# n2 DUREAULLT 0169 08 3251

N° d'ordre :

# THÈSES

présentées à la

# Faculté des Sciences d'Orsay Université de Paris

pour obtenir

# Le Grade de Docteur ès Sciences Physiques

par

# Taoufik BEN MENA Laboratoire AIME COTTON C.N.R.S.

1 ère THESE: Mesures précises des intensités en spectroscopie interférentielle à haute résolution. Réalisation d'un quantomètre Fabry-Perot destiné à l'analyse isotopique de l'uranium

2 ème THESE: Propositions données par la Faculté.

Soutenues le 49 décembre 1967 devant la Commission d'Examen

M. P. JACQUINOT......Président

MM. R. LENNUIER.....

P. GIACOMO.....

J. HURE......Invité

**ORSAY 1967** 

DUREAULE ! 0169 08 3251

#### PREMIERE PARTIE

#### MESURES ABSOLUES D'ABONDANCE PAR SPECTROSCOPIE OPTIQUE

#### INTRODUCTION

Les principales méthodes utilisées pour la détermination des abondances isotopiques, font appel aux propriétés des noyaux qui permettent de les différencier les uns des autres (masse, radioactivité, spectres optiques). Parmi toutes ces méthodes, c'est la spectroscopie de masse qui est la méthode la plus générale, et la plus employée pour effectuer des mesures d'abondance. Cependant, la mise en oeuvre de cette méthode peut être, dans certains cas, laborieuse et le temps d'analyse long.

Le but de notre travail est d'explorer la possibilité d'effectuer des mesures d'abondance dans le cas des isotopes de l'uranium par voie optique, de comparer les performances de la spectroscopie optique, par rapport à celles fournies par la spectroscopie de masse, et de déterminer la précision ultime que nous pouvons espérer atteindre dans la mesure des intensités des raies.

#### CHAPITRE I

#### EXPOSE DE LA METHODE

# 1 -1. Principe de la méthode :

Soit un élément de nombre atomique Z comportant n isotopes de masse  $M_1$ ,  $M_2$  ...  $M_n$ . Considérons maintenant un échantillon comportant ces n isotopes avec les concentrations  $C_1$ ,  $C_2$ ...  $C_n$ .

L'intensité d'une transition entre deux états p et q d'un atome est indépendante de la masse de cet atome. Elle est, en effet, proportionnelle à l'expression suivante :

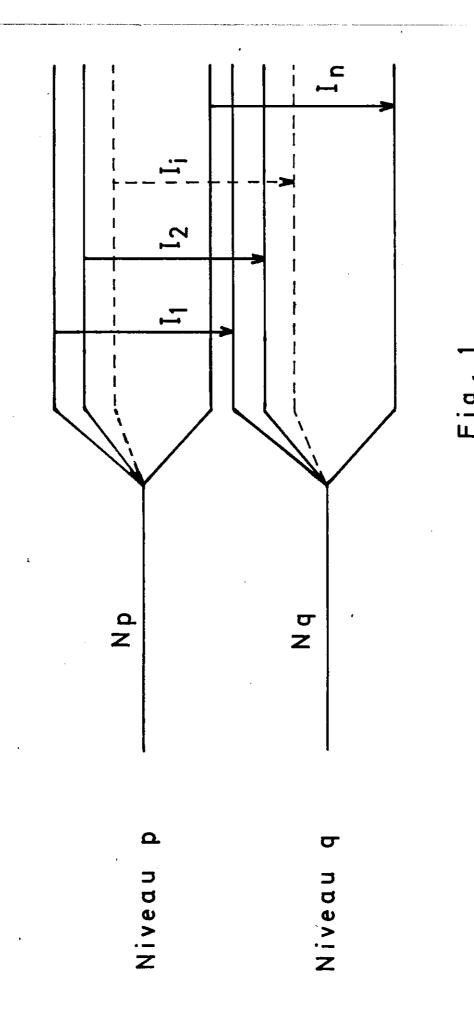
$$I \propto N_{\rm P} \left[ \int Y_{\rm P}^* ez Y_{\rm q} dz \right]^2 \qquad (1-1)$$

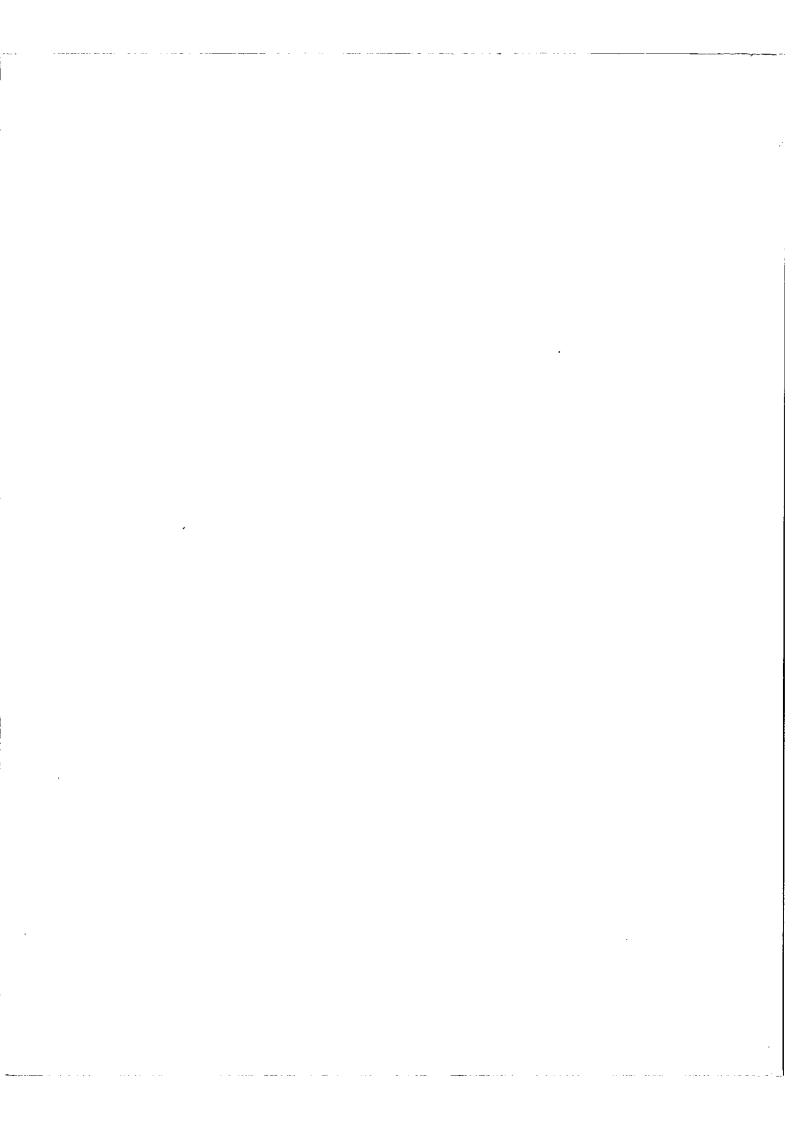
où pez q est l'élément de matrice du moment dipolaire électrique entre ces deux états, où N représente la population du niveau supérieur. Pour un élément donné, on admet que parmi tous les atomes excités par une décharge, les populations des états supérieurs sont proportionnelles aux concentrations  $C_i$  de chacun des isotopes présents dans l'échantillon étudié. On suppose donc, que l'excitation des atomes par la décharge est indépendante de leur masse. Cette hypothèse ne peut être confirmée qu'à postériori par les résultats de mesure et il faut mentionner que, dans certains cas très particuliers, elle peut être en défaut (4).

A partir de cette hypothèse, nous pouvons donc écrire :

$$\frac{I_1}{C_1} = \frac{I_2}{C_2} = \dots = \frac{T_n}{C_n} = \frac{\sum_{i=1}^n I_i}{\sum_{i=1}^n C_n}$$
 (1 - 2)

La détermination des concentrations  $C_1$ ,  $C_2$ , ...  $C_n$  se réduit donc à la mesure des intensités  $I_1$ ,  $I_2$ ...  $I_n$  relatives à chacune des transitions (entre les mêmes états p et q) dus aux différents isotopes (fig. 1). Pour que la détermination soit





possible, il est évident que l'intensité de chacune des composantes isotopiques doit être mesurable séparément, c'est-à-dire, que les différentes composantes isotopiques doivent être résolues.

Avant d'examiner les conditions qui permettent de séparer les composantes isotopiques, nous rappelons brièvement dans le paragraphe ci-dessous, l'origine et l'ordre de grandeur des déplacements isotopiques observés.

# 1 - 2. Déplacements isotopiques - Pouvoir de résolution nécessaire -

Le déplacement isotopique  $G_i - G_j$  observé entre deux isotopes de masse  $M_i$  et  $M_j$  pour les éléments légers est surtout dû à l'effet de masse

$$\sigma_{i} - \sigma_{j} = \sigma \frac{M_{i} - M_{j}}{M_{i}M_{j}} \frac{m}{m_{p}}$$
(1 - 3)

tandis que dans les éléments lourds, c'est l'effet de volume qui prédomine (5). Pour les éléments se trouvant au milieu du tableau périodique, les déplacements observés sont, en général, plus faibles que pour les éléments légers ou lourds : effectivement l'effet de masse devient négligeable et l'effet de volume n'est pas encore appréciable. Le tableau I donne une idée des plus grands déplacements isotopiques observés pour certaines raies d'éléments légers et lourds.

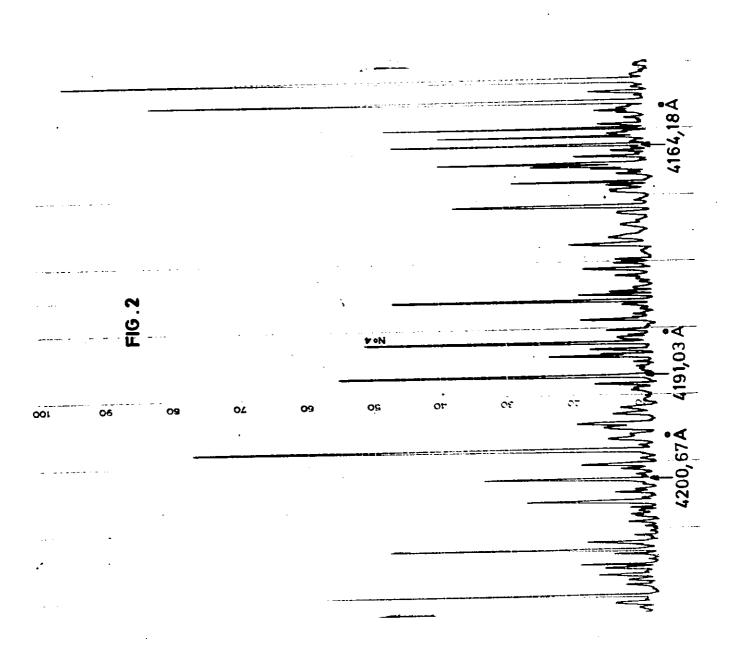
Le pouvoir de résolution nécessaire pour séparer les composantes isotopiques, est indiqué dans la sixième colonne.

TABLEAU I

_				<u> </u>	<del> </del>		
Z	Isot	topes	5м	Longueurs d'onde en A	Nombre d'ondes en cm	Déplacement isotop, en mK	$R = \frac{\sigma}{s\sigma}$
1	1 <sub>H</sub>	- 2 <sub>D</sub>	1	4 101	24.377,4	6.590	3.600
2	3 <sub>He</sub>	4 <sub>He</sub>	1	4 009,3	24.934,9	- 1.524	16.600
3	$^6\mathrm{_{Li}}$	$^7{ m _{Li}}$	1	6 707,7	14.904,1	- 350	42.600
6.	<sup>12</sup> C	- <sup>13</sup> C	1	2 478,5	40.334,8	- 156	260.000
7	$^{14} m_N$	⊸ 15 <sub>N</sub>	1	7 468,7	13.385,5	57	240.000
в0	198 <sub>Hg</sub>	-202 <sub>Hg</sub>	4	5 460	18.309,9	59	320.000
81	203 <sub>T1</sub>	-205 <sub>T1</sub>	2	5 350,5	18.684,6	60	320.000
32	206 <sub>Pb</sub>	-208 <sub>Pb</sub>	2	4 058	24.635,7	80,6	310,000
92	235 <sub>U</sub>	-238 <sub>U</sub>	3	5 027	19,885,5	- 411	50.000
94	239 Pu	-240 <sub>Pu</sub>	1	6 887	14.516,1	- 184	81.000
	·						

# 1 -3. Difficultés rencontrées dans la mesure des intensités des composantes isotopiques dans le cas de l'uranium

Bien que le pouvoir de résolution nécessaire pour séparer juste les composantes relatives aux isotopes 235 et 238 soit peu élevé (50.000 cf. Tableau I), le pouvoir de résolution effectif qu'il faut employer est en réalité beaucoup plus élevé, de l'ordre de 500.000 : en effet, la mesure de l'intensité d'une composante ne doit pas être influencée par la contribution du pied de la composante voisine. Il faut donc que la largeur des raies émises par la source et élargie ensuite par la fonction fonction



d'appareil soit suffisamment petite, comparée aux déplacements isotopiques entre les composantes. Toutes ces exigences seront envisagées en détail au chapitre III. Signalons également, dans le cas de l'uranium, l'extrême richesse du spectre d'après D.W. Steinhauss (%); il comporte une centaine de raies par Angstrom (fig. 2). Il importe donc de s'assurer qu'aucune raie étrangère à la structure isotopique analysée ne vienne interférer avec la composante dont on mesure l'intensité. Enfin, une autre difficulté réside dans le rapport des composantes isotopiques qui est très élevé dans le cas des échantillons d'uranium naturel. D'après Baindbridge et Nier (7), la composition isotopique de l'uranium naturel est égale à :

$$C_{238} = 99,28\%$$
  $C_{235} = 0,715\%$  et  $C_{234} = 0,0058\%$ 

 $\rho_o = \frac{C_{238}}{C_{235}} = 138,85$  (1 - 4)

( $\beta$  désignera dans tout ce qui suit, le rapport d'abondance  $\frac{238}{235}$  de l'uranium naturel)

En résumé, les difficultés sont les suivantes : il faut travailler à haute résolution, en présence d'un spectre riche, tout en ayant un rapport signal/bruit suffisamment bon pour mesurer par une précision qui soit comparable à celle fournie par un spectromètre de masse de performance moyenne. Cette précision peut être estimée de l'ordre de 1 % sur le rapport d'abondance pour . Si jusqu'à présent la mesure des rapports d'intensité entre composantes d'intensité comparable se fait aisément (8) (9), il n'en est pas de même lorsque le rapport des intensités est cent fois plus élevé comme dans le cas de l'uranium. C'est là que réside l'extrême difficulté de notre problème.

Avant de dépister toutes les causes d'erreur, nous décrirons dans le chapitre suivant l'appareillage utilisé et, en particulier, le spectromètre F.P photoélectrique sous sa forme la plus récente (HYPEAC) (2), grâce à cet appareil, nous disposons de la résolution nécessaire associée au flux lumineux le plus élevé possible.

#### CHAPITRE II

#### METHODES EXPERIMENTALES UTILISEES

#### 2 - 1 . Source

La source principalement utilisée pour les problèmes exigeant un grand rapport signal/bruit et un haut pouvoir de résolution, est le tube à cathode creuse du type Schüler (10) schématisé par la figure 3. Cette source peut être refroidie soit avec une circulation d'eau ou dans un bain d'azote liquide. Le changement des cathodes est rapide afin de faciliter le travail en routine. L'étanchéité entre la cathode et le corps de la lampe est assurée par un joint en indium (fig. 3). Le gaz porteur le plus employé pour la décharge est en général le néon, néanmoins, nous avons aussi utilisé dans certains cas des mélanges de gaz, tels que (He + Ne) et (Ne + Ar): une pression de l'ordre de 2 mm de néon est nécessaire pour le fonctionnement du tube quand le trou cathodique a 6 mm de diamètre et 15 mm de profondeur. Pour maintenir cette pression constante, nous adjoignons au tube une réserve de gaz d'un volume cent fois plus grand que celui de la source. Enfin, un piège placé à proximité de la source et contenant du charbon actif baigne dans l'azote liquide et assure la purification du gaz intervenant dans la décharge.

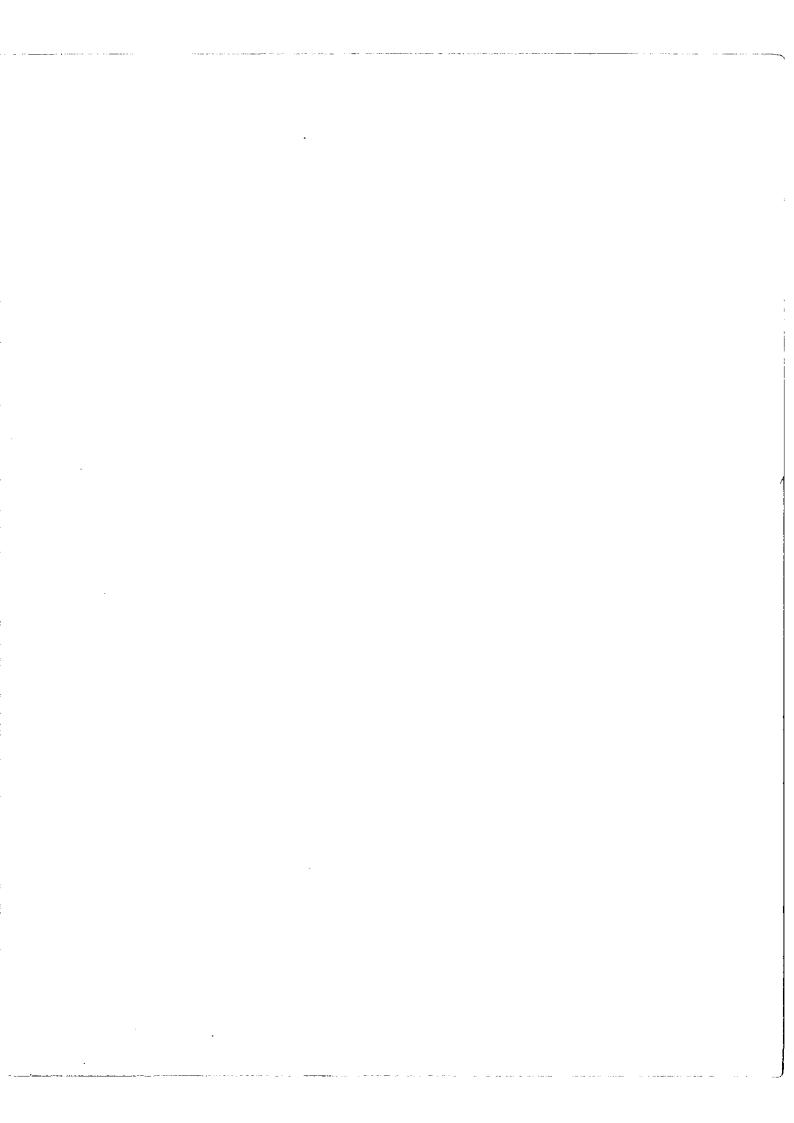
L'ensemble constitué par le tube à cathode creuse, le piège et la réserve, communique avec un banc de pompage de type classique.

