$$

Trois fois l'écart-type de la moyenne des résultats représente environ 1% de celle-ci.

Si l'on affecte à chaque mesure l'erreur indiquée par chaque laboratoire, on constate que tous les résultats sont compatibles avec cette moyenne arithmétique. Cependant, pour mieux analyser la cohérence des résultats (tableau VIII) il convient de retrancher de l'erreur totale estimée par chaque laboratoire les erreurs systématiques communes à tous les participants concernant la correction d'absorption des neutrons rapides par l'oxygène et le soufre contenus dans la solution, et l'erreur résultant de la connaissance des sections efficaces de capture σ_H , σ_{Mn} et σ_S . Un certain nombre de laboratoires ont utilisé, parallèlement à la méthode de mesure par activation de manganèse, différentes méthodes afin de cerner les éventuelles erreurs systématiques inhérentes à chaque méthode (tableau IX). Dans ce tableau le résultat du B.C.M.N. obtenu par activation de l'or a été comparé à la moyenne arithmétique des résultats des autres laboratoires obtenus par activation de manganèse. A titre indicatif, des mesures anciennes du N.R.C. (1958) et du N.B.S. (1955) sont mentionnées. On constate que tous les résultats sont compatibles. Il faudrait augmenter la précision des mesures pour déceler un écart systématique entre ces méthodes.

Le service de secrétariat et d'organisation des comparaisons a été assuré par Mlle Guégan. Les mesures au B.I.P.M. ont été effectuées avec la collaboration de MM. L. Lafaye et P. Bréonce. Je tiens à leur exprimer ma profonde gratitude.

Tableau I
 Dimensions et concentration des solutions SO_4Mn
 Géométries utilisées dans les mesures d'activité et leur étalonnage

laboratoires	dimensions des cuves	$n_{\text{H}}/n_{\text{Mn}}$	méthode de mesure	détecteur et géométrie pour la mesure d'activité	méthode de mesure de l'activité spécifique de la solution d'étalonnage*
ETL	cylindre Ø 70 cm h 80 cm	159	analyse chimique	GM dans 1 litre de solution	CP 4 π β
IKO	cylindre Ø 80 cm h 80 cm	39	analyse chimique	GM dans la cuve	LS 4 π β - γ
CENS	cylindre Ø 80 cm h 80 cm	35	analyse chimique masse volumique	Nal dans 30 litres de solution	CP 4 π β - γ
IMM	cylindre Ø 85 cm h 95 cm		masse volumique	Nal dans la cuve	CP 4 π β
SRE	cylindre Ø 85 cm h 85 cm	44	masse volumique	Nal dans la cuve	CP 4 π β
BIPM	sphère Ø 100 cm	39	évaporation	Nal dans la cuve	CP 4 π β - γ
AEET	cylindre Ø 100 cm h 96 cm	93	analyse chimique	Nal dans la cuve	CP 4 π β
NRC	sphère Ø 100 cm	42	analyse chimique	Nal dans la cuve	CP 4 π β - γ
NBS	cylindre Ø 100 cm h 100 cm cavité en téflon Ø 10 cm	69	masse volumique	Nal dans la cuve	CP 4 π β - γ
NPL	sphère Ø 98 cm cavité en polystyrène Ø 10 cm	31	évaporation	Nal dans une enceinte en circulation avec la cuve	CP 4 π β - γ

* GM compteur Geiger-Müller
 Nal scintillateur Nal
 CP 4 π β compteur proportionnel 4 π β
 CP 4 π β - γ compteur proportionnel 4 π β et coïncidences 4 π β - γ
 LS 4 π β - γ liquide scintillant 4 π β et coïncidences 4 π β - γ .

Tableau II

Méthodes de mesure

La mesure du taux d'émission de la source NRC a été effectuée soit par mesure directe, soit par mesure de comparaison avec une source étalon des laboratoires

laboratoires	source étalon	méthode de mesure de la source étalon	méthode de mesure de la source NRC
ETL	Ra-Be (α, n) $1,472 \times 10^7 \pm 3\% s^{-1}$ Michikawa et al. (1959)	1. bain de manganèse 2. activation de feuilles d'or et d'indium dans une cuve d'eau	Comparaison des 2 sources dans un empilement de graphite $190 \times 190 \times 170$ cm par activation de feuilles d'or en 3 différents points; l'activité est mesurée dans un compteur proportionnel $4\pi\beta$.
IKO	Ra-Be (α, n) $(1,505 \pm 0,010) 10^6 s^{-1}$ Louvrier (1966)	bain de manganèse, solution d'acétate de sodium	Mesure directe dans un bain de manganèse. Mesure de comparaison dans l'air par long-compteur.
CENS	Ra-Be (α, n) $(5,44 \pm 1,5\%) 10^6 s^{-1}$	bain de manganèse	Mesure directe dans un bain de manganèse. Mesure de comparaison dans l'air par long-compteur.
IMM	Ra-Be (α, n) $(1,05 \pm 1,5\%) 10^6 s^{-1}$ et $(6,33 \pm 1,3\%) 10^6 s^{-1}$ Jaritzina et al. (1964)	1. bain de manganèse 2. activation de feuilles d'or dans une cuve d'eau 3. comparaison à une source $T(d,n)^4He$ dans un empilement de graphite par compteur à bore	Mesure directe par les 3 méthodes. Comparaison dans l'air par long-compteur.
SRE	Pu-Be (α, n) $8,793 \times 10^6 s^{-1}$ Gurfinkel et Amiel (1964)	bain de manganèse	Mesure directe dans un bain de manganèse.
BCMN	Ra-Be (α, n) $(6,44 \pm 1,8\%) 10^6 s^{-1}$ Van Der Eijk (1965)	activation de feuilles d'or dans une cuve d'eau	Comparaison dans un petit bain de manganèse. Comparaison dans l'eau par activation de feuilles d'or.
BIPM	Ra-Be (α, n) Naggiar et al. (1964)	bain de manganèse	Mesure directe dans un bain de manganèse. Comparaison dans l'eau par BF_3 . Comparaison dans un petit bain de manganèse.
AEET	Ra-Be (α, n) $(3,926 \pm 0,008) 10^6 s^{-1}$ Shahani et al. (1966)		Mesure directe dans un bain de manganèse.
NRC	Ra-Be (α, n) $(3,245 \pm 0,03) 10^6 s^{-1}$ Am-Be (α, n) $(1,705 \pm 0,017) 10^6 s^{-1}$ Geiger et Baerg (1965)	bain de manganèse	Mesure directe dans un bain de manganèse.
NBS	Ra-Be (γ, n) (NBSI) $1,255 \times 10^6 \pm 1\% s^{-1}$ Noyce et al. (1963)	bain de manganèse	Mesure directe dans un bain de manganèse.
NPL	Ra-Be (γ, n) 3B $(1,626 \pm 0,25\%) 10^5 s^{-1}$ 2C $(1,675 \pm 0,30\%) 10^5 s^{-1}$ Axton et al. (1965)	bain de manganèse en circulation	Mesure directe dans un bain de manganèse (1959).

Tableau III

Correction pour la capture des neutrons dans les résonances du manganèse

laboratoires	$n_{\text{Mn}}/n_{\text{H}}$	correction adoptée (%)	correction (%) d'après méthode	
			De Juren	Axton
ETL	0,0063	1	1	1,1
IKO	0,026	2,3	1,7	1,5
CENS	0,029	1,9	1,8	1,5
IMM		0,9		
SRE	0,023	1,5	1,6	1,4
BCMN				
BIPM	0,026	1,7	1,7	1,5
AEET	0,011	1,2	1,2	1,2
NRC	0,024	1,5	1,6	1,4
NBS	0,014		1,3	1,3
NPL	0,032	1,6	1,9	1,6

Tableau IV

Pertes de neutrons hors de la solution SO_4Mn

labo- ratoires	rayon de la sphère équivalente cm	pertes estimées par le laboratoire %	pertes calculées $k_p = 2,0 \exp(-R/9,7)$ %
ETL	41	$3 \pm 0,5$	2,9
IKO	45	$2,54 \pm 0,16$	1,9
IMM	48	$1,4 \pm 0,4$	1,4
CENS	59	$0,6 \pm 0,2$	0,5
NRC	sphère 49	$1,0 \pm 0,2$	1,3
SRE	48	$1,5 \pm 0,3$	1,4
BIPM	sphère 49	$1,0 \pm 0,3$	1,3
NPL	48	$1,2 \pm 0,1$	1,4
AEET	55	$0,7 \pm 0,1$	0,7
NBS	52	$0,7 \pm 0,3$	0,9

Tableau V

Corrections d'absorption des neutrons rapides par l'oxygène et le soufre,
corrections d'auto-absorption

labo- ratoires	absorption par oxygène et soufre %	auto-absorption %	observations
ETL	$2,5 \pm 0,5$	$1,0 \pm 0,5$	
IKO	2,7	0,4	
IMM	$2,2 \pm 0,3$	$0,4 \pm 0,2$	
CENS	3,0	$0,4 \pm 0,2$	
NPL	$3,1 \pm 0,3$	$0,33 \pm 0,10$	cavité en polystyrène
NRC	$2,8 \pm 0,4$	$0,4 \pm 0,1$	
SRE	$3,2 \pm 0,5$		
BIPM	$2,9 \pm 0,5$	$0,5 \pm 0,2$	avec 2 ^e enveloppe contenant 14,5 g de plexiglas
AEET	$2,5 \pm 0,4$	$0,4 \pm 0,2$	
NBS	$1,4 \pm 0,5$	$0,3 \pm 0,06$	cavité en téflon
BCMN	$2,2 \pm 0,5$	$1,0 \pm 0,5$	source dans l'eau pure

Tableau VI

Estimation des erreurs dans la méthode du bain de manganèse

grandeurs mesurées	erreurs \pm en % sur le taux d'émission									
	ETL	IKO	CENS	IMM	SRE	BIPM	AEET	NRC	NBS	NPL
Activité de la solution irradiée par la source de neutrons	2,0		0,5	0,6	0,1	0,1	0,4	0,1		0,1
Efficacité du détecteur	1,5	0,1	0,5	1,0	1,5	0,3	0,5	0,2		0,2
n_H/n_{Mn}	1,0	0,3	0,5	0,3	0,1	0,1	0,5	0,2	1,0	0,1
Sections efficaces de capture $\sigma_H, \sigma_S, \sigma_{Mn}$	0,7	0,4	0,7	0,5	0,5	0,5	1,5	0,5	0,5	0,3
Absorption du manganèse à la résonance		0,13		0,2	0,2	0,2	0,2	0,1		0,2
Corrections										
auto-absorption		0,1	0,2	0,2	0,3	0,2	0,2	0,1	0,06	0,1
absorption par O et S	0,5	0,4	0,5	0,3	0,5	0,5	0,4	0,5	0,6	0,3
pertes hors du bain	0,5		0,2	0,4	0,3	0,3	0,1	0,2	0,3	0,1
Erreur totale sur $Q = \pm \sqrt{\sum \epsilon^2}$	3	0,7	1,3	1,5	1,7	0,9	1,8	0,8	1,3	0,6

Tableau VII

Résultats communiqués normalisés à janvier 1962 et à janvier 1966

et aux sections efficaces de référence

$$\sigma_{Mn} = 13,2 \times 10^{-24} \text{ cm}^2, \quad \sigma_H = 0,332 \times 10^{-24} \text{ cm}^2, \quad \sigma_S = 0,52 \times 10^{-24} \text{ cm}^2$$

laboratoire et date mesure	résultat communiqué 10^6 n s^{-1}	erreur absolue estimée par le laboratoire (+) (-)	sections efficaces utilisées	normalisation aux sections efficaces de référence et à janv. 62 janv. 66		observations corrections en %
ETL janvier 1962	3,322	0,10	références	3,289	3,328	d'après $Q_{lab} = 1,472 \times 10^7$ et mesure de comparaison on trouve 3,310 au lieu de 3,322, erreur de cal- cul de résonance $3,310 \times 0,9937 = 3,289$
IKO juillet 1962	3,173	0,046	13,24	3,173	3,211	
CENS octobre 1962	3,279	0,05	références	3,271	3,310	
IMM janvier 1963	3,26	0,05	$\sigma_{Mn} = 13,16$ $\sigma_S = 0,49$	3,250	3,289	utilisant 2 autres méthodes, moyenne pondérée $3,26 \pm 0,03$
SRE mai 1963	3,242	0,06	références	3,228	3,267	
BCMN novembre 1963	3,31	0,06	(activation Au)	3,290	3,329	ralentissement dans l'eau, activation de feuilles d'or
BIPM avril 1964	3,252	0,03	références	3,229	3,268	
AEET mars 1964	3,208	0,08	$\sigma_{Mn} = 13,25$ $\sigma_S = 0,49$	3,197	3,235	
NRC juillet 1964	3,245	+ 0,032 - 0,026	références	3,221	3,260	
NBS février 1965	3,215	0,04	références	3,185	3,223	
NPL juin 1959	3,162	0,03	$\sigma_H / \sigma_{Mn} =$ 0,02497	3,197	3,235	
			moyenne	3,230	3,269	