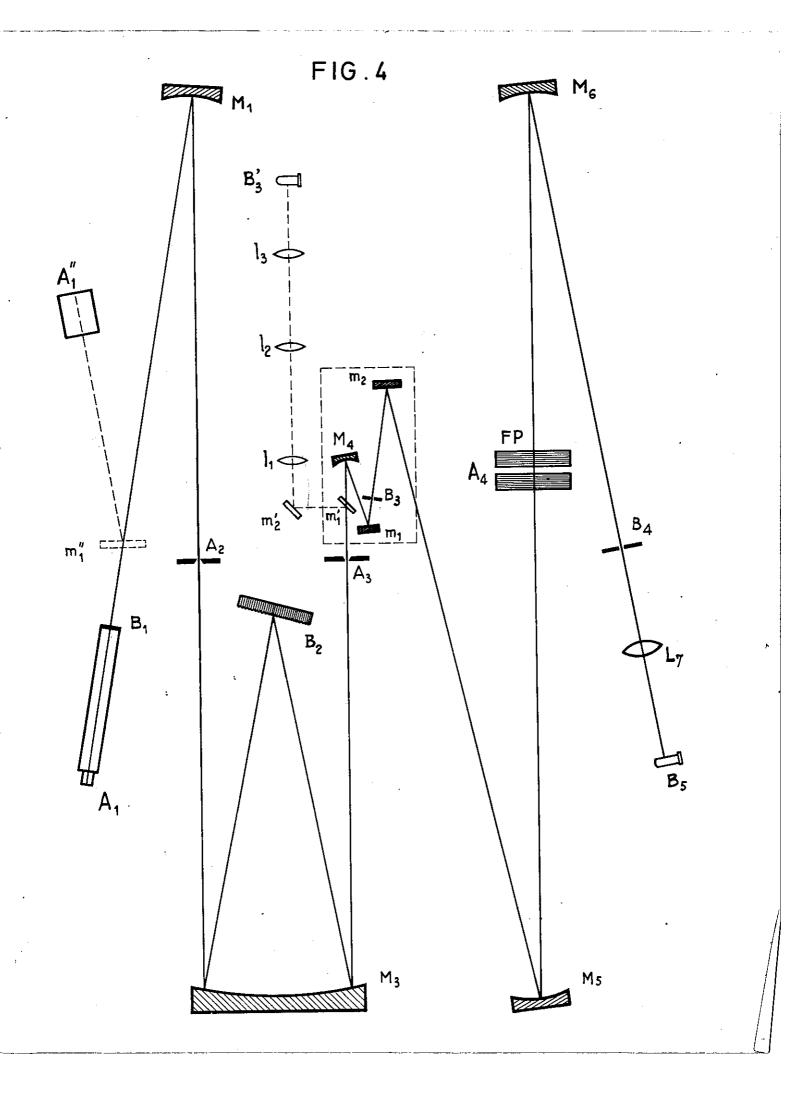
# 2 - 2. Principe du spectromètre Fabry-Perot (2)

Deux lames en silice réglées de sorte que leurs faces intérieures soient rigoureusement parallèles suivies d'un objectif L et d'un diaphragme isolateur circulaire placé au foyer de cet objectif, centré sur la normale aux lames F.P constituent

Cathode Tube en verre Anode Fenètre d'indium Joint Raccord Bag Charbon actif Robinet de pompage Vers banc ā víde

FIG. 3 SHEMA D'UNE CATHODE CREUSE





un ensemble capable de transmettre plusieurs bandes très fines, une seule d'entre elles est utile. Pour supprimer les autres bandes considérées comme parasites, on fait précéder le F.P d'un monochromateur pouvant fournir une résolution effective égale à  $\frac{R}{N}$  (R étant la résolution du F.P,  $R = \frac{\lambda}{5\lambda} = \frac{\sigma}{5\lambda}$  et N sa finesse).

## 2 - 3. Description du spectromètre

La figure 4 représente un schéma optique du spectromètre et les différents éléments qui le constituent. La verticalité du faisceau permet de réduire l'encombrement de l'instrument et rend les ensembles optiques et interférentiels horizontaux, ce qui augmente la stabilité de l'appareil, propriété essentielle pour notre problème.

### 2 - 3 - 1. Le monochromateur

C'est un spectromètre à réseau du type Ebert-Fastie. Le réseau comporte 1200 traits au mm, a un angle de blaze de 36° et est utilisé dans le deuxième ordre (la surface rayée étant de 65 x 76 mm). Le système de fentes à ouverture symétrique a été amélioré en associant à l'ouverture égale et simultanée des fentes un réglage permettant d'obtenir entre les deux fentes, une différence de largeur choisie à priori et qui se conserve, quelle que soit la largeur des fentes (fig. 5).

# 2-3-2. L'interféromètre F.P (2)

Est constitué par deux lames réfléchissantes fixées dans une monture. Deux types de monture ont été utilisés : le premier permet d'obtenir une épaisseur du F.P quelconque comprise entre 0 et 50 mm (fig. 6), le deuxième type plus simple (fig. 7) où les deux lames se trouvent séparées, soit par trois cales en silice fondue d'égal e épaisseur à  $\lambda$ 5 près, planes et parallèles, adhérées par contact optique sur les lames, soit par une seule cale cylindrique en invar, comportant trois touches de même épaisseur à près. L'interféromètre ainsi obtenu est d'une très grande stabilité dans le temps.

#### 2 - 3 - 3. Circuit de référence

Le schéma de ce circuit est représenté sur la figure 4. Une lame à faces parallèles, aluminée sur ses bords (fig. 8), placée à la sortie du monochromateur, prélève une fraction du flux lumineux sortant pour le renvoyer grâce au système optique formé par ( m' 2 , 1 1 , 1 2 , 1 3 ) sur un deuxième photomultiplicateur B' 3 appelé cellule de référence.

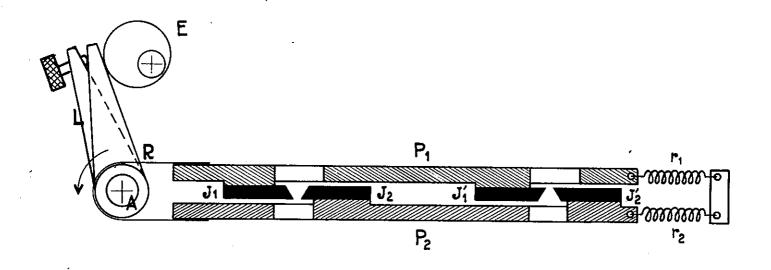
Grâce à ce dispositif, il est possible :

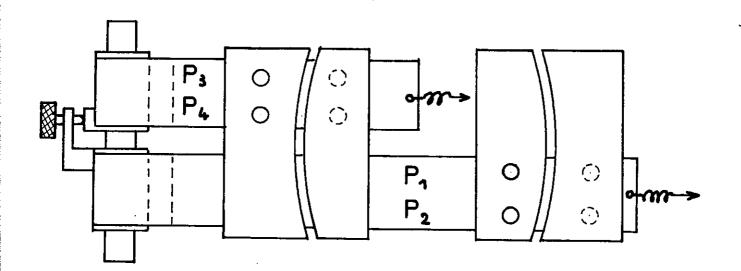
- a)- de reconnaître la région spectrale à la sortie du monochromateur et d'obtenir l'enregistrement continu d'un spectre sur un très grand intervalle et à basse résolution de l'ordre de 25000.
- b)- de contrôler la stabilité de la décharge lumineuse, c'est-à-dire, la constance du flux qui éclaire l'interféromètre F.P

# 2 - 3 - 4. Le récepteur

Les récepteurs utilisés sont des photomultiplicateur R.C.A. dont le type varie avec la région spectrale étudiée. Ils sont refroidis à la température de l'azote liquide pour rendre négligeable leur courant d'obscurité (inférieur à 10<sup>-15</sup> A au niveau de la cathode). Signalons que les cellules E.M.I. refroidies à une température de -60° C possèdent un courant d'obscurité non négligeable, ce qui présente des inconvénients quand on désire intégrer le signal d'analyse.

FIG.5





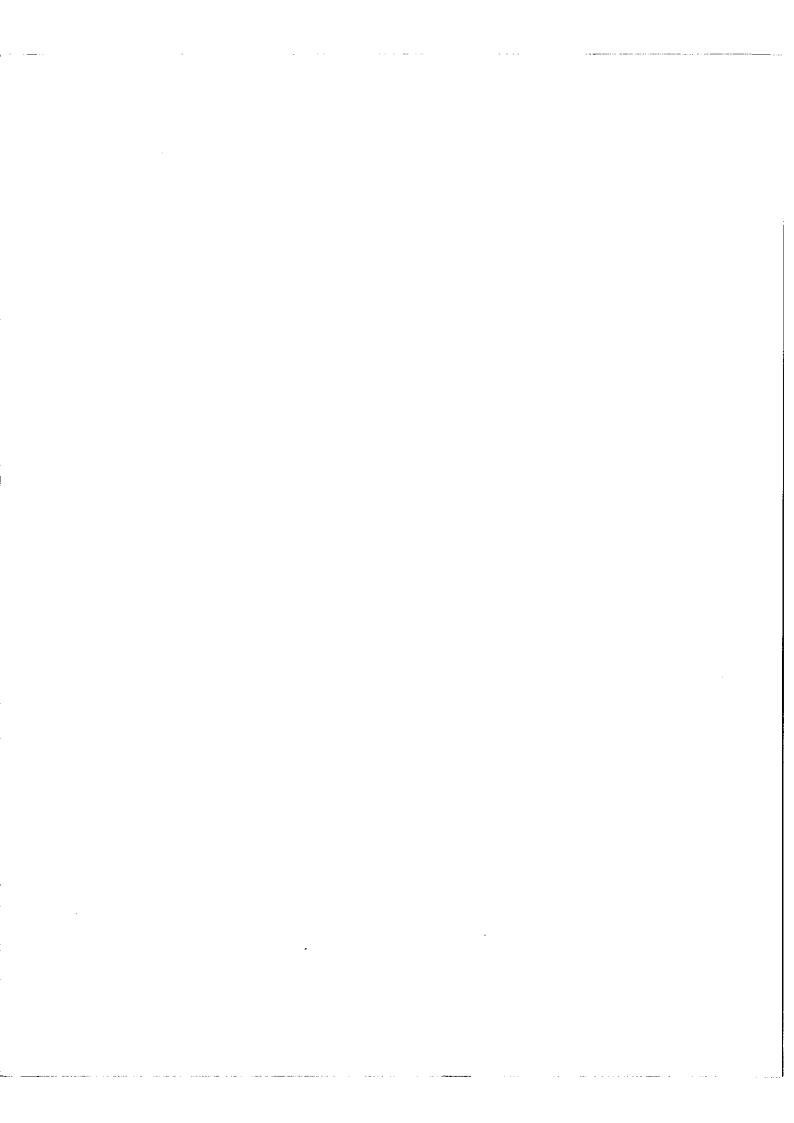
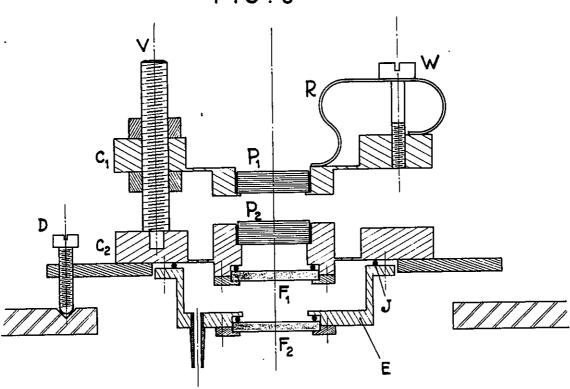


FIG.6



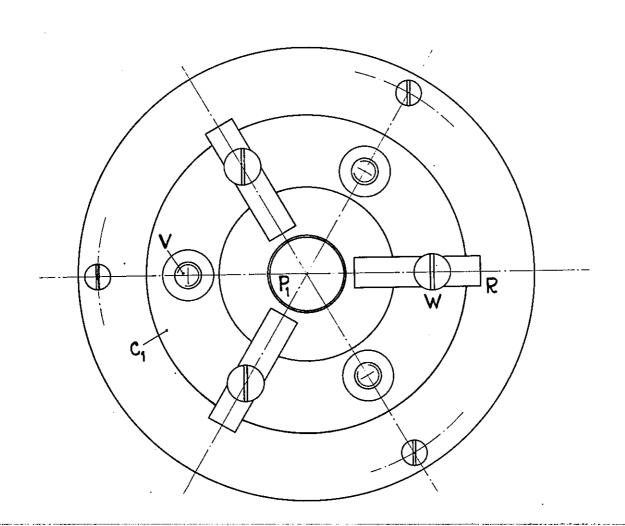
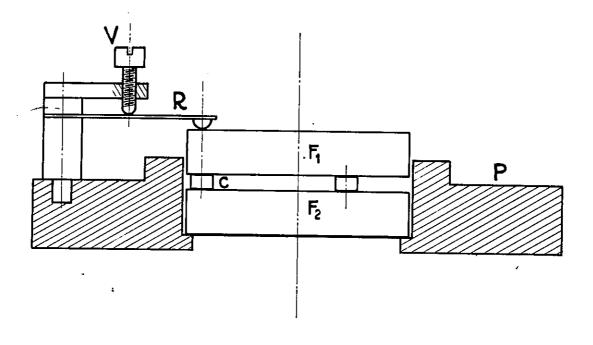
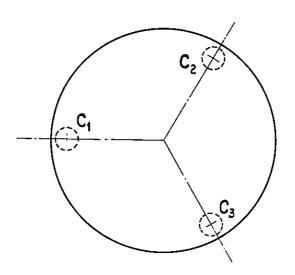
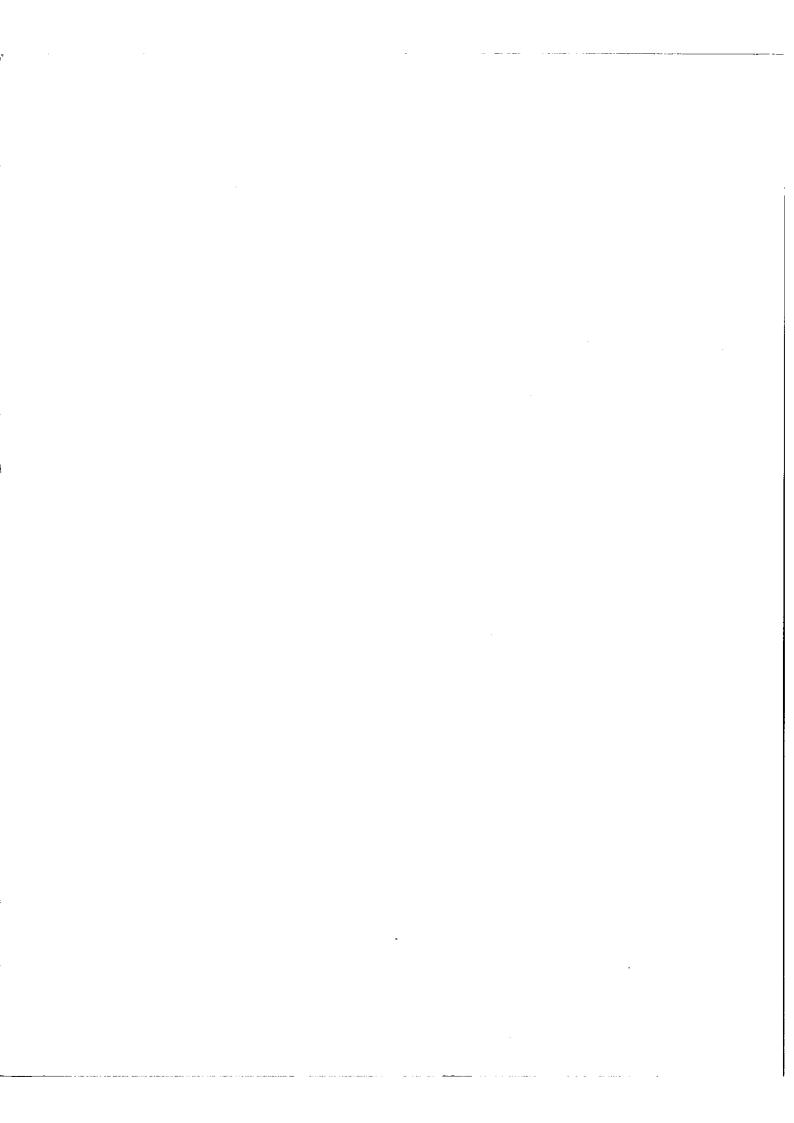


FIG.7







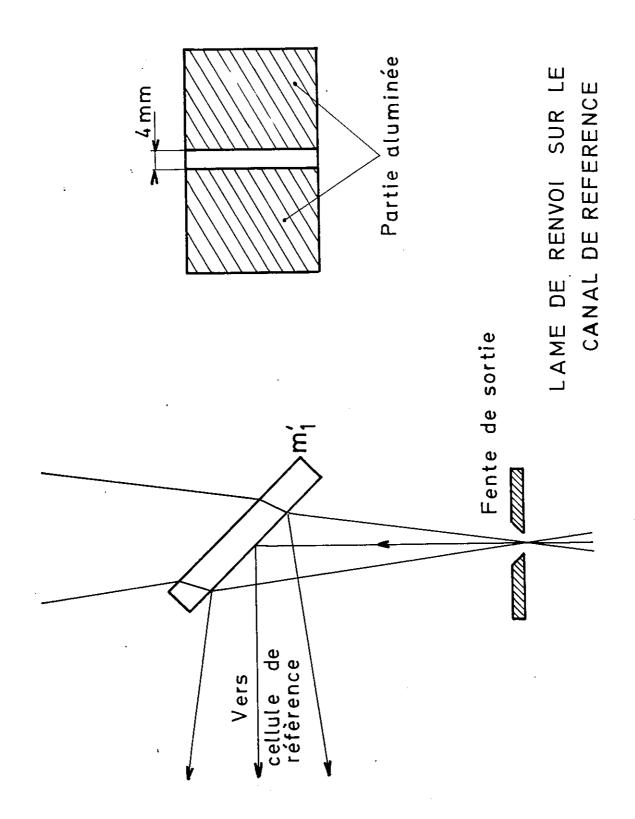


TABLEAU II

	. •	TABLEAU	II		
Longueur d'onde A	Intensité	Classification	Déplac. Isoto. 238 U - 235 U	Structure hyperfine de 235U	Voisinage de la raie
4156	3	5 K° 5 - 2467 <sub>6</sub>	- 375	très négligeable	dense
4362	. 6	5 L° <sub>6</sub> - 2286 <sub>6</sub>	- 235	n <b>é</b> glig <b>ea</b> ble	dense
4426	4	5 L° <sub>6</sub> - 2258 <sub>6</sub>	- 280	non négligeable	trës dense
4631	3	5 L° <sub>6</sub> - 2158 <sub>6</sub>	- 340	négligeable	dense
4768	3	5 x° <sub>5</sub> - 2158 <sub>6</sub>	- 342	négligeable	très dense
4944	4	5 L° <sub>6</sub> - 2021 <sub>6</sub>	- 380	non négligeable	dense
4967	4	5 L°7 - 2392 <sub>8</sub>	- 322	non négligeable	peu dense
5027	. 8	5 L° <sub>6</sub> - 1988 <sub>7</sub>	- 411	négligeable	peu dense
5280,38	4	5 L° <sub>6</sub> - 1893 <sub>5</sub>	- 230	non négligeable	dense



ا و ف

#### CHAPITRE III

#### MESURES EFFECTIVES DES INTENSITES

#### 3 - 1. Choix de la raie d'analyse

La raie la plus utilisée (11) pour les mesures d'abondance dans l'Uranium est la raie 4244 À du spectre d'étincelle (possédant l'avantage de présenter un grand déplacement isotopique) mais elle a également comme inconvénient majeur, la présence de raies faibles ayant la même lon gueur d'onde qu'une des raies d'analyse et qui viennent perturber les mesures des intensités des composantes isotopiques.

Après avoir étudié plusieurs raies appartenant au spectre d'arc (tableau II) ainsi qu'au spectre d'étincelle, c'est finalement la raie  $\lambda$  = 5027 Å du spectre d'arc, qui a été retenue. La figure 9 montre un enregistrement de cette raie, obtenu avec un F.P d'i. s. l. égal à 1360 mK.

Cette raie correspond à la transition ( ${}^5L_6$  - 1988,) et le déplacement isotopique mesuré entre les isotopes  ${}^{238}U$  et  ${}^{235}U$  est de - 411 mK.

La figure 10 schématise le voisinage immédiat des deux composantes isotopiques homologues. La raie A relative à l'isotope 238 a pour longueur d'onde d'après D. W. Steinhauss  $\lambda_{238} = 5027,385$  la raie correspondante à l'isotope 235 se trouve vers les faibles longueurs d'onde ( $\lambda_{235} = 5027,282$  Å).

Vers les grandes longueurs d'onde et à 495 mK de la raie A se trouve une autre composante B appartenant à l'isotope 238 et d'intensité équivalente à celle de a.

#### 3 - 2. Mesure du rapport d'abondance

Si la méthode permettait d'atteindre la mesure absolue des abondances, on aurait d'après la relation ( $\mathbb{P}$  - 2), en notant par  $I_A$  et  $I_a$  les intensités mesurées des

composantes A et a.

$$= \frac{I_A}{I_A} = \frac{C_{238}}{C_{235}}$$

Dans le cas étudié de l'uranium naturel, ce rapport doit donc être égal à 138,85 formule (1 - 4). Or, les valeurs obtenues à partir de la mesure des intensités de A et a peuvent varier de 90 à 170 suivant les conditions expérimentales.

Il est donc nécessaire de rechercher toutes les causes susceptibles de fausser les intensités mesurées. La connaissance de ces causes et la détermination de leur importance nous permettront alors de corriger les valeurs mesurées.

# 3 - 3. Causes d'erreurs (Mesures absolues, utilisation d'une seule source)

### Définition:

Si l'on représente par I l'intensité mesurée d'une raie et par I. l'intensité vraie de cette raie :

 $\delta$  I = I. - I est par définition l'erreur commise sur la mesure de I . Il est commode de considérer  $\delta$  I comme étant la somme de trois termes. On pose donc :

$$\delta I = \delta I_S + \delta I_I + \delta I_R$$
 (3 - 1)

Ces trois termes correspondent respectivement aux erreurs introduites par la source, par l'instrument et par le récepteur.