Tableau VIII

Analyse des mesures effectuées par la méthode du bain de manganèse affectées d'une erreur partielle pour tenir compte d'erreurs systématiques communes

laboratoire	erreur totale %	erreurs systématiques %		erreur résultante %	résultats (janvier 1966) 10^6 n s^{-1}
		σ	abs. par O et S		
ETL	3,0	0,7	0,5	2,9	$3,328 \pm 0,097$
IKO	1,45	0,4	0,4	1,33	$3,211 \pm 0,043$
CENS	1,52	0,7	0,5	1,25	$3,310 \pm 0,041$
IMM	1,53	0,5	0,3	1,41	$3,289 \pm 0,046$
SRE	1,85	0,5	0,5	1,16	$3,267 \pm 0,038$
BIPM	0,92	0,5	0,5	0,59	$3,268 \pm 0,019$
AEET	2,49	1,5	0,4	1,95	$3,235 \pm 0,063$
NRC	0,92	0,5	0,5	0,59	$3,260 \pm 0,019$
NBS	1,24	0,5	0,6	0,96	$3,223 \pm 0,031$
NPL	0,95	0,5	0,5	0,63	$3,235 \pm 0,020$
moyenne arithmétique (janvier 1966)					$3,269 \pm 0,03$

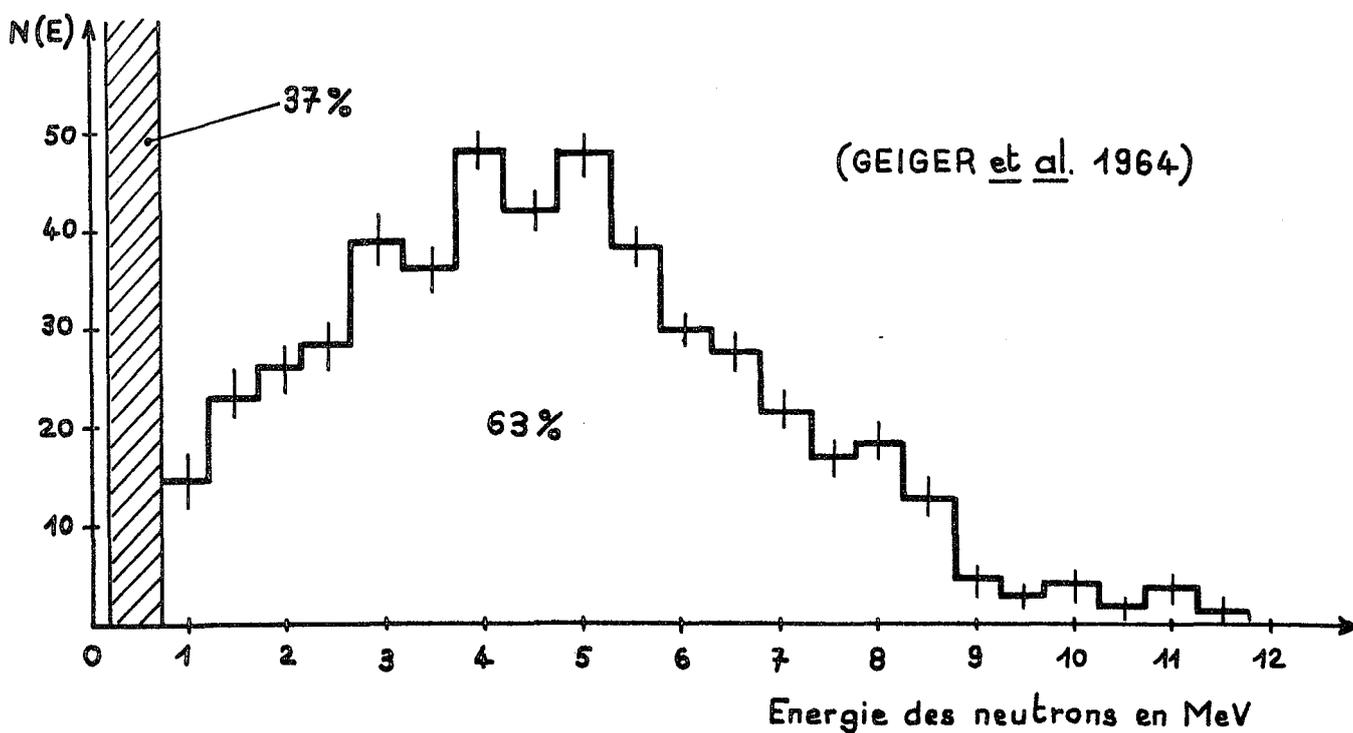
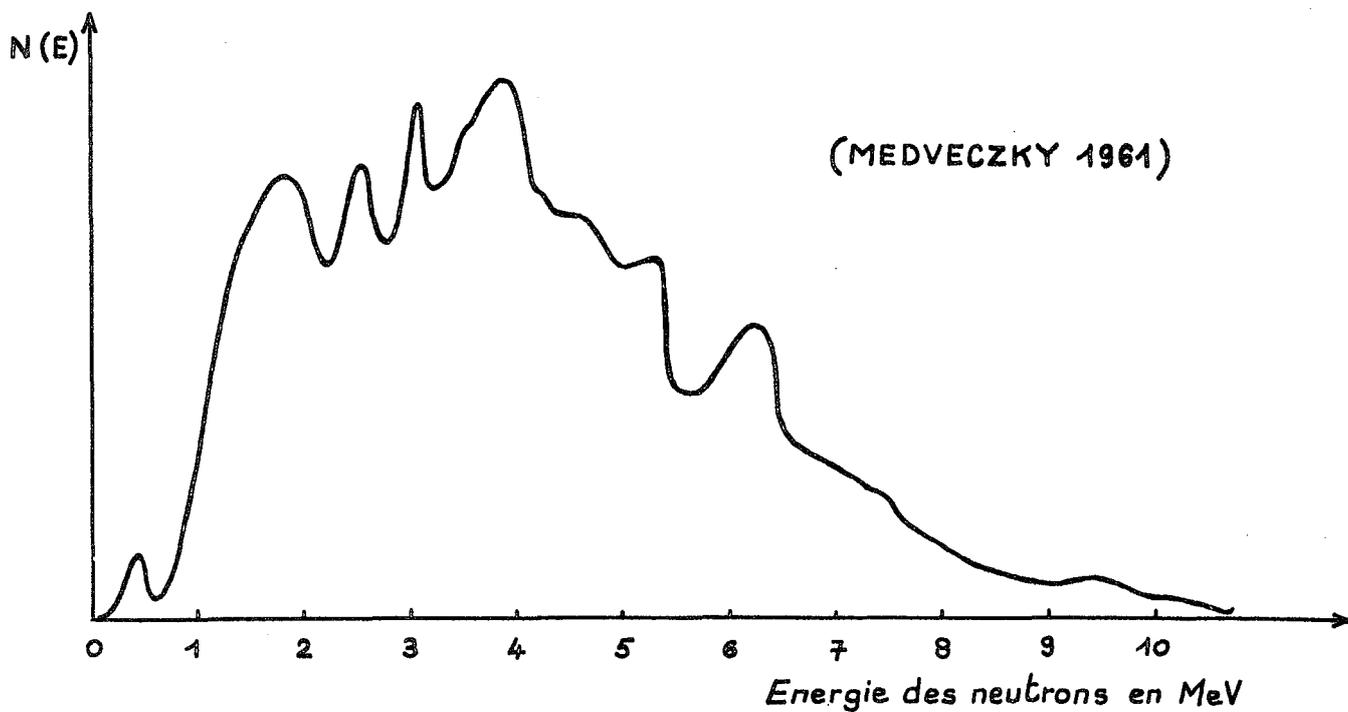
Tableau IX
 Comparaison des mesures du taux d'émission
 de sources de neutrons Ra-Be (α, n) par différentes méthodes

laboratoire	méthode	résultat
ETL	activation Mn dans SO_4Mn	$1,495 \pm 0,06$
	activation Au dans l'eau	$1,460 \pm 0,045$
IKO	activation Mn dans SO_4Mn	$1,500 \pm 0,012$
	activation Na dans acétate de Na	$1,524 \pm 0,020$
IMM	activation Mn dans SO_4Mn	$3,26 \pm 0,05$
	activation Au dans l'eau	$3,22 \pm 0,07$
	Ra-Be comparée à $\text{T}(d, n)^4\text{He}$ dans le graphite	$3,27 \pm 0,05$
BCMN	activation Au dans l'eau	$3,290 \pm 0,06$
	moyenne arithmétique des résultats par activation Mn dans SO_4Mn	$3,230 \pm 0,03$
NRC	activation Mn dans SO_4Mn	$3,220 \pm 0,05$
	Ra-Be (α, n) comparée à $\text{Po}-^{19}\text{F}(\alpha, n)^{22}\text{Na}$ dans SO_4Mn	$3,16 \pm 0,10$
NBS	activation Mn dans SO_4Mn	$1,256 \pm 0,025$
	activation d'indium dans l'eau, étalonnage par $^{10}\text{B}(n, \alpha)$	$1,274 \pm 0,04$

juillet
1958

1955

Spectre de neutrons d'une source Ra-Be (α, n)



un groupe de neutrons de faible énergie, non détectés dans l'émulsion, a été ajouté.

Figure 2. Schéma de désintégration du ^{56}Mn

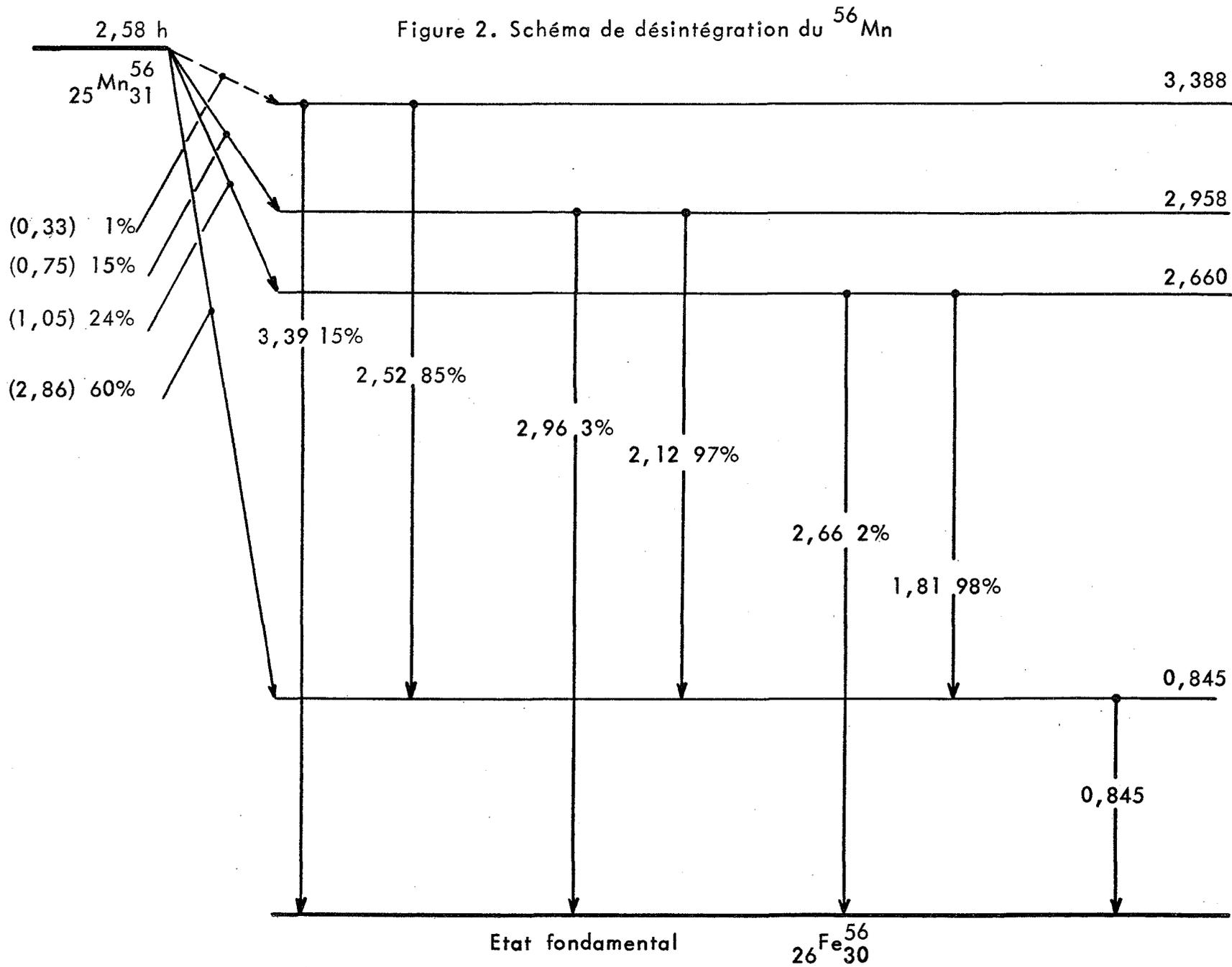


Figure 3

Correction appliquée à σ_{Mn} pour la capture des neutrons par les résonances du manganèse