## 3 - 4. Erreurs dues à la source

Parmi les erreurs introduites par la source conduisant à des valeurs erronées des intensités, on peut distinguer deux types différents :

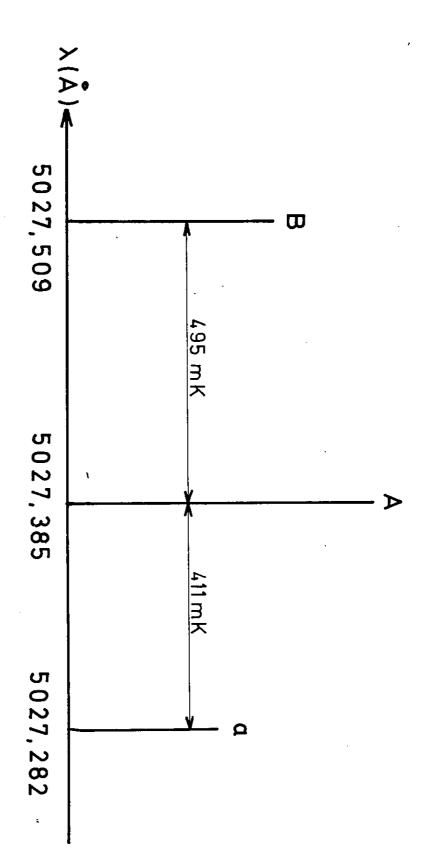
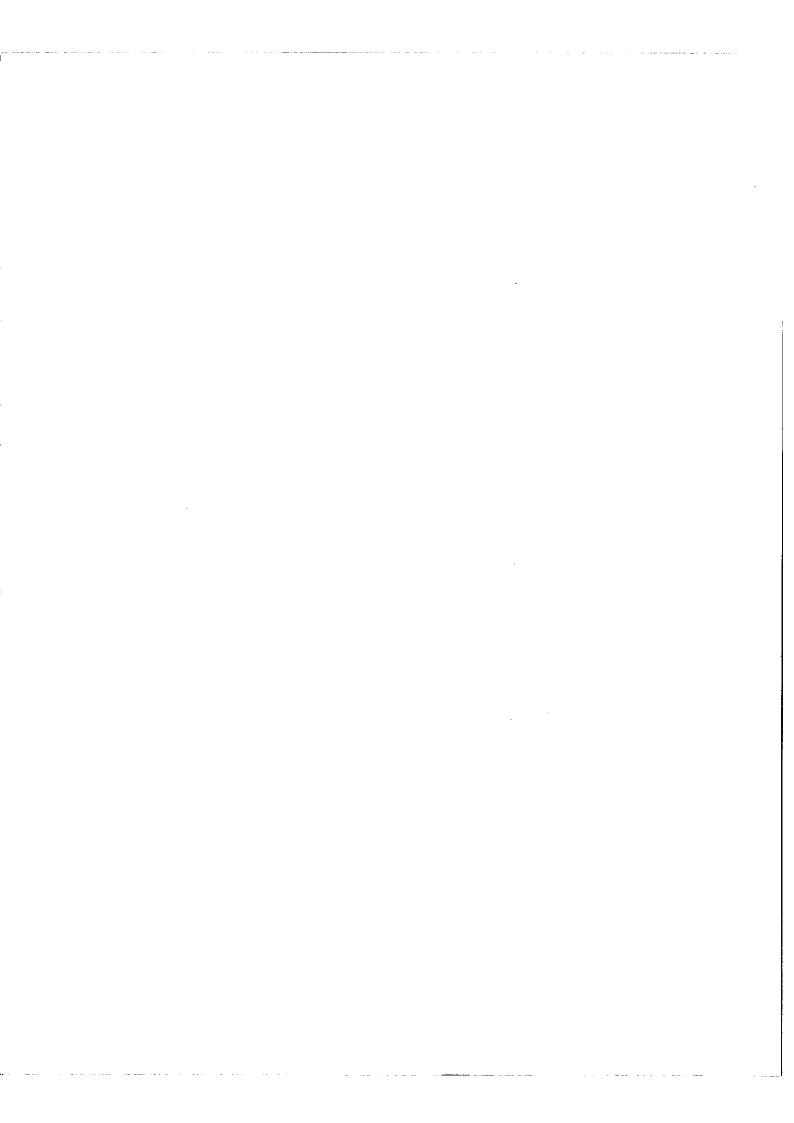


FIG. 10



## 3 - 4 - 1. Erreurs introduites par la nature même du spectre étudié

En principe, il n'y a aucun moyen de remédier à de telles erreurs, et nous ne pouvons qu'en tenir compte en effectuant les corrections adéquates. Ces corrections peuvent provenir de :

- a)- Présence de raies parasites dont la fréquence coincide exactement avec les composantes isotopiques.
- b)- Profil différent pour chaque composante isotopique: s'il s'agit d'isotopes pairs, la correction est immédiate (paragraphe 3 4 2.) s'il s'agit d'isotope impair possédant une structure hyperfine, la mesure des intensités doit alors se faire par la mesure des aires Z<sub>1</sub> des composantes et non plus par la mesure de la hauteur des pics I<sub>1</sub>
  c)- Influence mutuelle des pieds des composantes isotopiques dans le cas où la distance séparant ces composantes est trop faible par rapport à leur largeur propre.
  - 3 4 2. <u>Erreurs introduites par le mécanisme</u> et la nature de la décharge utilisée pour produire le spectre
- a)- Influence de la température et de la pression dans la décharge. A la température et à la pression auxquelles nous opérons, la principale cause d'élargissement des raies est l'effet Doppler.

Si l'on représente par  $\delta \sigma_i$  la largeur à mi-hauteur d'une composante de fréquence  $\sigma_i$  relative à un isotope pair  $m_i$  on a :  $\delta \sigma_i = 0.716 \sigma_i = 10^{-6} \sqrt{\frac{T}{M_i}} (3-2)$ 

Pour une composante homologue relative à un isotope  $M_j$  la largeur à mi-hauteur sera également proportionnelle à  $\frac{T}{Mj}$ : il en résulte qu'entre les intensités mesurées  $I_j$  et  $I_j$  et les concentrations nous aurons la relation :

$$\frac{C_i}{C_j} = \frac{I_i}{I_j} \sqrt{\frac{M_j}{Mi}}$$
 (3 - 3)

#### b) - Présence d'autoabsorption

DIEKE et COWAN ont donné une théorie de l'autoabsorption des raies (12) et nous pouvons utiliser les résultats auxquels ils sont parvenus pour chercher une expression particulière valable pour une décharge dans une cathode creuse.

Si f(x) est la fonction représentant la densité d'atomes dans la colonne des vapeurs atomiques, f(x) le coefficient d'absorption, dans un tube à cathode creuse (fig. 11) nous obtenons :

$$\frac{I}{I_o} = \frac{1}{M} \frac{1 - \exp\left[-\mu \int_0^X g(x) dx\right]}{\int_0^X g(x) dx}$$
(3-4)

La raie sur laquelle porte l'analyse aboutissant au niveau fondamental  $^5L_6^{\circ}$  est nécessairement sensible au phénomène d'autoabsorption. En effet l'expression (3 - 4) a une valeur qui décroît avec la croissance de  $\mu$ . Or  $\mu$  peut s'écrire sous la forme :

$$\mu(\nu) = \frac{\lambda_o^3}{8\pi} \frac{1}{\sqrt{2\pi R}} \sqrt{\frac{M}{T}} \frac{g_P}{g_q} A_{p+q} N_q exp - \left[\frac{2(\nu-\nu_o)}{\Delta\nu_D} \sqrt{\ln 2}\right]^2 (3-5)$$

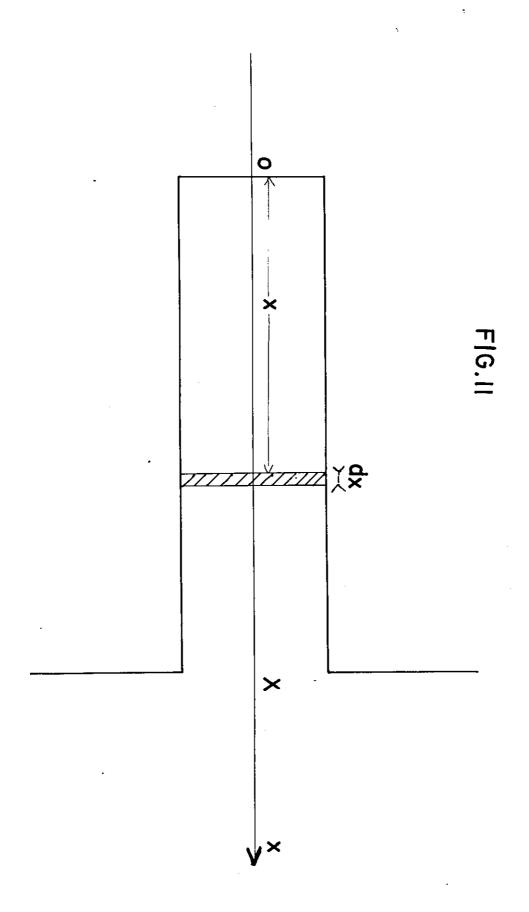
Na représentant le nombre d'atomes dans le niveau inférieur de la transition.

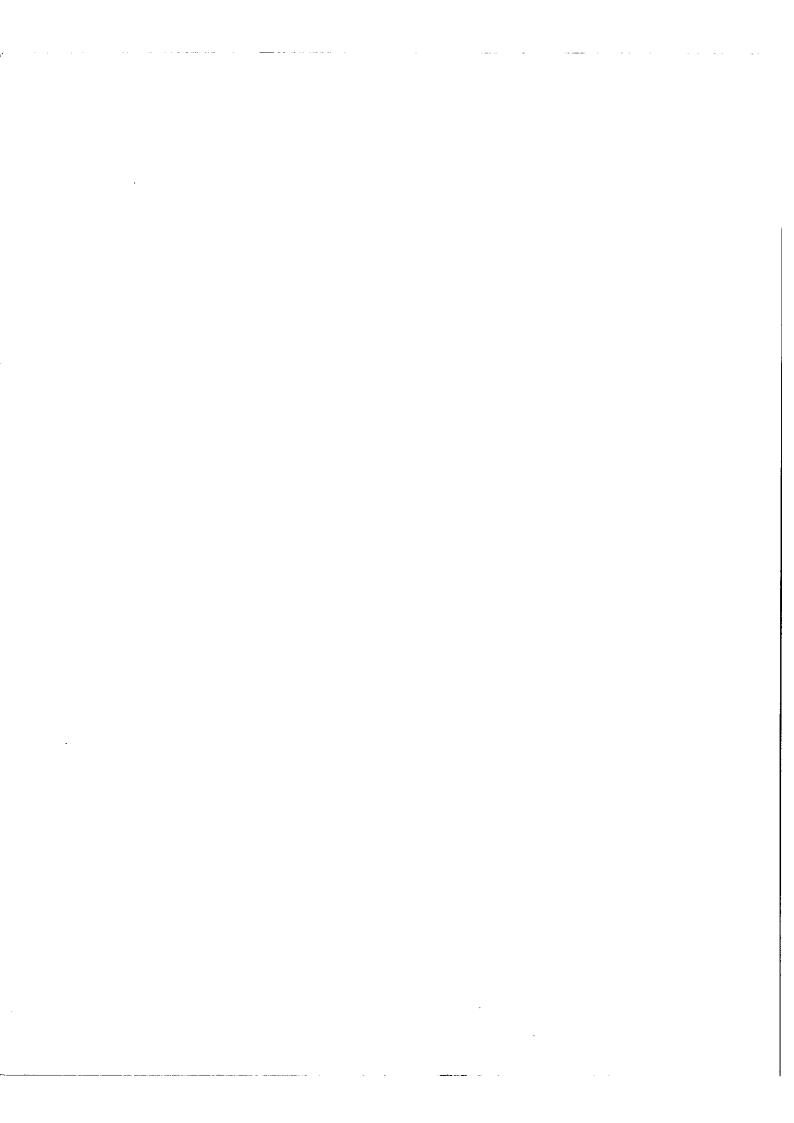
Pour le niveau fondamental pu est important et l'autoabsorption ne peut pas être négligée. Des mesures précises de cette autoabsorption seront discutées dans le paragraphe (9 - 3).

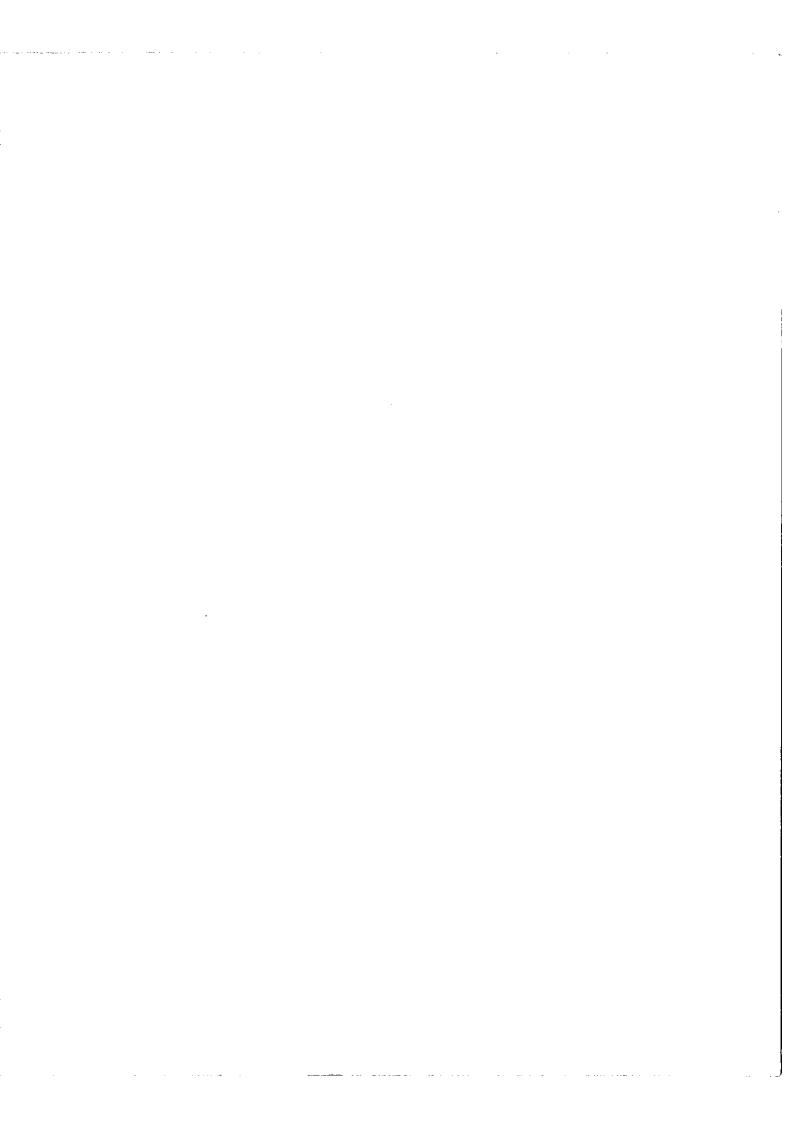
c)- Corrections diverses dues au fond continu et autres anomalies possibles.

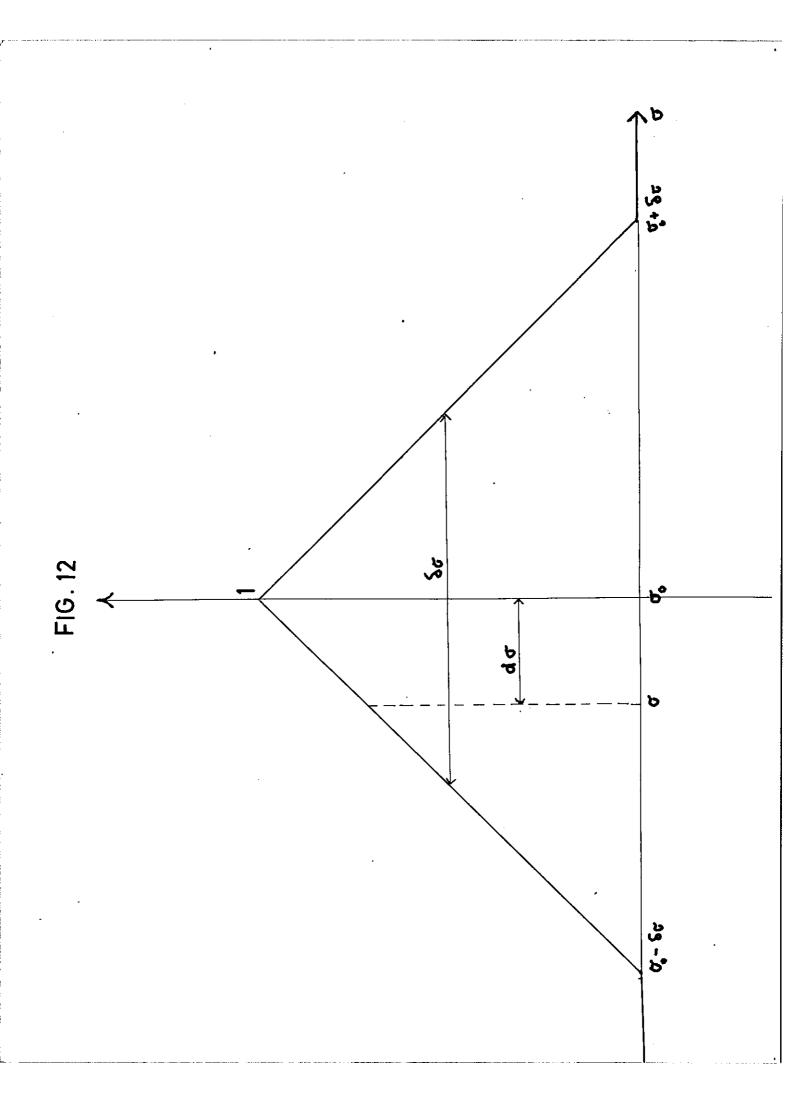
Si  $B_1$  ( $\sigma$ ) est le spectre donné par une source idéale caractérisée par des raies ayant la largeur naturelle et non autoabsorbées et si nous tenons compte de toutes les corrections que nous venons de signaler, le spectre fourni par un tube à cathode creuse sera représenté par une fonction  $B_2$  ( $\sigma$ ) tel que :

$$B_2(\sigma) = \left[B_1(\sigma) * G\right] f(\sigma) + b(\sigma) \qquad (3-6)$$









G représente une fonction de Gauss, f (f) une fonction de l'autoabsorption formule (3-4) et b (f) est le fond continu; nous pouvons admettre que cette fonction b(f) a la même valeur pour les différentes composantes isotopiques. Ce fond continu a une très faible valeur et n'a jamais pu être mis en évidence. De même les anomalies observées dans les intensités des isotopes impairs dans le cas du mercure (13) du cadmium (14) de l'indium (15) n'ont pas été décelées dans le cas de l'uranium.

#### 3 - 5. Erreurs dues à l'instrument

 $3 \div 5 - 1$ . Le monochromateur transforme la fonction  $B_2$  ( $\sigma$ ) fournie par la source en une fonction  $B_3$  ( $\sigma$ ) telle que :

$$B_3 \quad (\sigma) = B_2 \quad (\sigma). \quad g \quad (\sigma)$$
 (3 - 7)

g ( $\sigma$ ) est la fonction de transmission du monochromateur. Dans le cas général, c'està-dire où on recherche les meilleures conditions d'utilisation du monochromateur (flux maximum pour une résolution donnée) il est indiqué (16) de travailler avec des fentes égales. La fonction g ( $\sigma$ ) devient alors:

$$g(\sigma) = -\left|\frac{\sigma - \sigma_o}{\delta\sigma}\right| + 1 \quad \text{avec} \quad \sigma_o - \delta\sigma < \sigma < \sigma_o + \delta\sigma \qquad (3-8)$$

50 étant la largeur de la fonction de transmission représentée par la figure 12

6 est le nombre d'onde qui correspond au maximum de transmission.

Une composante d'intensité I( $\sigma$ ) telle que  $\sigma - \sigma_o = d\sigma$ sera mesurée comme ayant une intensité I' ( $\sigma$ ) telle que  $SI = I - I' = I \frac{d\sigma}{SG}$ (3 - 9)

Exemple numérique: Pour que 5 I soit inférieur à 1 %, il faut que 50 largeur de la bande passante du monochromateur soit supérieure à 13 Å dans le cas de l'U.