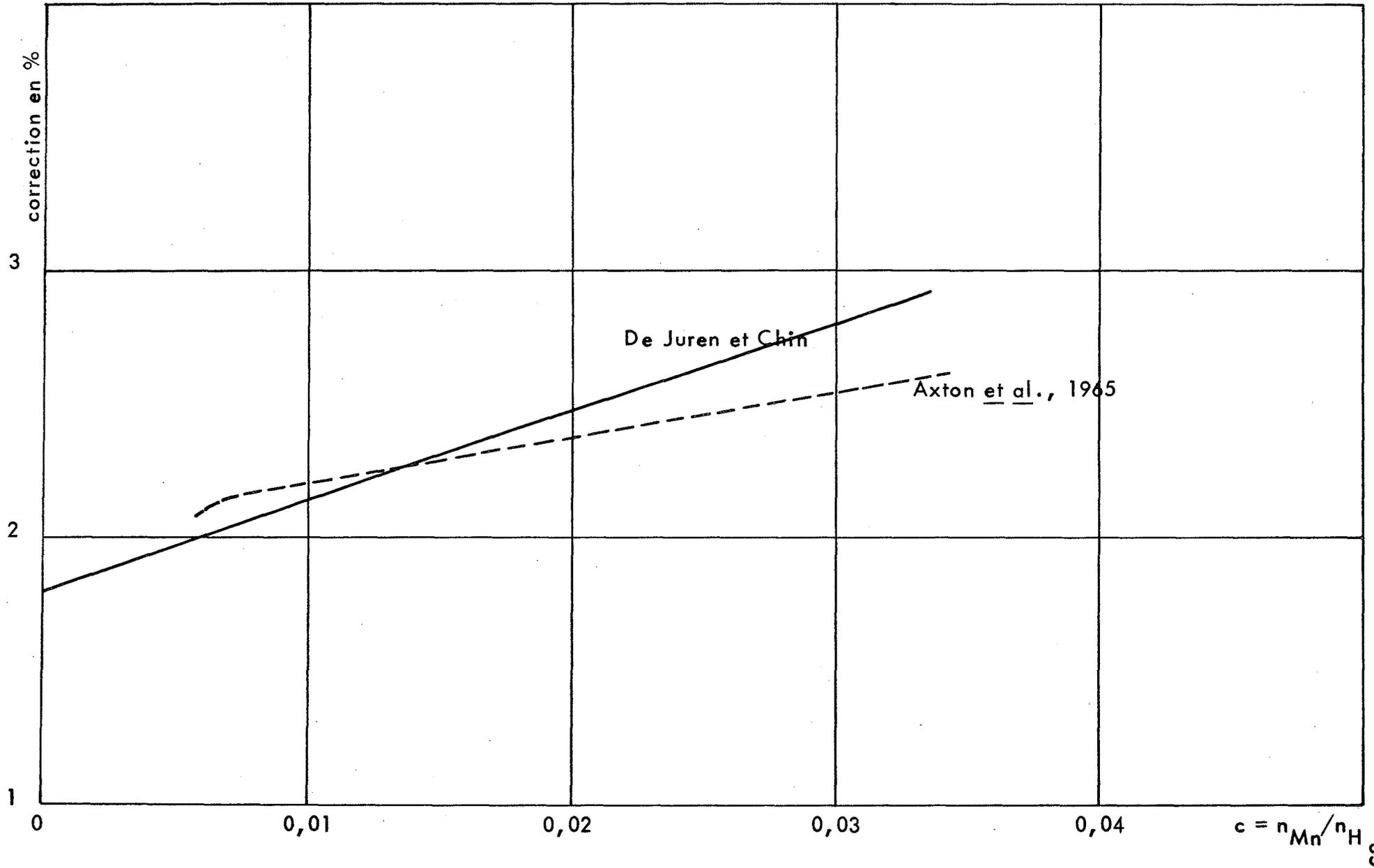


Figure 4

Estimation par les laboratoires des pertes de neutrons
hors de la solution de sulfate de manganèse

Le tracé de la droite représente $k = 2,0 \exp(-R/9,7)$
en abscisses: rayon de la sphère P_0 de même volume en cm
en ordonnées: pertes de neutrons hors de la solution en %