Rappelons que le profil de la fonction de transmission n'altère pas uniquement les intensités mais fausse aussi la distance qui sépare deux composantes en déplaçant leur centre de gravité : (17) - p. 88).

3 ~ 5 ~ 2. L'interféromètre F.P analyse la fonction  $B_3$  ( $\sigma$ ) et la fonction finalement enregistrée  $\Upsilon(\sigma)$  sera donnée, suivant les notations de R. CHABBAL (17) par :

$$Y (\mathbf{G}) = B_3 (\mathbf{G}) \times W (\mathbf{G})$$
 (3 - 10)

W ( $\sigma$ ) étant la fonction d'appareil du spectromètre F.P qui explore l'échelle des  $\sigma$  quand on fait varier la différence de marche entre deux rayons successifs.

La fonction instrumentale W ( $\sigma$ ) est aussi égale au produit de convolution des trois fonctions

- A (T) est la fonction d'Airy
- D ( ) est la fonction défauts
- F (**V**) est la fonction diaphragme

L'intensité de chaque composante contenue dans B<sub>3</sub> (**C**) sera pertubée:

- a)- Par les pieds de la fonction d'Airy des composantes voisines, ces pieds sont plus importants que ceux de la fonction de Gauss ayant la même largeur à mi-hauteur.
- b)- Par le fond instrumental du spectromètre F.P qui a deux origines : le fond continu dû à la lumière diffusée par le réseau et le fond qui incombe au F.P lui-même, fonction du pouvoir réflecteur du revêtement diélectrique. Ce dernier appelé contraste, est nettement prépondérant;

Enfin, si deux composantes n'ont pas la même largeur, leur coefficient de transmission & sera différent, ce qui se traduira par une variation de leurs intensités relatives.

Ce phénomène sera étudié en détail au paragraphe (6 - 2 - 2)

## 3 - 5 - 3. Le récepteur

Malgré le grand rapport existant entre les intensités des deux composantes, le récepteur est utilisé dans une zone où sa réponse en fonction du flux incident, est encore linéaire. Le phénomène de fatigue, qui se traduit par un affaiblissement du signal pour un flux constant, remarqué sur la raie 5460 Å du Hg ne se manifeste pas pour les raies de l'Uranium.

Nous pouvons donc supposer que & IR est nul.

#### 3 - 6. Conclusion

La simple énumération de toutes les corrections à effectuer pour obtenir un rapport d'abondance (voisin de celui de l'Uranium naturel) avec une précision de 1 %, est suffisamment éloquente pour conclure qu'il est impossible d'effectuer des mesures absolues d'abondance à la précision recherchée.

Les résultats obtenus sur la reproductibilité des rapports  $\frac{I_A}{I_a}$  ou  $\frac{I_B}{I_a}$  (moins sensible à l'autoabsorption) sont loin d'être satisfaisants; de même les tentatives pour établir avec précision les coefficients de correction, se sont soldées par des échecs. La raison principale de cet échec de mesure absolue d'abondance, incombe évidemment au domaine des faibles concentrations en Uranium 235 ( 0,7%) auquel nous nous intéressons.

Pour des teneurs supérieures à quelques pour cent en 235U les mesures deviennent beaucoup plus précises, mais c'est un problème commun, déjà partiellement résolu (18). Pour résoudre notre problème de dosage aux faibles concentrations, il nous reste cependant encore, la possibilité d'effectuer des mesures relatives.

#### DEUXIEME PARTIE

#### MESURES RELATIVES D'ABONDANCE

#### INTRODUCTION

Nous venons d'étudier dans la première partie, les précisions grossières auxquelles nous avons abouti en cherchant à atteindre des mesures absolues d'abondance. Il devient alors nécessaire, si nous désirons améliorer la précision et diminuer le temps d'analyse, d'introduire une source auxiliaire qui servira de source étalon et de comparer la source contenant l'échantillon à étudier à cette source étalon.

Cette méthode de mesure relative devrait diminuer, voire annuler, toutes corrections dans le cas où les sources à comparer ont des abondances voisines. Ainsi à partir d'une courbe d'étalonnage préalablement tracée nous pouvons, d'après la mesure obtenue sur un échantillon, déterminer sa concentration.

Il est alors commode d'utiliser, dans ce but, un dispositif permettant d'analyser alternativement, ces échantillons (connus et inconnus).

#### CHAPITRE IV

#### UTILISATION DE DEUX SOURCES

#### 4 - 1. Dispositif de montage de deux sources

Les deux lampes à cathode creuse sont fixées symétriquement par rapport au plan médian de l'HYPEAC qui est aussi le plan défini par le rayon moyen du faisceau représenté sur la figure 4. Un plateau mobile autour d'un axe vertical supporte deux miroirs  $M_3$  et  $M_4$  (fig. 13) et s'immobilise en deux positions bien définies. Chacune de ces positions amène l'un des centres miroirs  $M_3$  ou  $M_4$  à l'intersection du plan médian de l'appareil avec le rayon moyen incident issu de l'une des sources et réfléchi par l'un des miroirs  $M_1$  ou  $M_2$ .

Ce procédé entraîne naturellement deux réflexions supplémentaires; il reste néanmoins plus pratique et plus simple à réaliser que celui qui consiste à déplacer les sources elles-mêmes, chacune d'elles devant occuper le même emplacement géométrique. Le réglage des miroirs  $M_1$ ,  $M_2$ ,  $M_3$ ,  $M_4$  ne présente aucune difficulté.

L'utilisation de ce dispositif présente un double avantage :

- 1°)- Les mesures sont plus rapides, donc le temps d'analyse est moins long.
- 2°)- Des variations lentes et aléatoires des propriétés de l'appareil peuvent être éliminées en alternant les mesures pour les deux sources.

Signalons qu'en dehors de cette application, l'utilisation de deux ou plusieurs sources comporte de multiples avantages dans d'autres problèmes de spectroscopie tels que le déplacement isotopique.

# 4 - 2. Etude de la reproductibilité des mesures à l'aide de deux sources (cas de deux sources identiques)

Supposons que nous puissions définir deux sources identiques comme étant deux sources de même nature et contenant le même échantillon, c'est-à-dire, les mêmes abondances isotopiques.

Dans le cas de l'Uranium naturel, nous avons :

$$P = \frac{C_{238}}{C_{235}}$$

Désignons par  $\rho$ ,  $\rho'$  et  $\infty$  les 3 quantités mesurées, telles que :

$$\rho = I_A/I_a$$
  $\rho' = I_B/I_a$  et  $\alpha = I_A/I_B$ 

Nous pouvons écrire entre ces grandeurs mesurées  $\rho$ ,  $\rho'$  et  $\alpha$  et le rapport d'abondance  $\rho$ , les relations données par le tableau ci-dessous, pour les deux sources  $s_1$  et  $s_2$ 

TABLEAU III

Rapports mesurés	Source 1	Source 2	
$I_A/I_a = \rho$	ρ <sub>1</sub> = k <sub>1</sub> ρ <sub>0</sub>	P2 = k2P.	
$I_B/I_a = \rho'$	$\rho'_1 = k(_1\rho_0)$	P'2 = k'2 P.	
I <sub>A</sub> /I <sub>B</sub> = ×	$k'_1 = \frac{k_1}{\infty}$	$k^{\dagger}_{2} = \frac{k_{2}}{\alpha}$	

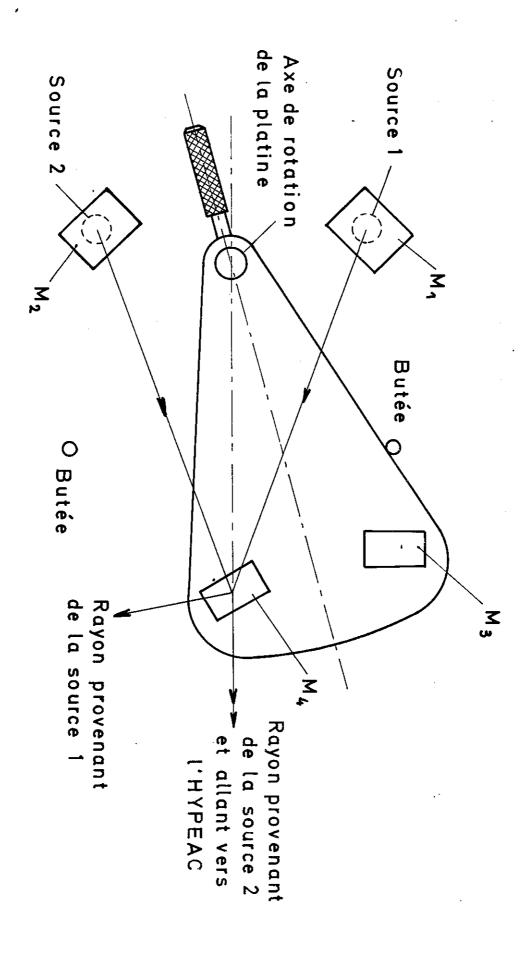
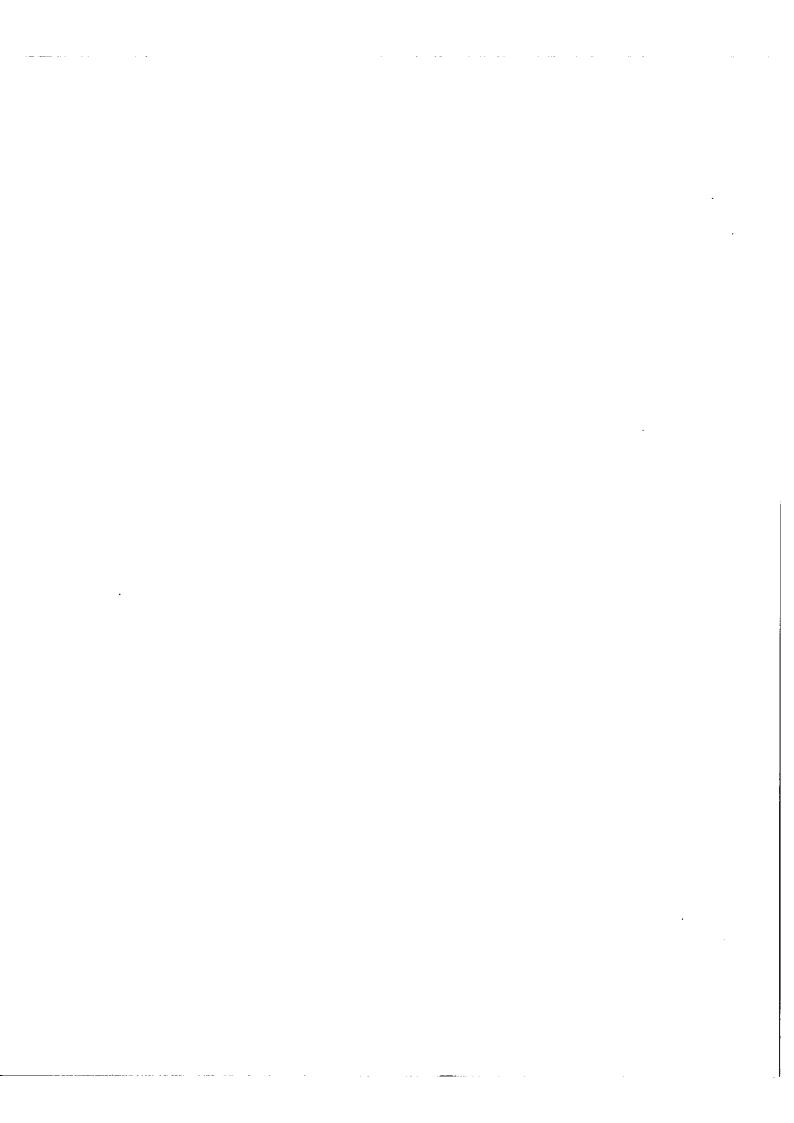


FIG 13 MONTAGE DE DEUX SOURCES



Entre le coefficient k (qui devraitssitout était parfait, être égal à l'unité) et les erreurs A et Sa commises sur la mesure des intensités I et I on a la relation :

$$k = (1 + \frac{\sum I_a}{I_a}) / (1 + \frac{\sum I_A}{I_A})$$
 (4 - 1)

soit r le rapport des grandeurs  $\rho_1$  et  $\rho_2$  mesurées respectivement des la source l et la source 2.

$$r = \frac{\rho_1 k_1}{\rho_2 k_2} (\text{de même } r' = \frac{\rho'_{1'}}{\rho'_{2'}} = \frac{k'_1}{k'_2})$$

Bien que k<sub>1</sub> et k<sub>2</sub> soient individuellement différents de l'unité, leur rapport r pour deux sources identiques, doit être égal à l'unité. L'écart obtenu entre les valeurs de r et l'unité représente la précision limite que l'on peut atteindre pour des mesures relatives d'abondance.

Les premières mesures effectuées - tableau IV - par alternance des sources, ont montré que la valeur de rétait comprise entre 0,95 et 1,05.

Cet écart de 5 % représente cinq fois l'erreur maximum que nous nous sommes fixés à priori, comme limite à ne pas dépasser. Nous avons donc entrepris l'étude systématique de la recherche des causes d'erreurs.

Diverses possibilités s'offrent pour classer ces causes d'erreurs. La classification que nous proposons est la suivante : dans un premier temps (chapitre V) nous étudierons les erreurs introduites par un défaut de stabilité instrumentale et un mauvais alignement des sources. Puis dans un deuxième temps (chapitre VI) et (chapitre IX), ce sont les erreurs dues aux sources elles-mêmes qui seront analysées. Alors que la première classe de défauts se retrouve dans toute méthode de mesure et se corrige assez facilement, il en est tout autrement de la deuxième

catégorie des défauts de desur sources qu'il est bien difficile de maîtriser complètement.

En effet, deux sources identiques, au point de vue géométrique et utilisées dans des conditions expérimentales aussi voisines que possible (même pression, même courant, etc...) présentent cependant de légères différences entre elles que l'on ne peut réduire. La répartition de brillance et la température des deux sources ne peuvent être rendues rigoureusement identiques. Ceci entraîne des erreurs de mesures exposées plus loin. Mais avant d'entreprendre l'étude en détail dans ces chapitres de chacune des causes possibles d'écart entre les sources, il nous semble utile de rappeler que le but de notre problème est de rendre cet écart inférieur à :

1 % sur des rapports d'abondance  $\rho_{\bullet}$  voisins de 130 c'est-à-dire, qu'il nous faut éliminer toute variation d'intensité d'une des composantes I supérieure au dix millième de la composante (Tig (fig. 9).

#### CHAPITRE V

#### ERREURS DUES AUX DEFAUTS INSTRUMENTAUX

#### 5 - 1. Stabilité

Une variation des propriétés de l'instrument au cours du temps produit des variations aléatoires des rapports r et r'. En effet, rappelons que la méthode consiste à enregistrer successivement les trois composantes d'analyse émises respectivement par les sources 1 et 2; désignons celles-ci par : a<sub>1</sub>, A<sub>1</sub>, B<sub>1</sub> et a<sub>2</sub>, A<sub>2</sub>, B<sub>2</sub>. Nous allons étudier la conséquence d'une instabilité des éléments du spectromètre sur les intensités de ces composantes sachant que les principaux phénomènes qui entraînent cette instabilité peuvent être d'ordre dynamique ou thermique.

Une suspension adéquate isole le spectromètre d'éventuels phénomènes vibratoires et il ne nous reste plus qu'à étudier l'importance d'une variation thermique quelconque sur la stabilité de l'appareil.

#### 5 - 1 - 1. Le monochromateur

Une mauvaise stabilité du monochromateur se traduit, généralement, par un déplacement de sa bande passante, donc une variation de sa transparence.

Le montage du monochromateur étant du type Ebert-Fastie, la fréquence de la radiation transmise peut s'écrire :

$$\mathcal{O} = \frac{p}{2a \sin \alpha \sin \beta} \tag{5-1}$$

étant l'angle de la normale au réseau avec l'axe du spectromètre et  $\beta$  les angles du rayon incident et du rayon diffracté avec ce même axe (fig. 14),  $\bar{p}$  représente l'ordre d'interférence et a le pas du réseau.

De la relation (5 - 1), on déduit :

$$-\frac{d\sigma}{\sigma} = \frac{da}{a} + \frac{\cos \alpha d\alpha}{\sin \alpha} + \frac{\cos \beta d\beta}{\sin \beta}$$
 (5 - 2)

Considérons d'abord le facteur  $\frac{da}{a}$ ; le mélange de résine et d'aluminium, pris dans différentes proportions pour les répliques du réseau suivant leur mode de fabrication, peut avoir un coefficient de dilatation de l'ordre de 5.  $10^{-5}$  dans le domaine des températures ambiantes.

Ce grand coefficient de dilatation entraîne un déplacement appréciable de la bande passante.

Le deuxième terme de l'expression (5 - 2) est nul. En effet, le schéma de l'entraînement du réseau (fig. 15) nous montre que l'angle x reste constant au cours d'une dilatation des bras et des points de fixation.

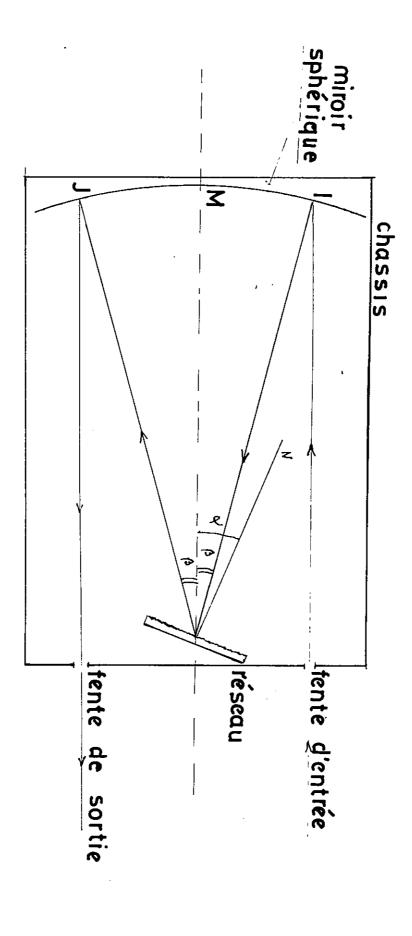
Quant au troisième terme de l'équation (5 - 2); si nous désignons par dx la variation de longueur de MR (fig. 14). Cet accroissement dx entraîne une variation de  $\beta$  telle que :

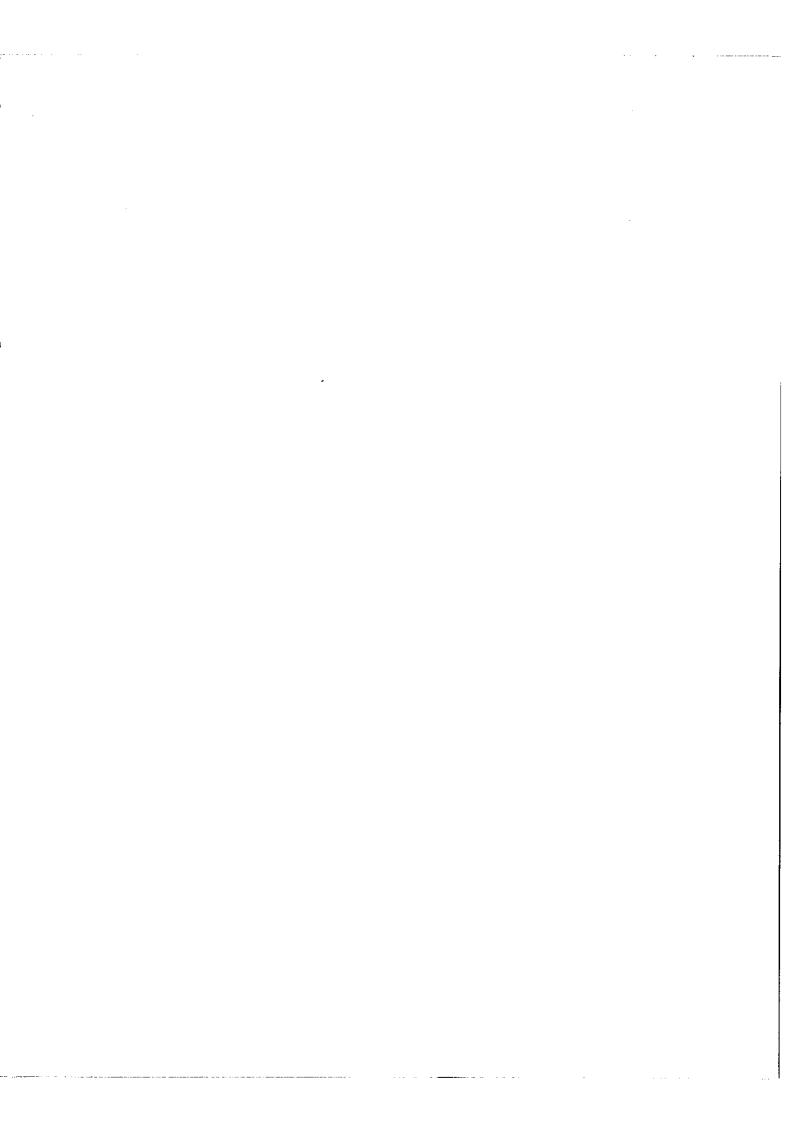
$$d \beta \simeq - \frac{dx \sin \beta}{F}$$

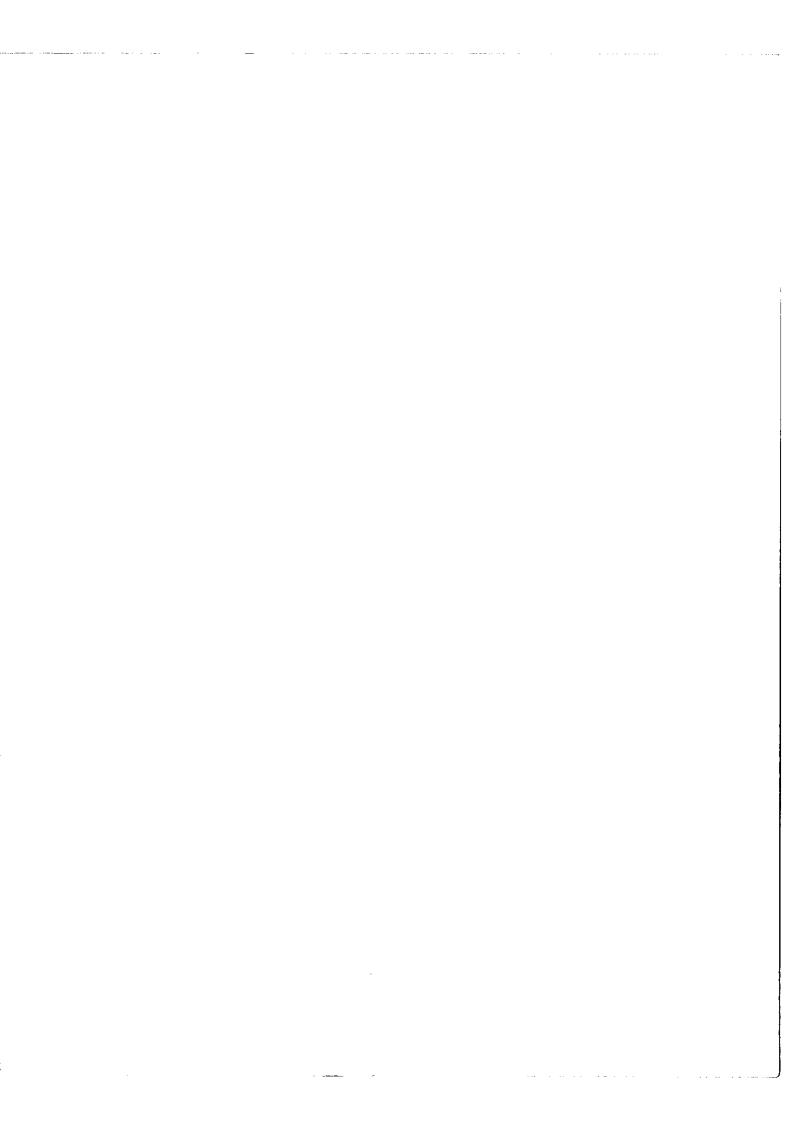
en négligeant les variations dus au miroir de distance focale F.

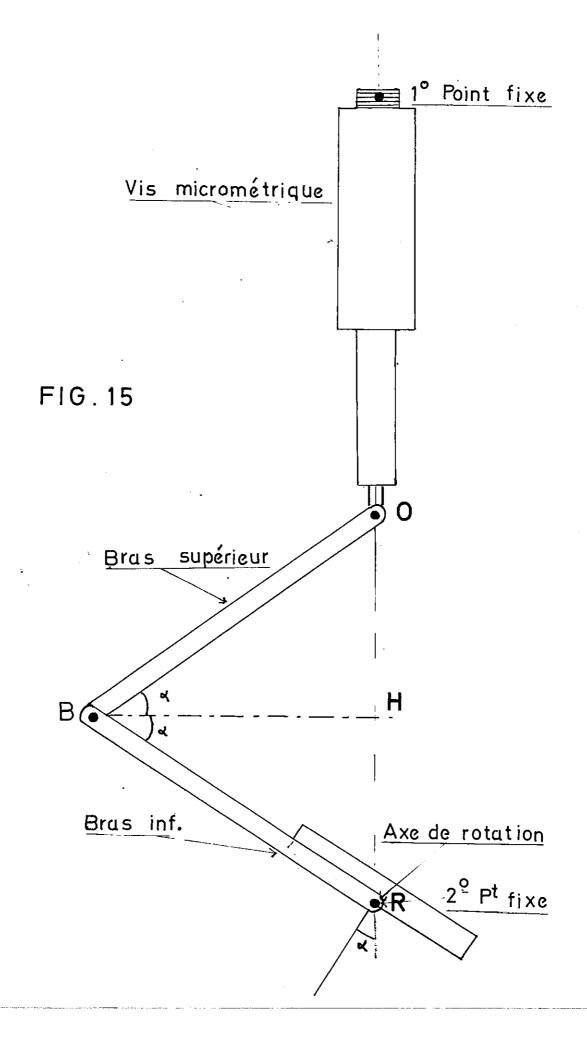
L'expression (5 - 2) devient alors :

$$-d \mathcal{T} = \mathcal{T} \left( \frac{da}{a} - \frac{\cos \beta}{F} dx \right)$$
 (5 - 3)









#### Application numérique

L'HYPEAC a un chassis en alliage léger (A.S. 10 G) dont le coefficient de dilatation est de l'ordre de 20.  $10^{-6}$ , sachant que  $\cos \beta \approx 1$ , on trouve :

Dans le vert 
$$\sigma = 20.000 \, \text{cm}^{-1} \implies -d\sigma \approx 0.6 \, \text{cm}^{-1}$$

donc une élévation de température de l'édéplace la bande passante vers les grandes longueurs d'onde de 0,15 Å.

La conséquence d'un déplacement d'un l'intensité des composantes est évidente :

Si nous reprenons le schéma des trois composantes d'analyse et que nous plaçons le profil de la bande passante du monochromateur (fig. 16) par rapport à ces composantes, comme dans le paragraphe (3,5) nous pouvons écrire :

$$\delta I_{A} = I_{A} \frac{d\sigma'}{\delta\sigma}$$

$$\delta I_{B} = I_{B} \frac{\delta\sigma' + (\sigma_{A} - \sigma_{B})}{\delta\sigma} \qquad \text{distance entre A et B} : \sigma_{A} - \sigma_{B}$$

$$\delta I_{A} = I_{A} \frac{d\sigma'}{\delta\sigma} \qquad \text{distance entre A et a} : \sigma_{A} - \sigma_{B}$$

Précisons que d $\sigma'$  est une fonction du temps :  $d\sigma'$  (t)

Pour améliorer la reproductibilité des mesures en utilisant une ou plusieurs sources et diminuer les fluctuations de la valeur de  $\mathbf{k}_1$  ou de  $\mathbf{k}_2$  nous sommes amenés à modifier le profil de la fonction d'appareil du monochromateur en utilisant des largeurs de fentes différentes (16).

Si u est la largeur réduite de la fente d'entrée et u celle de la fente de sortie, la fonction de transmission du monochromateur ne perturbe pas les intensitésisses composantes A, a, B, à condition que :

Dans ce cas, même un faible déplacement de la bande passante n'altère plus les intensités des différentes composantes (fig. 17) à condition que le maximum de transmission soit bien plat; ce point sera discuté au paragraphe (6 - 1 - 1).

### 5 - 1 - 2. L'interféromètre

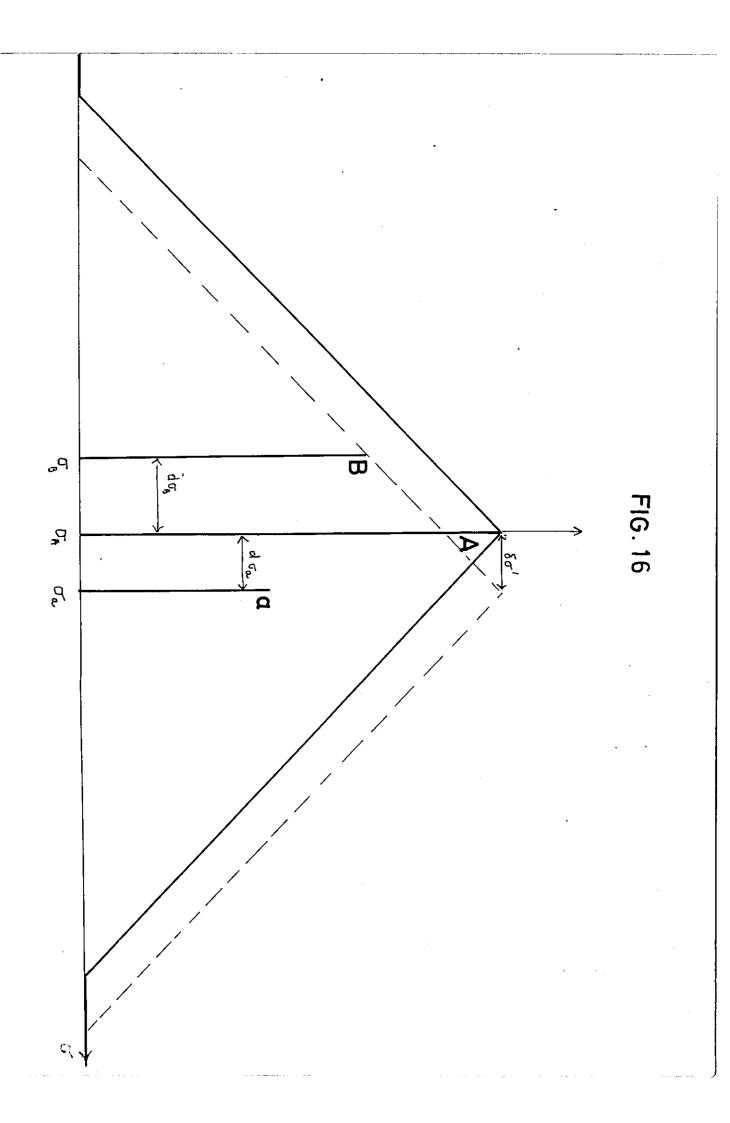
La radiation transmise par un F.P est donnée par l'équation :

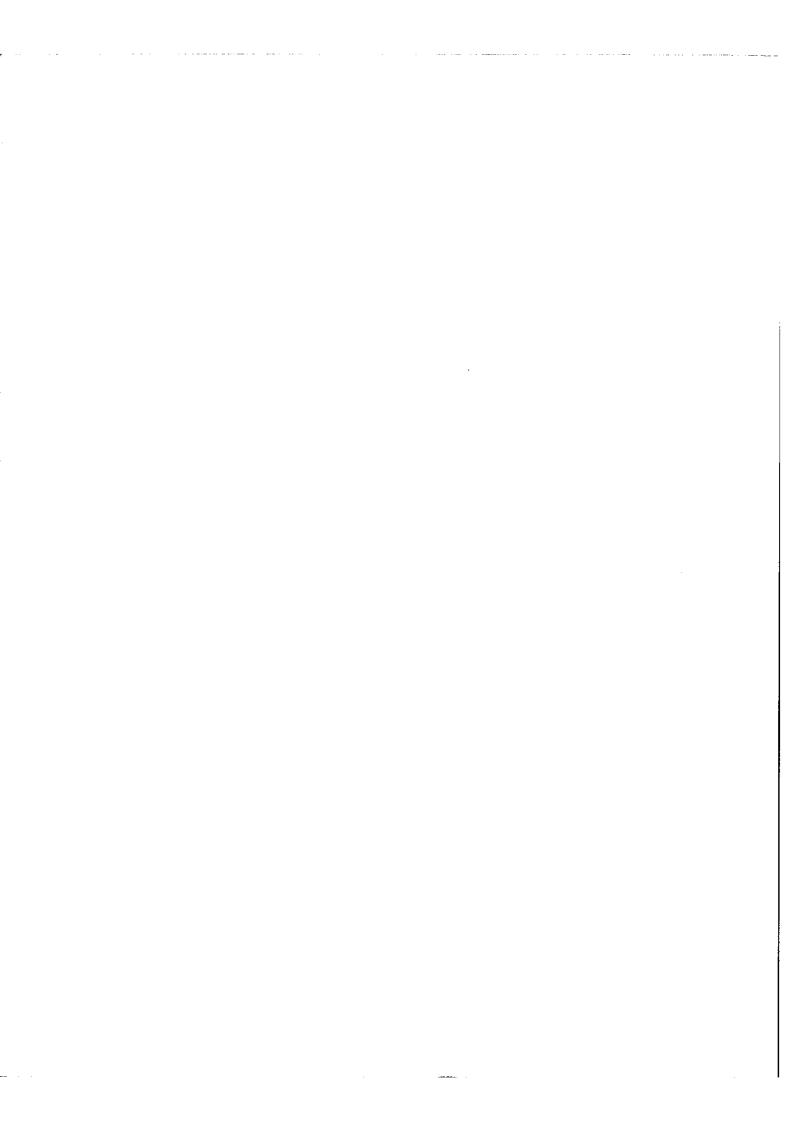
$$\sigma = \frac{P}{2 \text{ ne cos i}}$$
 (5 - 4)

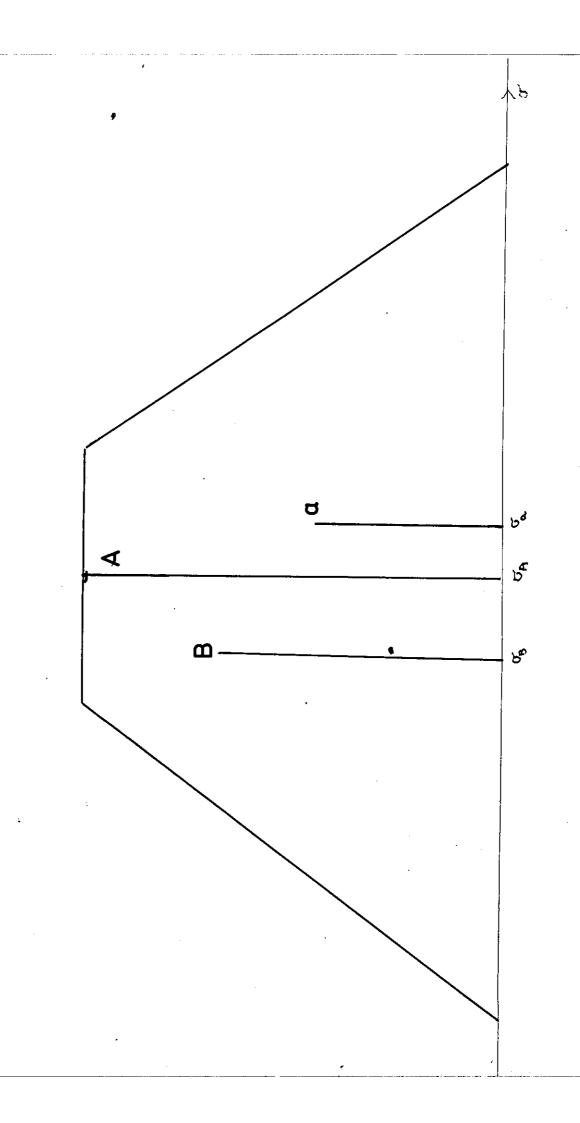
une variation de la température n'agira que sur la distance qui sépare les deux lames. Avec la monture représentée par la figure (6) le déréglage était assez important, ce qui nous a entraîné à thermostater le boîtier contenant l'interféromètre. Cependant, l'utilisation de l'étalon F.P à cales adhérées a donné de très bons résultats au point de vue stabilité de sorte qu'une faible variation de l'épaisseur des cales, entraîne un déplacement de la grille du F.P, ce qui n'est nullement dangereux, mais non un déréglage; car cette variation est la même pour les trois câles.

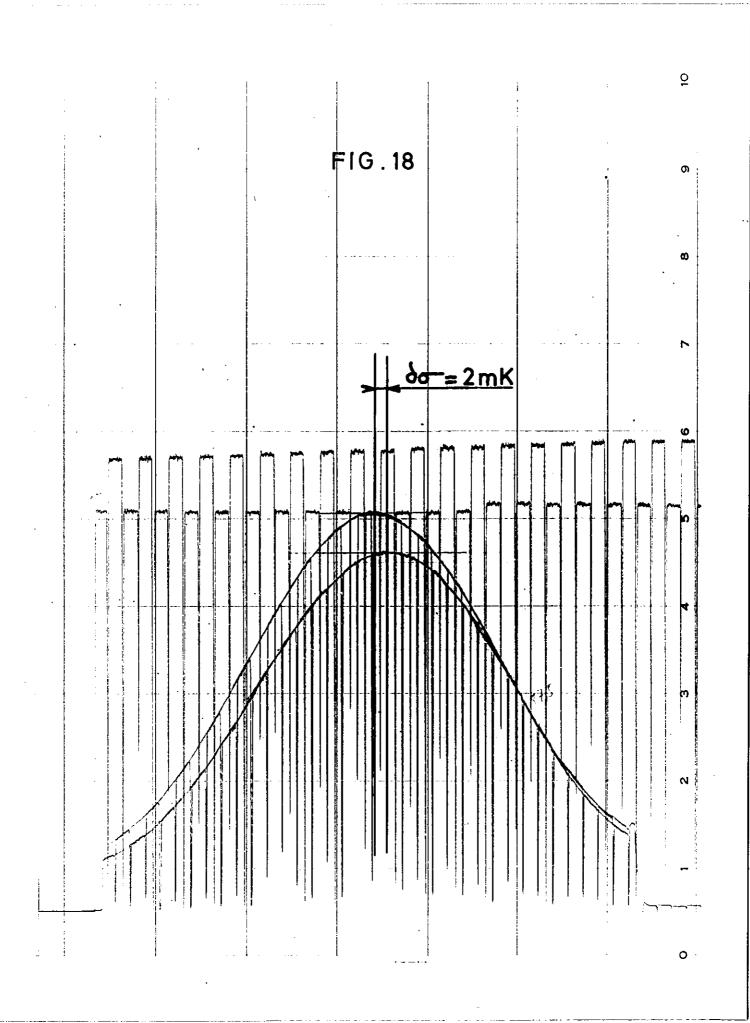
# 5 - 2. Erreurs dues aux défauts d'alignement

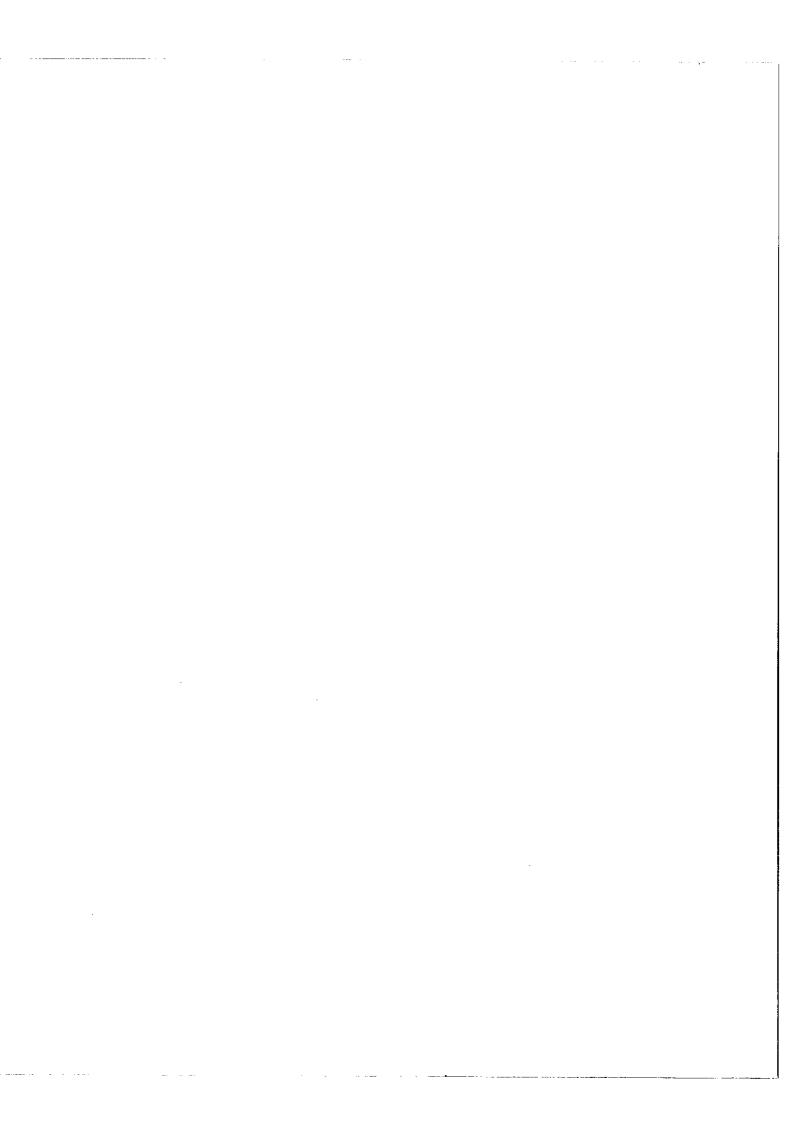
Une substition géométrique incorrecte des sources (l'une à l'autre) donne deux faisceaux non confondus et par conséquent ne remplissent pas l'instrument de la même façon. Ils vont donc utiliser des sections différentes de l'appareil dont les propriétés ne sont pas nécessairement identiques.