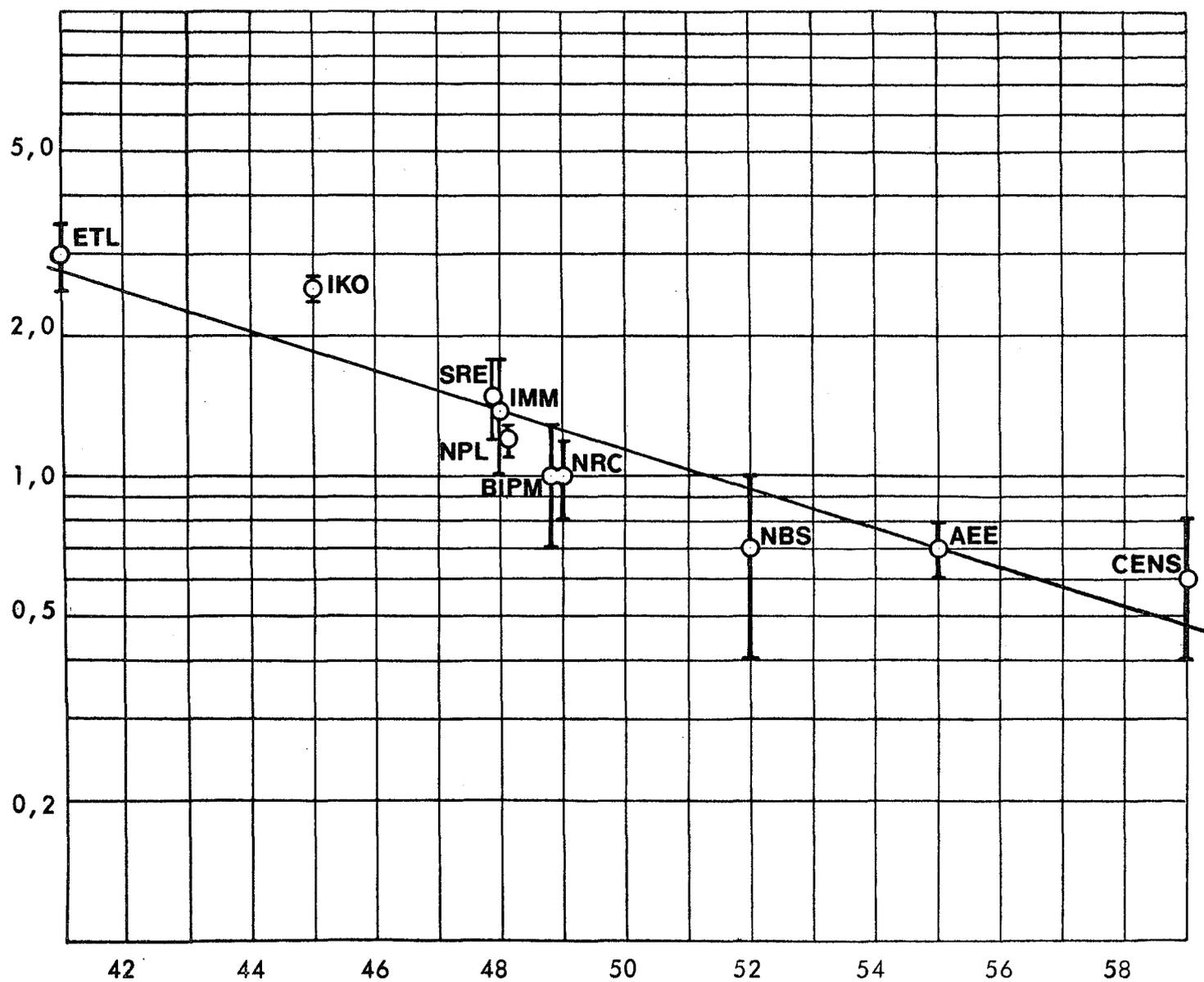
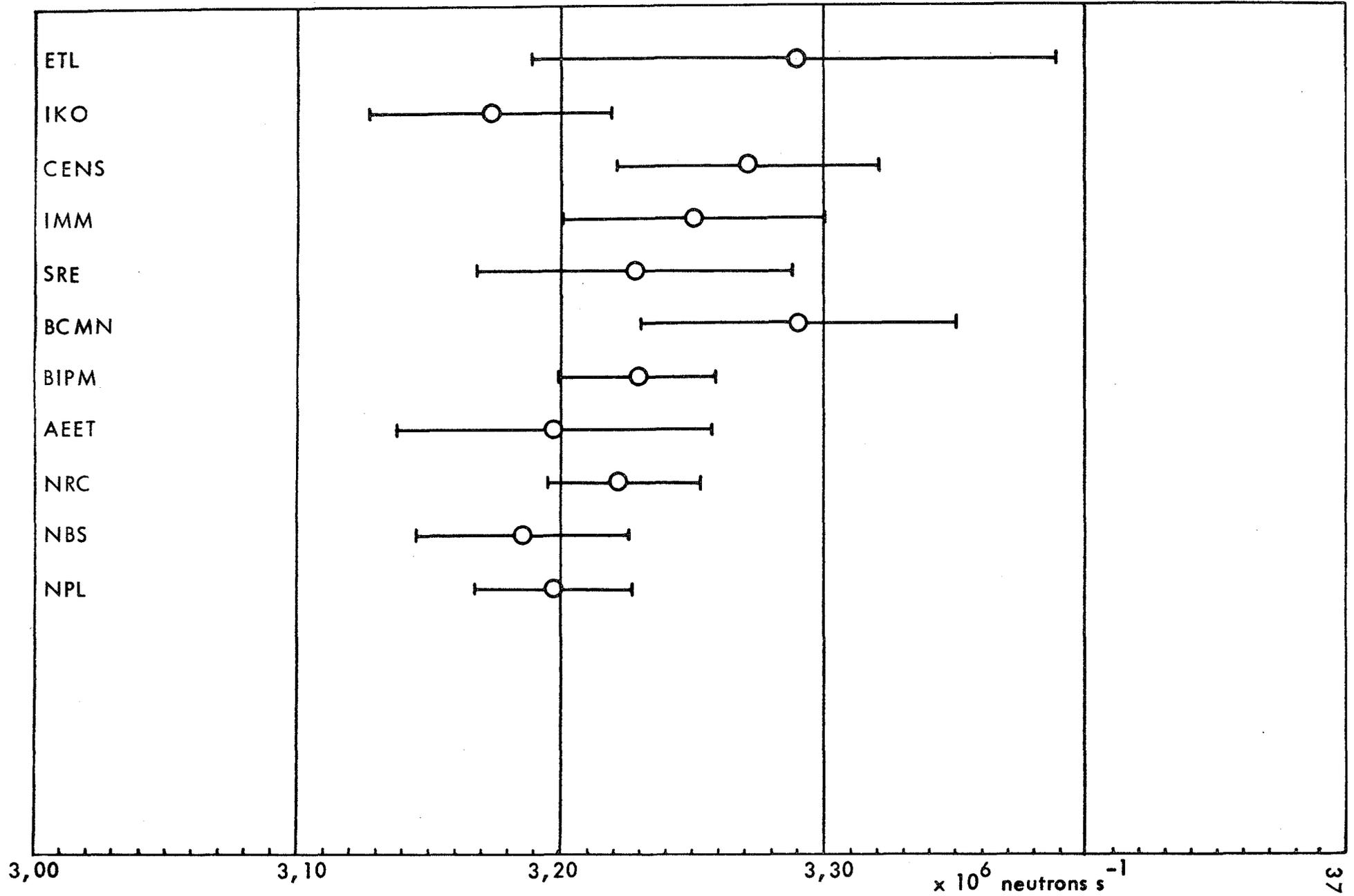


Figure 5

Résultats des mesures du taux d'émission de la source de neutrons Ra-Be (α, n) du NRC n° 200-1 normalisés à janvier 1962



Annexe 1

Rendement en neutrons $\text{Be}(\alpha, n)$ d'une cible épaisse
pour les émetteurs α d'une source de radium

émetteur α	période	énergie MeV	neutrons pour 10^6	
			Anderson et Feld (1947)	Runnalls et Boucher (1956)
$^{226}_{88}\text{Ra}$	1 620 a	4,777	55	46
$^{222}_{86}\text{Rn}$	3,8 j	5,486	90	76
$^{218}_{84}\text{Po}(\text{RaA})$	3 min	5,998	120	105
$^{214}_{84}\text{Po}(\text{RaC}')$	$1,64 \times 10^{-4}$ s	7,687	200	258
$^{210}_{84}\text{Po}$	138 j	5,305	80	67

Annexe 2

Taux de croissance de la source Ra-Be(α, n) du N.R.C.