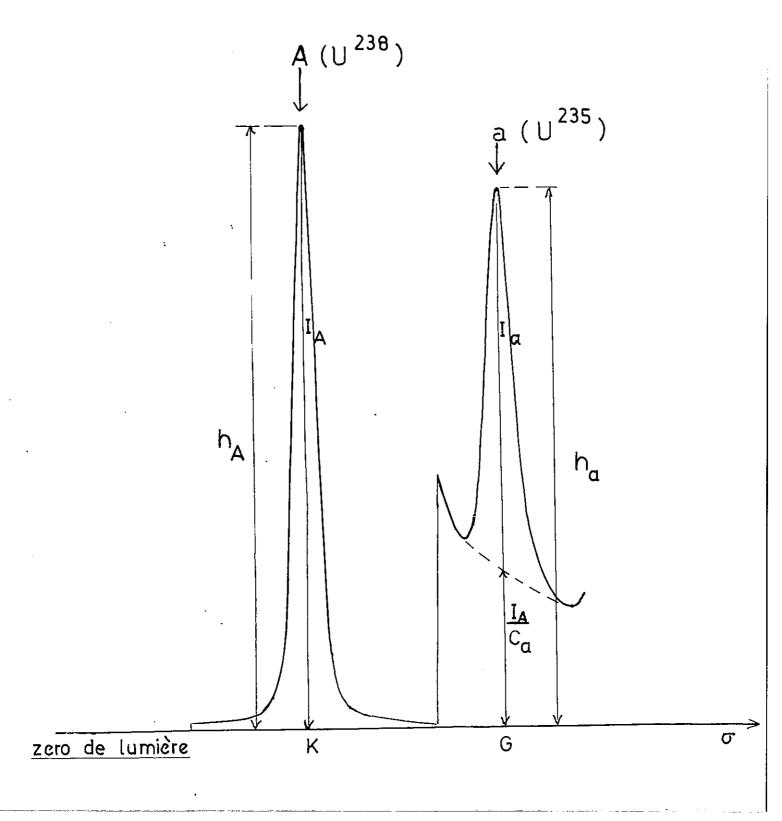




 · · · · · · · · · · · · · · · · · · ·	 	<u></u>
	•	
		!
	•	

FIG.19.

# METHODE DE MESURE DES INTENSITES



Considérons un interféromètre F.P traversé par ces deux faisceaux utilisant des sections différentes; s'il est éclairé par une radiation monochromatique, nous enregistrerons deux raies dont les axes sont décalés d'une certaine quantité &  $\mathbb{C}_{o}$  La figure (18) illustre un exemple enregistré avec la raie A de l'uranium en utilisant deux sources. Pendant le balayage lent dans le F.P. on passait d'une source à l'autre. Ce décalage des axes s'interprète aisément, en effet le F.P n'étant pas parfait, il existe donc une légère différence entre les épaisseurs moyennes de chaque section utilisée. Ce décalage présente de grands inconvénients, comme on le verra au paragraphe (10 - 4 - 2) quand les signaux sont intégrés. Le fait que les deux faisceaux utilisent des sections différentes entraîne donc, d'une part, un décalage des axes des raies enregistrées, et d'autre part, une différence entre les profils de ces raies.

Si nous prenons l'exemple des raies d'analyse A et a , la détermination de  $\rho$  nécessite la mesure de  $I_A$  et  $I_a$  , or ce que nous mesurons en réalité (fig. 19) c'est  $h_A$  et  $h_a$ 

$$h_A = I_A + \frac{I_a}{C_A} + \frac{I_a}{C_A}$$

$$h_a = I_a + \frac{I_A}{C_a} + \sum_{Pa} + i_a$$

 $I_A/C_a$  et  $I_a/C_A$  représentent la contribution réciproque des pieds (fig. 19)  $C_a$  et  $C_A$  étant le contraste de l'étalon ( $C_a$  n'est pas égal à  $C_A$ , car les largeurs des deux raies homologues A et a sont différentes).

PA et  $\sum_{PA}^{I}$  sont la contribution de l'intensité des raies parasites que nous supposerons nulles pour le moment.

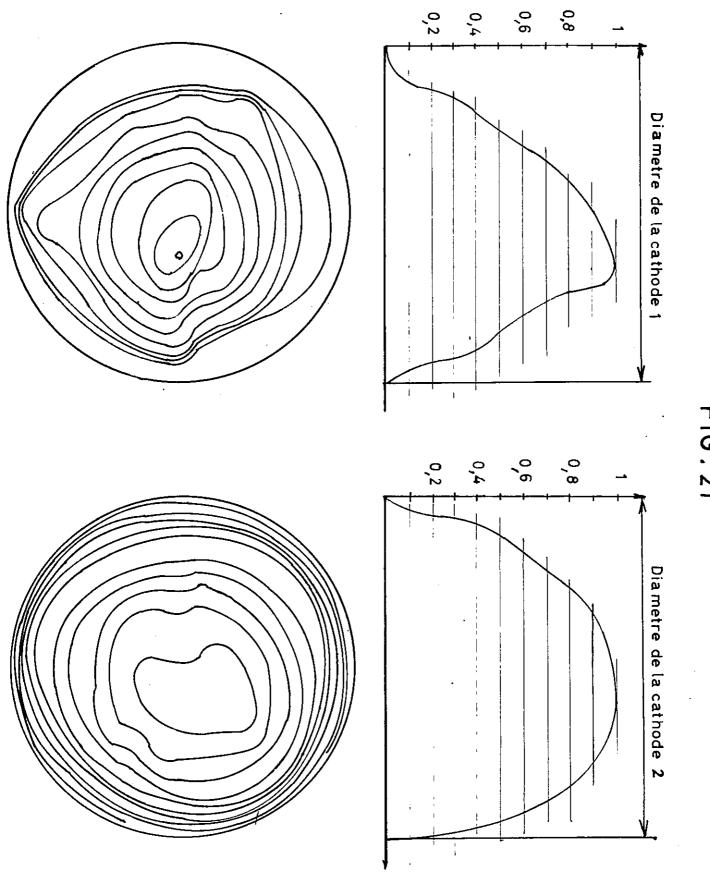
 $oldsymbol{i}_{A}$  et  $oldsymbol{i}_{a}$  : l'intensité du fond pour les fréquences  $oldsymbol{\mathcal{V}}_{A}$  et  $oldsymbol{\mathcal{V}}_{a}$ 

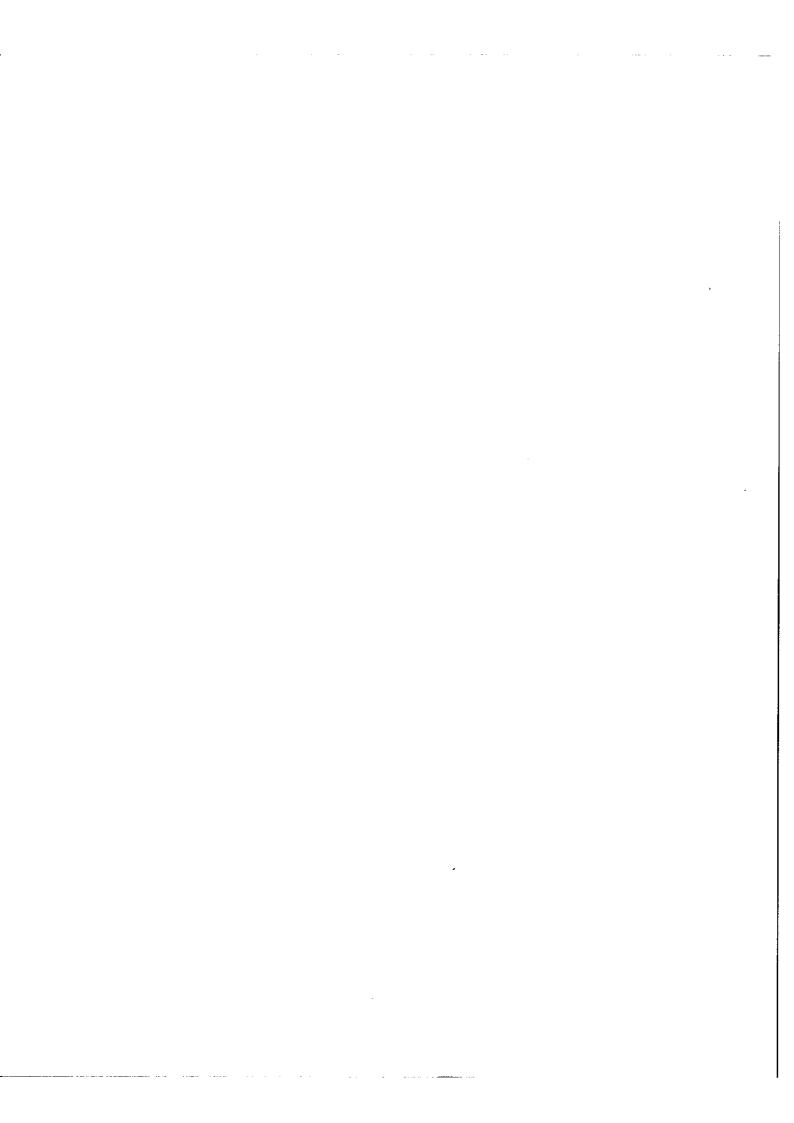
En négligeant les termes tels que :

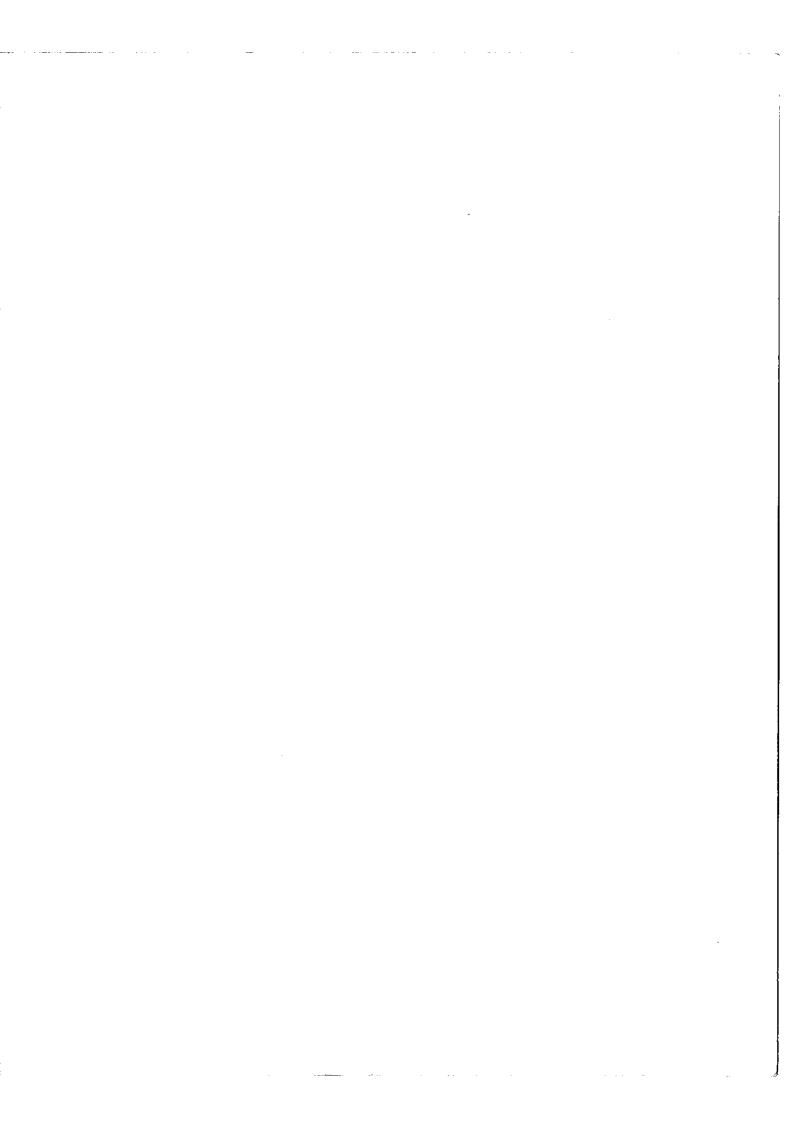
$$k = \frac{\frac{I_a}{I_A C_A}}{\frac{I_a}{I_A C_A}} + \frac{\frac{i_a}{I_A}}{\frac{I_{oA}}{I_{oa}}} + \frac{I_{oA}}{C_a} + \frac{I_{oA}}{I_{oa} I_A}$$
(5 - 6)

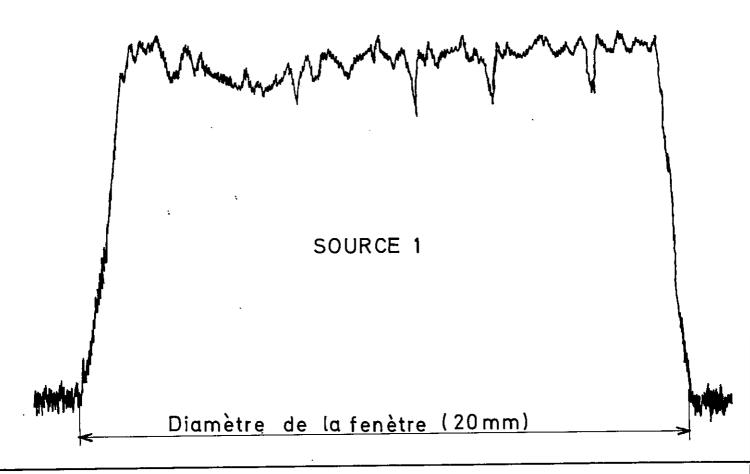
Une faible variation du terme  $\frac{1}{C_a}$  pour deux sections différentes du F.P entraîne une erreur systématique entre  $k_1$  et  $k_2$  d'autant plus importante que le rapport est grand, nous avons déjà signalé cette difficulté, et que la distance  $\sigma_A$  -  $\sigma_a$  est petite.

Pour assurer une substitution exacte des sources, nous avons placé en tête de l'appareil deux diaphragmes; conjugués respectivement des pupilles fondamentales de l'instrument : ces pupilles sont, avec le système de conjugaison adopté, d'une part, les fentes du monochromateur et le Fabry-Perot (plans conjugués  $\pi$ ) d'autre part, le réseau, les diaphragmes d'entrée et de sortie du F.P. et la cathode du photomultiplicateur (plans conjugués  $\pi$ ); on fait coincider rigoureusement l'image de la tâche cathodique avec le diaphragme  $\pi$  et l'image de la fenêtre de sortie avec le diaphragme  $\pi$  (fig. 20).









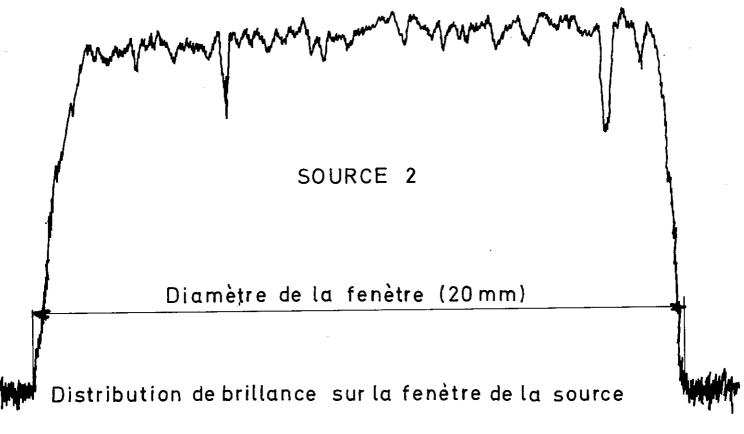


FIG. 22

#### CHAPITRE VI

# EFFETS DUS À LA COMBINAISON DES DEFAUTS DES SOURCES ET DES IMPERFECTIONS DE L'INSTRUMENT

#### 6 - 1. Effet de non uniformité de la luminance de deux sour ces

La luminance n'est pas uniforme dans la source, et de plus deux sources, apparemment identiques, ont en général des distributions de luminance différentes : ce résultat a pu être mis en évidence par une étude photoélectrique des sources point par point, faite en déplaçant un petit diaphragme le long d'une image de la tache cathodique. Un exemple de carte de luminance dressée avec deux lampes à cathodes creuses "identiques" est donné sur la figure 21.

Ces deux cartes ont été obtenues en échantillonnant le plan x y formé par l'image de la cathode. Le flux est mesuré en des points distants de d/12 sur l'axe des abcisses (d étant le diamètre de l'image de la cathode) et on détermine l'ordonnée des différentes isophotes; le passage d'une isophote à l'autre, correspond à une variation de flux de l'ordre de 10 %.

Conclusion: 2 sources en apparence identiques, ont donc en réalité une distribution non uniforme et cette distribution n'est pas la même pour les deux sources.

Une étude analogue a été menée pour l'homogénéité de la fenêtre de sortie des lampes, conjuguée des plans  $\pi$ , cette étude a été faite photographiquement et les courbes de luminance obtenues, sont représentées par la figure 22. Ces deux courbes donnent la variation du flux lumineux le long d'un diamètre de la fenêtre; les variations locales de luminance atteignent 5 % au maximum.

En outre, les transmissions, les réflexions et les réponses des différents organes de l'instrument ne sont pas uniformes : nous avons, en effet étudié la réponse de la photo-cathode d'un récepteur l P 21, cette réponse varie d'un point à un autre. Le réseau peut présenter des tâches, le F.P n'a pas une épaisseur constante. Deux sortes de conséquences résultent alors du produit de la non uniformité de la source et de l'instrument.

### 6 - 1 - 1. Sur la fonction d'appareil du monochromateur

Nous avons vu au paragraphe (5 - 1 - 1) qu'une bonne reproductibilité exigeait des largeurs de fentes inégales

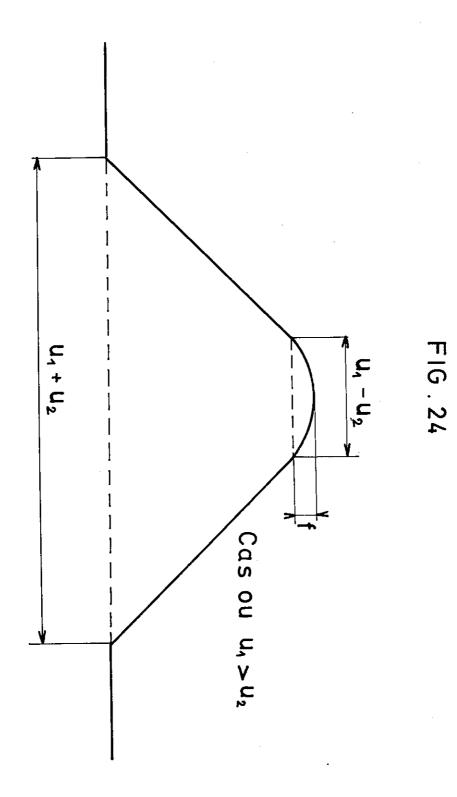
$$u_1 \neq u_2$$

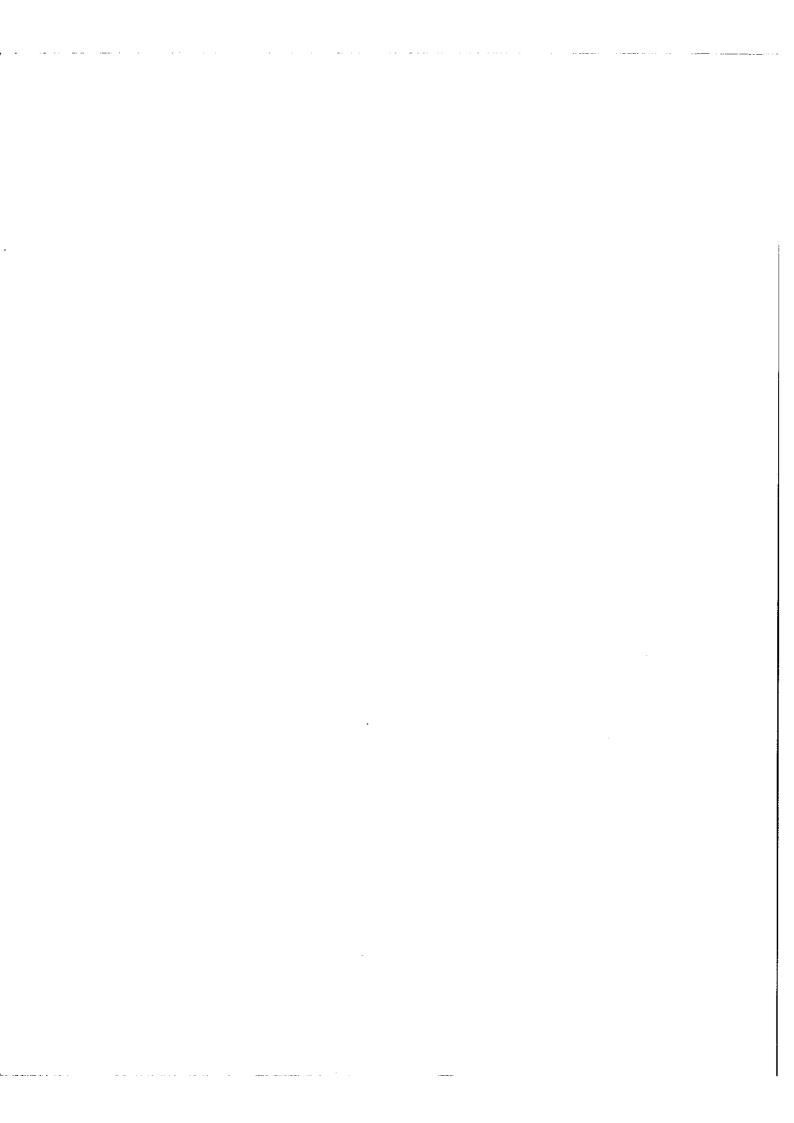
La source avec sa distribution de luminance non uniforme est conjuguée de la fente d'entrée (fig. 4).

Il en résulte que le produit de convolution de la fente d'entrée par la fente de sortie n'est plus un trapèze parfait : la petite base présente une courbure (fig. 24) et cette courbure n'est pas identique d'une cathode à l'autre. Soit f la flèche de cette courbure. Cherchons à rendre f minimum sachant que u doit être différent de u.

Deux cas peuvent être alors envisagés :

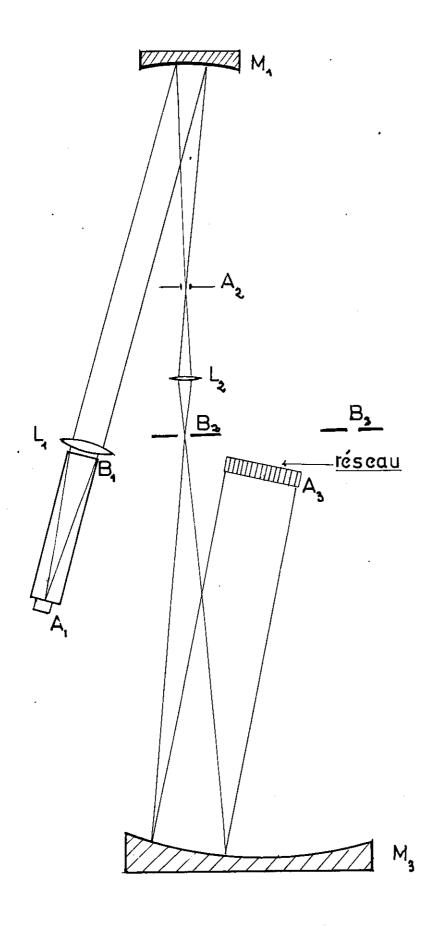
Pour une même différence absolue des largeurs  $u_1 - u_2$ , c'est le deuxième cas qui est le plus favorable, car d'une part, on utilise une partie plus homogène de la source, et d'autre part, la fente de sortie étant plus large que la fente d'entrée, on obtiendra un produit de convolution présentant un maximum de transmission constant dans un domaine égal à la différence des largeurs en supposant le F.P homogène.





.

FIG 20 Transformation de l'optique d'entrée



La courbure de la petite base du "trapèze" entraîne des différences entre les

$$S_{A_{\underline{I}}}$$
,  $S_{A_{\underline{2}}}$  et  $S_{A_{\underline{1}}}$ ,  $S_{A_{\underline{2}}}$ 

dont int roduit une erreur systématique entre  $k_1$  et  $k_2$ . Cette dernière erreur a été corrigée en conjugant les fentes de la fenêtre de sortie de la cathode car la luminance sur la fenêtre est plus homogène. Grāce à cette transformation obtenue en ajoutant à l'optique d'entrée, deux lentilles  $L_1$  et  $L_2$  (fig. 20) l'identité des trapèzes donnés par chacune des sources a été vérifié avec une très bonne précision supérieure à 1 % sur le canal d'analyse.

### 6 - 1 - 2. Sur la fonction d'appareil du F.P

Les diaphragmes d'entrée et de sortie du F.P sont alors conjugués des plans dont la distribution de luminance n'est pas constante, dans ce cas l'étalon F.P reçoit un faisceau de rayons avec une brillance B qui n'est pas indépendante de l'incidence (fig. 25). Le flux  $\varphi(\sigma)$  reçu par la cellule s'écrit : (17)

dence (fig. 25). Le flux 
$$\varphi(\sigma)$$
 reçu par la cellule s'écrit : (17)
$$\varphi(\sigma) = \frac{2\pi S}{\sigma} \int_{\sigma - \frac{\sigma}{2}}^{\sigma + \frac{\sigma}{2}} T(\sigma_i) F(\sigma - \sigma_i) S \sigma_i$$

$$= \frac{2\pi S}{\sigma} (T * F)$$
(6 (-1)

où S est la surface éclairée du F.P

T le produit de convolution de la fonction source par la fonction d'Airy.

F est la fonction qui représente le diaphragme; elle serait rectangulaire si la luminance sur le trou était partout constante. Dans le cas qui nous intéresse, elle possède un profil qui peut être schématisée par la figure 25 qui n'est autre chose que la distribution de luminance sur les plans  $\mathcal{K}'$ , limitée par les dimensions géométriques du trou.

Dans l'hypothèse d'une optique parfaite, la fonction d'appareil enregistrée étant le produit d'une fonction T symétrique par une fonction F dissymétrique, aura un profil dissymétrique du côté des faibles longueurs d'onde dans le cas de la figure 25 bis. (La dissymétrie est dite vers les faibles longueurs d'onde si :

$$Y(\lambda_s - d\lambda)$$
 est plus grand que  $Y(\lambda_s + d\lambda)$ ,  $\lambda_s$ 

étant la longueur d'onde relative au maximum de la fonction  $(\lambda)$ 

Cette dissymétrie devient négligeable quand le trou du F.P n'utilise qu'une faible surface centrale de la tache cathodique.

Le système formé des lentilles L<sub>1</sub> et L<sub>2</sub> doit donc réaliser une répartition de l'étendue du faisceau fournie par la lampe à cathode creuse de sorte que la plus petite surface centrale de la tache cathodique soit utilisée tout en conservant à l'image de la fenêtre de sortie un diamètre qui soit de l'ordre de cinq fois la largeur de la fente d'entrée.

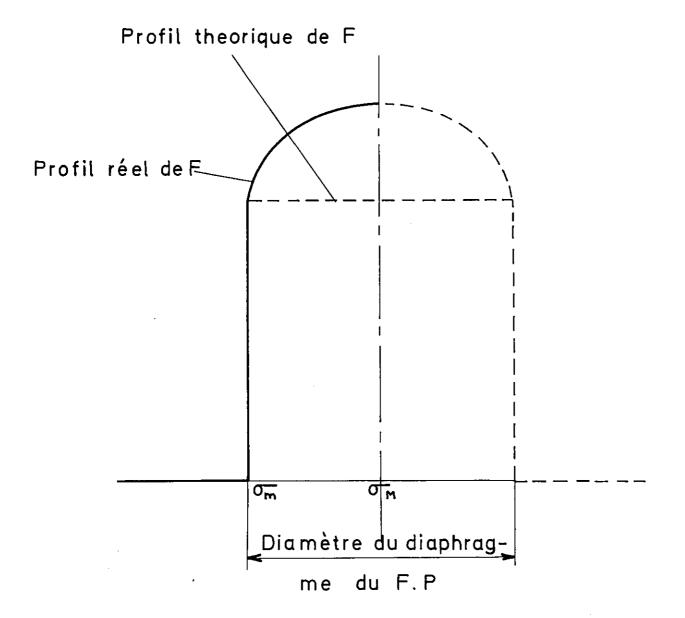
# 6 - 1 - 3. Profil enregistré

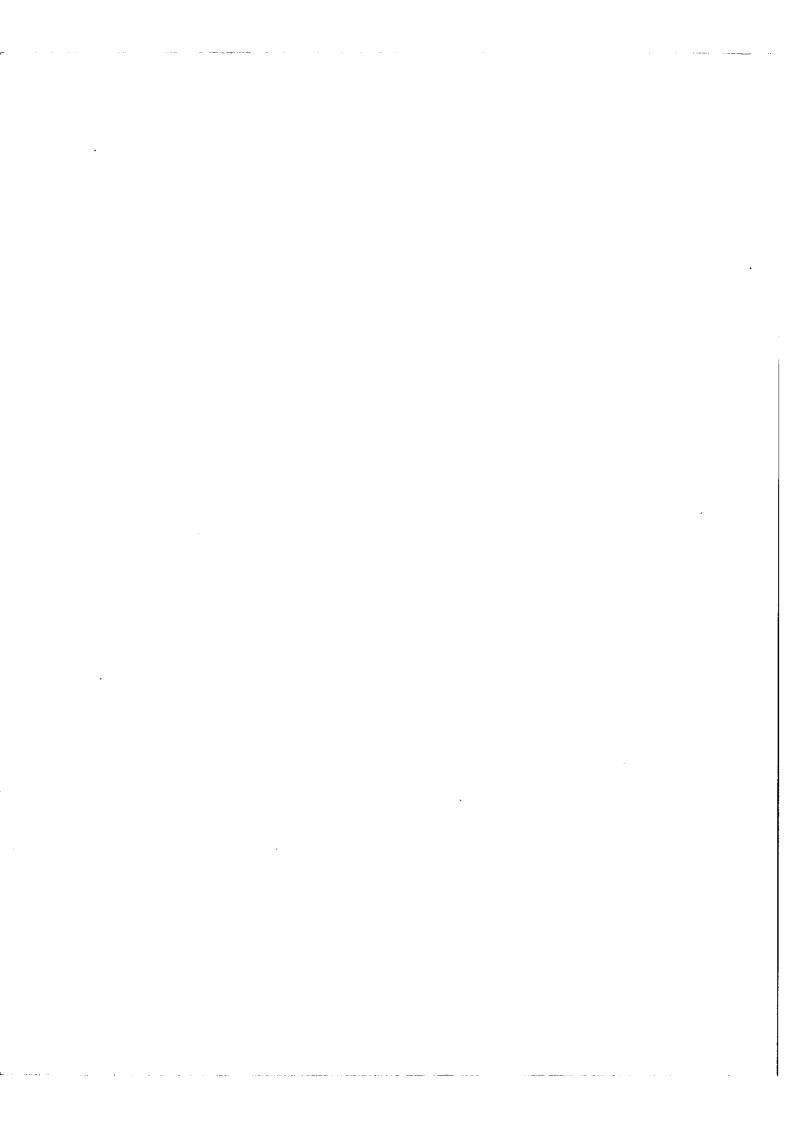
Supposons qu'on puisse réaliser une distribution de luminance absolument homogène aussi bien sur les pupilles  $\mathcal{H}$  que sur les pupilles  $\mathcal{H}$ . La photo-cathode du récepteur étant conjuguée du diaphragme du F.P l'expression de la fonction enregistrée devient :

$$Y(\sigma) = \frac{2 \operatorname{Re} S}{\sigma} \qquad (T \bigstar F')$$
 (6 - 2)

avec  $F' = F \times P$ 

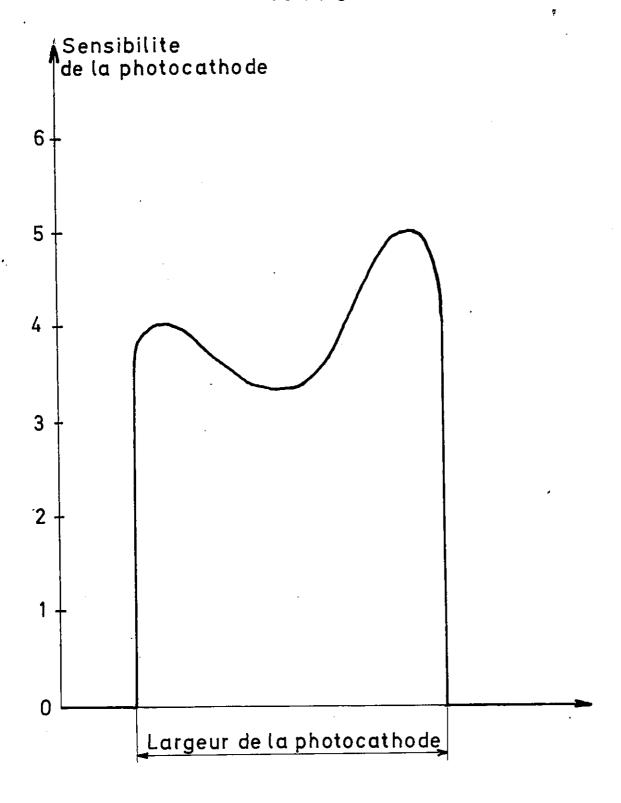
FIG. 25





. 

FIG. 26



F: fonction rectangulaire du trou de sortie.

P: fonction représentant la sensibilité de la cellule.

La fonction P a été déterminée expérimentalement en éclairant la photo-cathode par un pinceau de lumière de faible section et de brillance constante. Le déplacement de ce pinceau de lumière nous a permis de tracer une courbe de réponse (fig. 26) à flux constant. Cet effet peut se traduire par une dissymétrie de la fonction enregistrée mais n'entraîne pas d'erreur sur k dans le cas particulier d'une distribution de luminance homogène sur  $\pi$  et  $\pi$ 

Conclusion: Dans le cas réel avec deux sources dont la distribution de luminance est différente, les réponses du récepteur seront différentes même si les faisceaux sont bien confondus au sens géométrique. Cette difficulté sera examinée plus en détail dans la troisième partie.

### 6 - 2. Effets dus aux largeurs des raies

Si les largeurs des raies émises par les deux sources ne sont pas égales, cela peut entraîner des écarts entre les valeurs de  $\ k_1$  et  $\ k_2$ . Deux cas se présentent selon que les composantes dont on mesure l'intensité ont même profil ou non.

a)- si elles ont le même profil (Gaussien par exemple), une légère différence entre les largeurs des raies émises par les deux sources ne devrait pas affecter l'égalité des k (seule la contribution différente des pieds pourrait différer d'une source à l'autre et entraînerait une correction qui serait du 2ème ordre, car les pieds de la fonction d'Airy sont plus importants que ceux de la fonction Gauss.)

b)- Cas réel : les deux composantes d'analyse A et a. ont des profils différents et des largeurs d'une source à l'autre qui peuvent être différentes. Dans ce cas, la grandeur :

$$r = k_1 / k_2$$

peut prendre une valeur différente de 1.

Plus précisément, soit Y ( $\sigma$ ) la fonction enregistrée de largeur y. Cette fonction est le produit de convolution de la fonction source B ( $\sigma$ ) (largeur b) par la fonction instrumentale W ( $\sigma$ ) de largeur w

$$Y (\sigma) = B (\sigma) \not \gg W (\sigma)$$

Le coefficient de transmission  $\tau$  dépend du rapport de  $\frac{b}{w}$ , on enregistre pour la première source :

pour la deuxième source :

$$\begin{cases} Y_{A_2} = B_{A_2} \times W \\ Y_{a_2} = B_{a_2} \times W \end{cases}$$

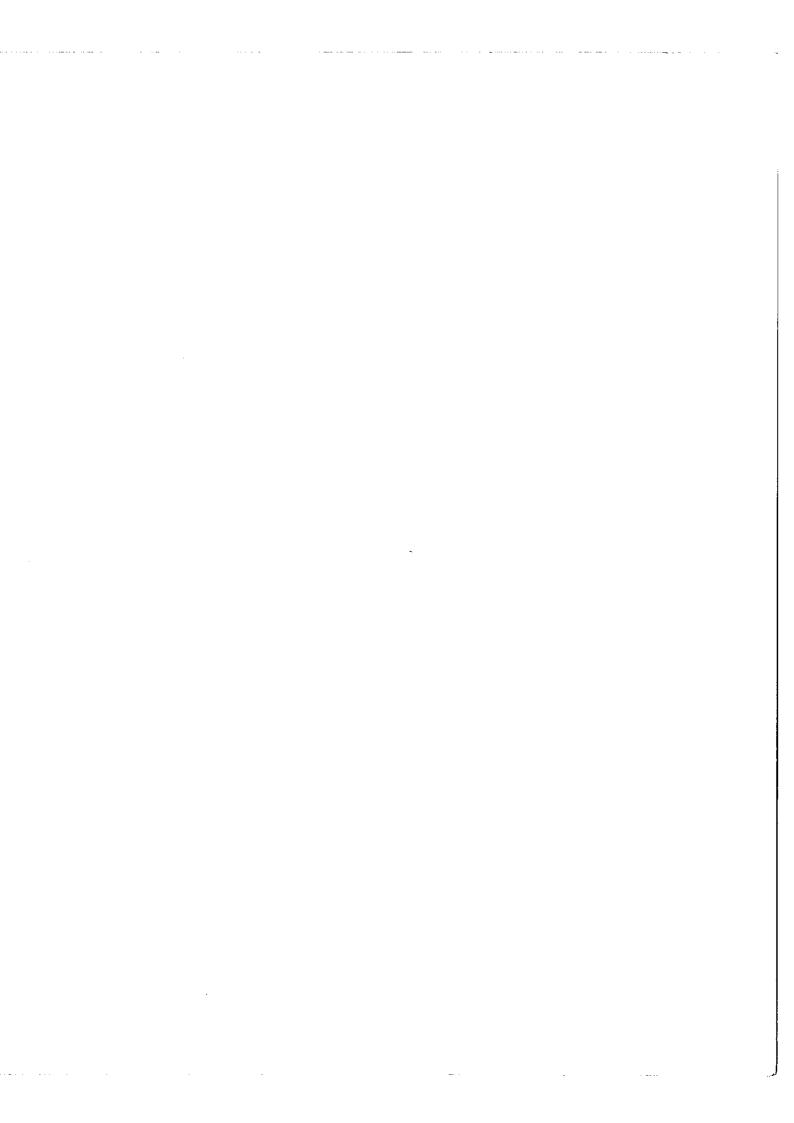
Seules les grandeurs :

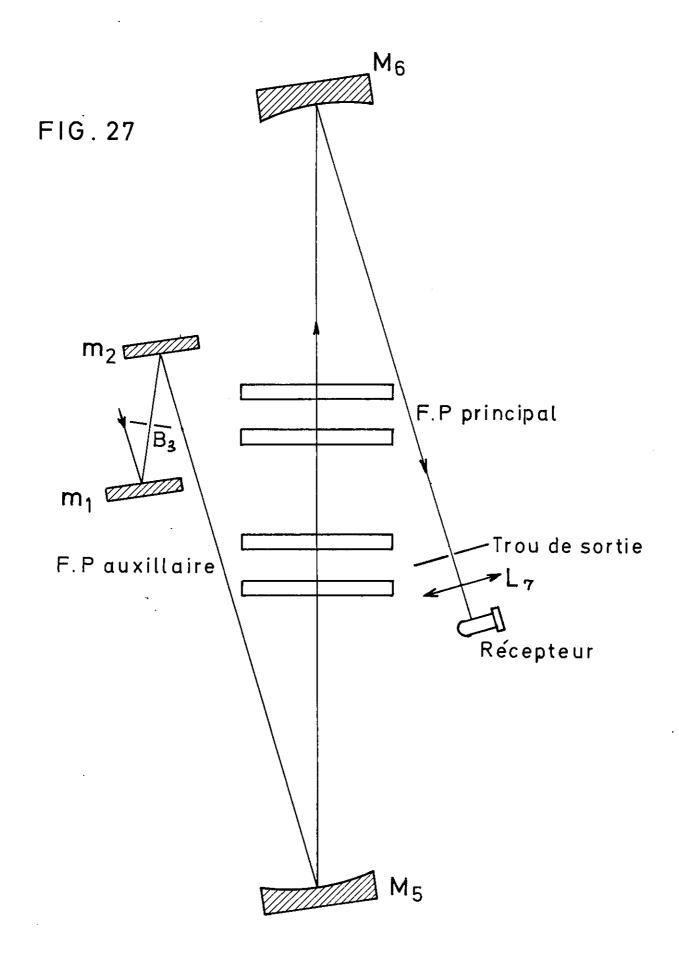
$$\mathbf{Y}_{\mathbf{A}_{1}}$$
  $\mathbf{Y}_{\mathbf{A}_{2}}$   $\mathbf{Y}_{\mathbf{a}_{1}}$  et  $\mathbf{Y}_{\mathbf{a}_{2}}$ 

sont accessibles à la mesure directe. Or la connaissance des coefficients de transmission moyens

$$\overline{\overline{\tau}}_{A_{1}}$$
  $\overline{\overline{\tau}}_{A_{2}}$   $\overline{\overline{\tau}}_{a_{1}}$  et  $\overline{\overline{\tau}}_{a_{2}}$ 

exige la détermination des :





### 6 - 2 - 1. Détermination des largeurs de raie

D'après la relation (6 - 3) nous voyons que B ( $\sigma$ ) se confond avec Y ( $\sigma$ ) quand le rapport  $\frac{b}{w}$  tend vers l'infini. En fait, il suffit que le rapport  $\frac{b}{w}$  soit égal à 10 pour que la différence des largeurs y et b soit négligeable; pour parvenir à ce résultat, nous avons utilisé un F.P de 45 mm d'épaisseur, ceci correspond à un pouvoir de résolution instrumental de l'ordre de 4 millions.