Le rendement en neutrons de la source comprend un terme Q indépendant du temps qui est dû à la réaction (α, n) sur le ^9Be des quatre premiers émetteurs alpha, et un terme croissant au cours du temps dû au $^{210}_{84}\text{Po}$:

$$Q(t_0) = Q + q(1 - e^{-\lambda t_0}).$$

De même

$$Q(t_0 + t_1) = Q + q \left[1 - e^{-\lambda(t_0 + t_1)} \right]$$

d'où

$$Q(t_0 + t_1) = Q(t_0) \frac{1 + \frac{q}{Q} \left[1 - e^{-\lambda(t_0 + t_1)} \right]}{1 + \frac{q}{Q} (1 - e^{-\lambda t_0})}$$

Cette formule donne le taux d'émission de la source Ra-Be (α, n) au temps $(t_0 + t_1)$ exprimé en années, connaissant le taux d'émission au temps t_0 . Le rapport q/Q est calculé d'après le rendement en neutrons d'une source en fonction de l'énergie des divers émetteurs alpha.

D'après Anderson et Feld (annexe 1), on aurait

$$\frac{q}{Q} = \frac{80}{465} = 0,172,$$

et d'après Runnalls et Boucher

$$\frac{q}{Q} = \frac{67}{485} = 0,138.$$

D'après le NBS Handbook 85 (1964), c'est ce dernier résultat qui est admis. On peut s'accorder sur cette formule de croissance des sources:

$$Q(t_0 + t_1) = Q(t_0) \frac{1 + 0,14 \left[1 - e^{-0,0357(t_0 + t_1)} \right]}{1 + 0,14 (1 - e^{-0,0357 t_0})}$$

La source NRC a été préparée en 1948. On calcule ainsi, pour la mesure de croissance après $t_0 = 14$ a (janvier 1962):

$$k_1 = \frac{Q(15)}{Q(14)} = \frac{1 + 0,14 (1 - e^{-0,0357 \times 15})}{1 + 0,14 (1 - e^{-0,0357 \times 14})} = 1,003$$

pour $t_1 = 1$ année.

Le taux de croissance du taux d'émission de la source de neutrons a été calculé en prenant pour la période du ^{210}Pb (Ra D) 19,4 a ; si l'on adopte la période de $21,96 \pm 0,51$ a mesurée par H. Ramthun (1964), on trouve un taux de croissance de 1,0027 par an.

Annexe 3

Mesures de la période du ^{56}Mn (décembre 1963 et avril 1964)

Méthode des moindres carrés avec poids statistique
pour chaque observation

date	compteur $4\pi\beta$	λ 10^{-3} min^{-1}	erreur ‰
décembre 1963	B	4,4803	0,7
	A	4,4774	1,6
avril 1964	B	4,4856	1,5
	A	4,4821	2
moyenne $\lambda = 4,4814 \times 10^{-3} \text{ min}^{-1} \pm 1 \text{ ‰}$			
$T = \frac{0,693147}{\lambda} = 154,672 \text{ min} = 2,578 \text{ h} \pm 1 \text{ ‰}$			

Annexe 4

Mesure d'activité de la solution de sulfate de manganèse

Pas de résidu

Durée d'irradiation 945 min

Temps zéro de sortie de la source TZ

	début de comptage TZ + min	durée min	comptage	correction de temps mort	mouvement propre	comptage corrigé	activité au début du comptage min ⁻¹	activité à TZ
(1)	32	60	837 276	1,00207	6 979	832 030	15 813	18 250
(2)	99	90	874 469	1,00144	10 469	865 269	11 683	18 202
(3)	195	150	850 861	1,00084	17 448	834 128	7 636	18 288

Normalisation au seuil de discrimination de 734,6 keV

	seuil repéré par le générateur d'impulsions G			étalonnage pendant la mesure			correction de comptage pour différence de seuil de discrimination	activité à TZ min ⁻¹	activité corrigée min ⁻¹				
	avant comptage canal n°	comptage G	seuil	après comptage canal n°	comptage G	seuil moyen				0,840 MeV canal n°	1,810 MeV canal n°	seuil keV	
(1)	124	1029		124	1445								
	125	1972	124,7	125	1555	124,5	124,6	145,6	338	734,1	0,99928	18 250	18 237
(2)				124	2784								
			124,5	125	218	124,1	124,3	145,2	337,5	734,6	-	18 202	18 202
(3)				123	325								
			124,1	124	2674	123,9	124,0	145,5	339	732,2	0,99626	18 288	18 220
												<u>moyenne</u>	18 220

Normalisation pour une irradiation à saturation et un seuil de 736,7 keV 18 452

Annexe 5

Conditions de mesure des 6 sources comptées en coïncidence $4\pi\beta-\gamma$
pour l'étalonnage du scintillateur dans le bain de manganèse

Dispositif de comptage $4\pi\beta-\gamma$ décrit dans le rapport BIPM (Rytz, 1964)

voie β	temps mort τ_β	4,4 μ s	
voie γ	"	6,8 "	fenêtre 0,700 à 1,010 MeV
voie coïncidence	"	2,2 "	temps de résolution 0,9 μ s

Formule utilisée (Campion, 1959)

$$N_o = \left(\frac{N_\beta N_\gamma}{N_c} \right) \times \frac{1 - \tau_R (N'_\beta \text{ moy.} + N'_\gamma \text{ moy.})}{1 - 2 \tau_R \frac{N'_\beta \text{ moy.} \cdot N'_\gamma \text{ moy.}}{N_c}} \times \left(\frac{1}{1 - N_c \tau_\beta} \right)$$

Le deuxième terme entre parenthèses corrige pour les coïncidences fortuites: $N'_\beta \text{ moy.}$ est le taux de comptage moyen, mouvement propre non déduit; de même $N'_\gamma \text{ moy.}$; N_c est le taux de comptage de la voie de coïncidence, mouvement propre déduit, au début de chaque comptage. Le troisième terme corrige pour le temps mort: $\tau_\beta < \tau_\gamma$, c'est τ_β qui intervient.

Correction $k_{Mn} = 1,3$ ‰ pour corriger de la dépendance de l'efficacité du scintillateur au rayonnement gamma (voir Axton, 1963).

source <u>n°</u>	masse <u>mg</u>	N_o <u>s⁻¹ mg⁻¹</u>
1	21,230	448,93
2	18,595	450,01
3	26,410	452,07
4	36,210	448,46
5	38,815	449,02
6	54,915	449,56

moyenne 449,68 $\mathcal{E} = (\text{mesure} - \text{moyenne})$

Ecart-type sur chaque mesure $\sigma = \sqrt{\frac{\sum \mathcal{E}^2}{n-1}} = 1,3$ soit 3‰

Ecart-type de la moyenne $\sigma_{\bar{x}} = \frac{\sigma \text{ en } \text{‰}}{\sqrt{n}} = 1,2 \text{ ‰}$.

Liste des références

- Amaldi, E., et Fermi, E. (1936). Phys. Rev. 50, 899.
- Anderson, H.L., et Feld, B.T. (1947). Rev. Sc. Instr. 18, 186.
- Axton, E.J., and Cross, P. (1961). J. Nucl. En. A/B 15, 22.
- Axton, E.J. (1963). J. Nucl. En. A/B 17, 125.
- Axton, E.J., Cross, P., and Robertson, J.C. (1965).
J. Nucl. En. A/B 19, 409.
- Baker, A.R. (1958). Proc. Roy. Soc. (London) A 248, 539.
- Bartholomew, R.M., Brown, F., Howell, W.D., Shorey, W.R.J.,
and Yaffe, L. (1953). Can. J. Phys. 31, 714.
- Bishop, G.R., Wilson, P., and Halban, H. (1950). Phys. Rev. 77, 416.
- Bormann, M., Cierjacks, S., Fretwurst, E., Giesecke, K.J.,
Neuert, H., Pollehn, H. (1963). Z. Physik 174, 1.
- Campion, P.J. (1959). JARI 4, 232.
- Davis, E.A., Bonner, T.W., Worley, P.W., and Bass, R. (1963).
Nucl. Phys. 48, 169.
- Davy, D.R. (1966). J. Nucl. En. A/B 20, 277.
- De Juren, J.A., and Chin, J. (1955). J. Res. NBS 40, 311.
- De Troyer, A., et Tavernier, G.C. (1954). Bull. Ac. Roy. Belgique
40, 150.
- Geiger, K.W., and Whyte, G.V. (1959). Can. J. Phys. 37, 256.

- Geiger, K.W. (1960). The status of the Canadian Neutron Standard.
Can. J. Phys. 38, 569.
- Geiger, K.W. (1964). Communication au Groupe de travail des
mesures neutroniques du B.I.P.M.
- Geiger, K.W., Hum, R., and Jarvis, C.J.D. (1964).
Can. J. Phys. 42, 1097.
- Geiger, K.W., Baerg, A.P. (1965). Can. J. Phys. 43, 373.
- Gurfinkel, Y., and Amiel, S. (1964). IA-800.
- Hamermesh, B., Ringo, G.R., and Wexler, S. (1953).
Phys. Rev. 90, 603.
- Hanna, G.C., et Runnalls, O.J.C. (1956). Can. J. Phys. 34, 959.
- Hughes, D.J., et Schwartz, R.B. (1960). BNL-325, 2^e édit.
- Jaritzina, I.A., Constantinov, A.A., Fominikh, V.I. (1964).
Energie Atomique 16, 253.
- Jaritzina, I.A., Andreev, O.L., Kotchine, A.E., Stukov, S.M.
(1964). Energie Atomique 16, 255.
- Krumbein, A.D. (1957). NDA-92-2.
- Küchle (1960). Nucl. Sc. and Eng. 8, 88.
- Larsson, K.E. (1954). Arkiv. Fysik 7, 323.
- Lockett, E.E., Thomas, R.H. (1953). Nucleonics 11, 3, 14.
- Louwrier, P.W.F., Aten Jr., A.H.W. (1965). J. Nucl. En. A/B
19, 267.

- Louwrier, P.W.F. (1966). Thèse de doctorat de l'Université d'Amsterdam.
- Mc Taggart, M.H. (1961). *J. Nucl. En. A/B* 14, 212.
- Mead, R.E., England, C.J., Collie, C.H., and Weeks, G.C. (1956).
Proc. Phys. Soc. 69A, 469.
- Meadows, J.W., et Whalen, J.F. (1961). *Nucl. Sc. and Eng.* 9, 132.
- Medveczky, L. (1961). *Atomki Kozecmenyck III*, 2-3 (Hongrie).
- Michikawa, T., Teranishi, E., Tomimasu, T., and Inoue, Y. (1959).
Bull. E.T.L. 23, 223.
- Murphey, W.M. (1965). *Nucl. Instr. Meth.* 37, 13.
- Naggiar, V., Lafaye, L., et Bréonce, P. (1964). Rapport préliminaire
sur la comparaison internationale du taux d'émission de la source
de neutrons Ra-Be (α, n) du N.R.C. n° 200-1.
- NBS, Handbook 85 (1964).
- Noyce, R.H., Mosburg Jr., E.R., Garfinkel, S.B., and Caswell, R.S.
(1963). *J. Nucl. En. A/B* 17, 313.
- Ramthun, H. (1964). *Z. Naturforsch.* 19 a, 1064.
- Rumsey, V.H., and Ward, A.G. (1948). Non publié.
- Runnalls, O.J.C., and Boucher, R.R. (1956). *Can. J. Phys.* 34, 949.
- Rush, J.H. (1947). MDDC-1050, *Phys. Rev.* 73, 157.
- Rytz, A. (1964). Description de l'ensemble de comptage par
coincidences $4\pi(\text{CP})-\gamma$ utilisé au Bureau International
des Poids et Mesures. Rapport BIPM.

- Rytz, A. (1965). Report on the international comparison of the $4\pi\beta(\text{PC})-\gamma$ method by means of ^{60}Co . Rapport BIPM.
- Ryves, T.B., and Harden, D. (1965). J. Nucl. En. A/B 19, 607.
- Shahani, M.G., Jain, N.C., Sharma, D., and Gupta, V.C. (1966).
Proceedings of the Symposium on Radioactivity and
Metrology of Radionuclides.
- Van Der Eijk (1965). Communication privée.
- Von Dardel, and Sjostrand (1954). Phys. Rev. 96, 1245.
- Walker, R.L. (1944). Argonne National Laboratory, MDDC-414.
- Walker, W.H., Westcott, C.H., and Alexander, T.K. (1960).
Can. J. Phys. 38, 57.
- Westcott, C.H., Walker, W.H., and Alexander, T.K. (1958).
A.E.C.L. 612.
- Wunderer, P. (1958). Z. für Phys. 10, 537.