Entre les largeurs y et b nous avons la relation :

La fonction instrumentale de largeur wp pourraît être négligée si l'on veut comparer les largeurs de deux raies, mais si nous cherchons une mesure exacte de cette largeur, nous devons tenir compte de wp. Il est alors nécessaire de mesurer expérimentalement wp. Cette mesure a été effectuée par deux méthodes différentes mais presque équivalente dont le principe consiste à découper dans une raie donnée une raie artificielle de faible largeur et de mesurer la finesse de la raie enregistrée.

a)- Première méthode: on utilise un F.P plans auxiliaires de même épaisseur que le F.P principal, c'est-à-dire 45 mm. Les deux F.P sont en série (fig. 27), le premier F.P auxiliaire, garde une épaisseur optique constante et son rôle consiste à découper dans une raie de largeur inférieure à 55 mk, fournie par le monochromateur la raie A par exemple, une bande passante très fine, de largeur b' qui sera considérée comme une raie "artificielle". C'est cette dernière que le F.P principal analysera. La fonction Y' enregistrée sera alors:

$$B_{i} \equiv M_{x}$$

W étant la fonction d'Airy du F.P auxiliaire, B' la fonction représentant la raie artificielle

or

$$\mathbf{d'o\hat{u}} \qquad \qquad \mathbf{Y'} = \qquad \mathbf{W}_{\mathbf{x}} \qquad \qquad \mathbf{W}_{\mathbf{p}}$$

On peut supposer moyennant certaines précautions que  $w_x$  et  $w_p$  sont presque identiques, ce qui nous permet de déduire  $w_p$  à partir de la mesure de y'. Si y' représente la largeur de la fonction Y', on a :

$$w_p = \frac{y'}{2}$$

or: y' mesuré 🕿 10 mk

d'où:  $w_p \simeq 5 \text{ mk}$ 

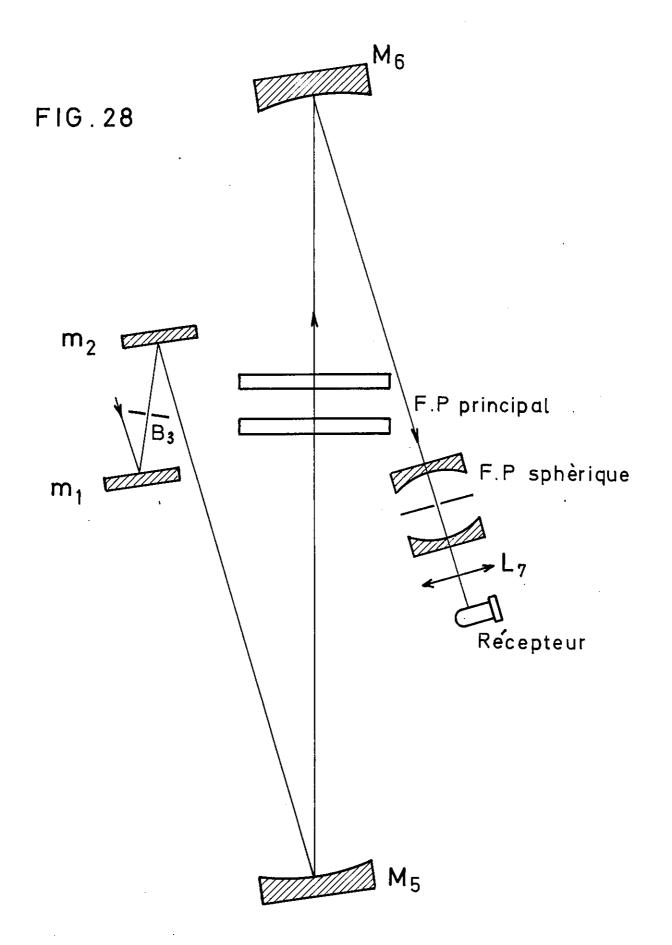
### b)- Deuxième méthode

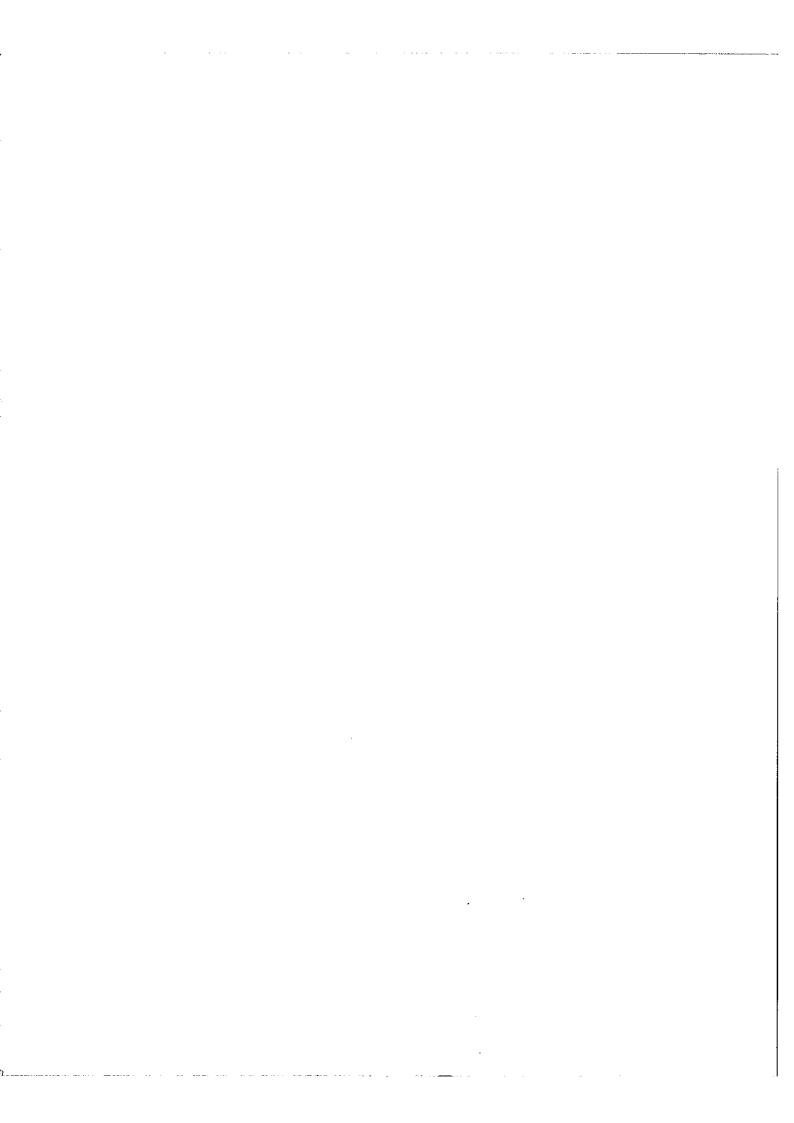
Elle consiste à utiliser un F.P sphérique (F.P.S.) (19) en série avec le F.P plan principal, le rôle qui incomberait à ce F.P.S. étant le même que celui du F.P plan auxiliaire de la méthode précédente.

Etant donné que la surface utilisée sur ce F.P.S. doit être réduite, nous l'avons placé (fig. 28) sur la partie où le faisceau du spectromètre devient le plus étroit, c'est-à-dire au niveau de diaphragme de sortie du F.P plan. Soit Y'' la fonction enregistrée, S le profil d'Airy découpé par le F.P sphérique et s la largeur de ce profil:

Cette relation devient en passant aux largeurs, des fonctions :

s est difficilement calculable; néanmoins, nous avons pu obtenir une valeur approximative de s en utilisant la raie 6328 Å fournie par un laser à gaz. C'est ainsi
que nous avons trouvé pour s une largeur égale à 2 mk. A partir des valeurs
de s = 2 mk et une largeur mesurée pour y'' = 7 mk, on en déduit pour w
p
une largeur de 5 mk qui confirme bien la valeur trouvée par la première méthode.





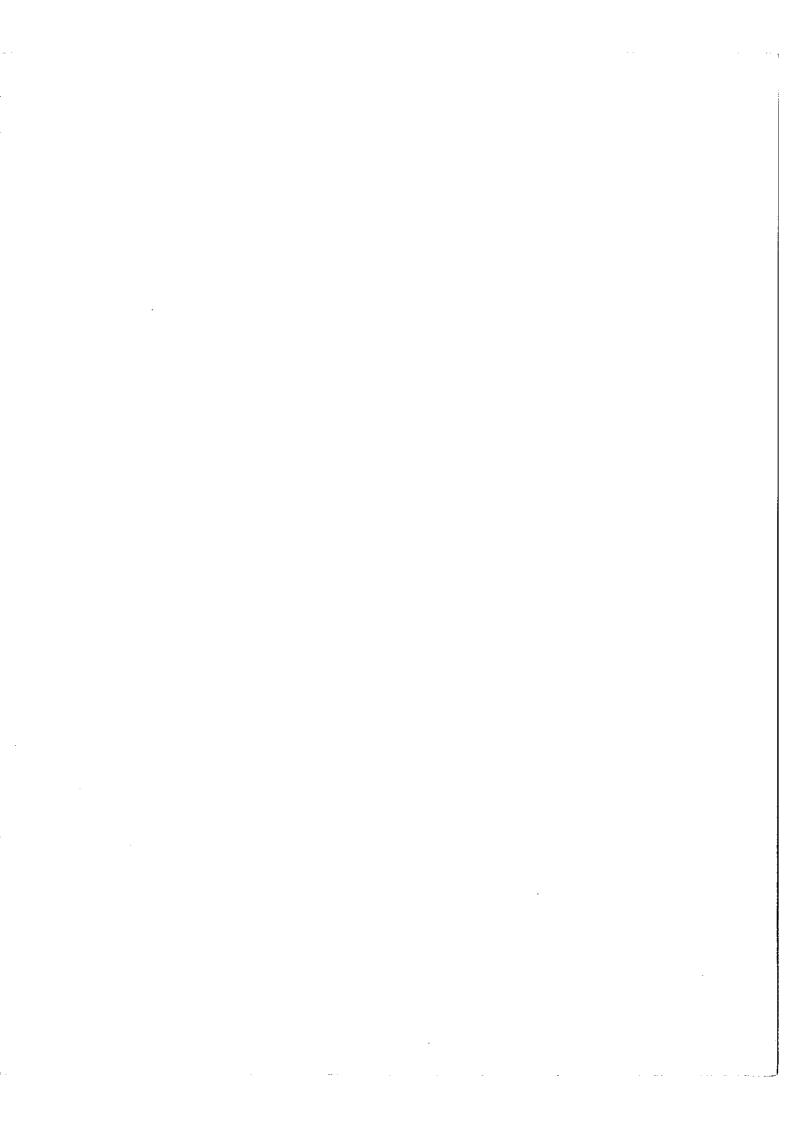
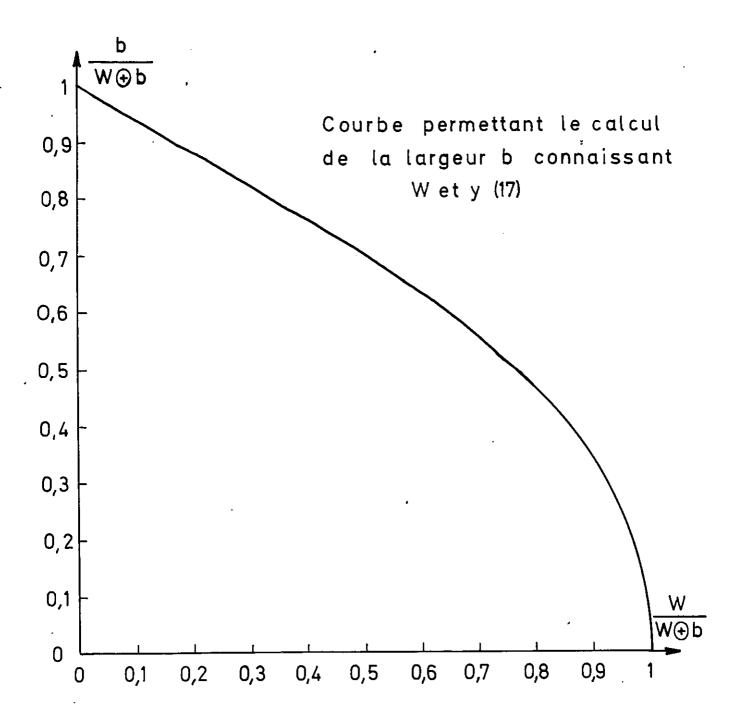


FIG. 29



Cette valeur de la largeur de la fonction instrumentale w = 5 mk est assez importante pour ne pas être négligée quand il s'agit de déterminer des largeurs de raie de l'ordre de 15 mk.

Connaissant w , il est aisé alors de remonter au calcul de b , b , b a l et b à partir de la courbe (fig. 29) donnée par R. CHABBAL (17).

Mesures: Plusieurs mesures ont été effectuées sur la largeur de la raie A émise par deux sources supposées "identiques" alimentées par le même courant et sous la même pression de gaz porteur. Les résultats obtenus montrent que ces largeurs ne sont pas identiques et sont même parfois très différentes. Ces différences peuvent dépasser 10 % (Tableau VII...VIII).

Etudions l'effet produit par une telle différence entre les largeurs de raies sur le coefficient de transmission moyen  $\overline{C}$  en supposant que  $b_{A_2} > b_{A_1}$ 

Nous aurons:

$$b_{A_2} = b_{A_1} + \delta b_1$$

$$\frac{\mathbf{b}_{\mathbf{A}_2}}{\mathbf{w}_{\mathbf{p}}} = \frac{\mathbf{b}_{\mathbf{A}_1}}{\mathbf{w}_{\mathbf{p}}} + \frac{\mathbf{\delta}_{\mathbf{b}_1}}{\mathbf{w}_{\mathbf{p}}}$$

ce qui entraîne :  $\tau_{A_2} < \tau_{A_1}$ 

Nous retrouvons une inégalité semblable entre  $\tau_{a_2}$  et  $\tau_{a_1}$   $\tau_{a_2} < \tau_{a_1}$ Mais:  $\tau_{A_1} \neq \tau_{A_2}$ 

ce qui signifie que :  $k_1 \neq k_2$  ou que  $r \neq 1$ 

## 6 - 2 - 2. Influence des largeurs des raies sur le rapport r

En nous plaçant dans les conditions réelles d'enregistrement, c'est-à-dire, avec un F.P d'i.s.l. 1360 mk, nous avons cherché à déterminer quantitativement l'erreur due à une différence entre les largeurs d'une même raie issue de deux sources. Mais au préalable, il faut mesurer l'élargissement de la composante a par la structure hyperfine :

Le tableau V résume les résultats obtenus.

TABLEAU V

Intensité de courant	y <sub>A</sub> mesuré	${ t b}_{ ext{A}}$ calculé	y <sub>a</sub> mesuré	b <sub>a</sub> calculé
100	57,5	30	85	59,8
60	54	26,1	81,7	56
40	52	23,5	79	53

L'élargissement dû à la structure hyperfine est donc de l'ordre de 30 mk. Nous supposerons pour la suite, que les 21 composantes constituant la structure de la raie a conservent à cette raie un profil proche du profil Gaussien.

Dans ce cas, nous pourrons étudier l'écart  $k_1 - k_2$  sur un exemple numérique.

Exemple numérique: Supposons que les largeurs de A<sub>1</sub> et a<sub>1</sub> soient respectivement égales à 30 et 60 mk pour la première source, que A<sub>2</sub> et a<sub>2</sub> aient des largeurs égales à 33 et 63 mk avec la deuxième source.

- Soit : w = 42,6 mk la largeur de la fonction d'appareil mesurée du F.P d'i.s.l. 1360 mk.

Source n° 1 
$$\begin{cases} \frac{b_{A_1}}{w} = 0,704 & T_{A_1} = 0,812 \\ \frac{b_{a_1}}{w} = 1,408 & T_{a_1} = 0,592 \end{cases}$$

$$\begin{cases} \frac{b_{A_2}}{w} = 0,775 & T_{A_2} = 0,788 \\ \frac{b_{a_2}}{w} = 1,479 & T_{a_2} = 0,577 \end{cases}$$
Source n° 2 
$$\begin{cases} \frac{b_{A_2}}{w} = 1,479 & T_{a_2} = 0,577 \end{cases}$$

Dans ce cas particulier l'écart entre  $k_1$  et  $k_2$  dû à une variation de la largeur de 10 % d'une source à l'autre, entraîne sur le rapport  $r = \frac{k_1}{k_2}$  une variation de

l'ordre de 1 %. Cette variation est trop grande pour être acceptable; c'est pourquoi nous avons été amenés à étudier cette question sous deux aspects. En premier lieu on cherchera à évaluer l'écart de  $k_1 \neq k_2$  par rapport à l'unité en fonction de la différence des largeurs entre  $b_A$  et  $b_A$  cecè pour déterminer la différence maximum entre ces largeurs qu'on puisse tolérer quand on veut atteindre une précision donnée. En second lieu, on entreprendra une étude systématique de tous les facteurs qui

seraient susceptibles d'introduire des écarts entre les largeurs d'une même raie produite par deux décharges différentes, ainsi que l'évaluation de l'importance de chaque facteur.

La courbe représentée par la figure 30 montre que l'écart  $k_2 - k_1$  non seulement croît avec la différence des largeurs entre  $b_A$  et  $b_A$  mais aussi avec le rapport  $\frac{b_A}{2}$  ve qui était à prévoir. Nous avons donc avantage à travailler à basse résolution. Cependant, le choix de la résolution n'est pas arbitraire comme il sera précisé au paragraphe (% - 5).

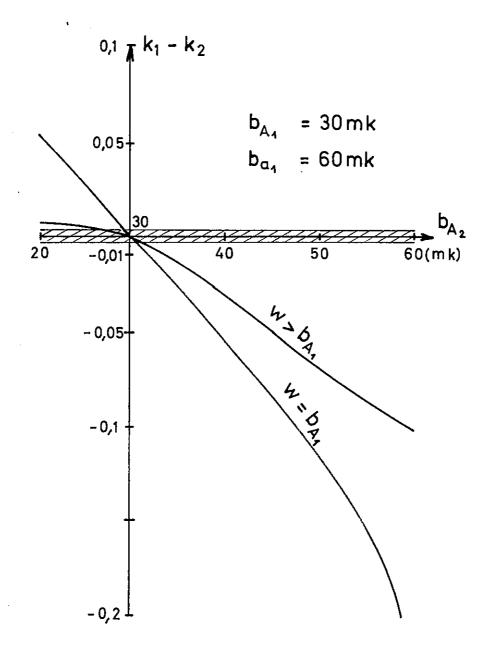
### 6 - 2 - 3. Facteurs influençant la largeur des raies émises par umcathode creuse

Nous avons choisi pour cette étude la raie 5027 A de l'uranium et les facteurs que nous étudierons successivement sont :

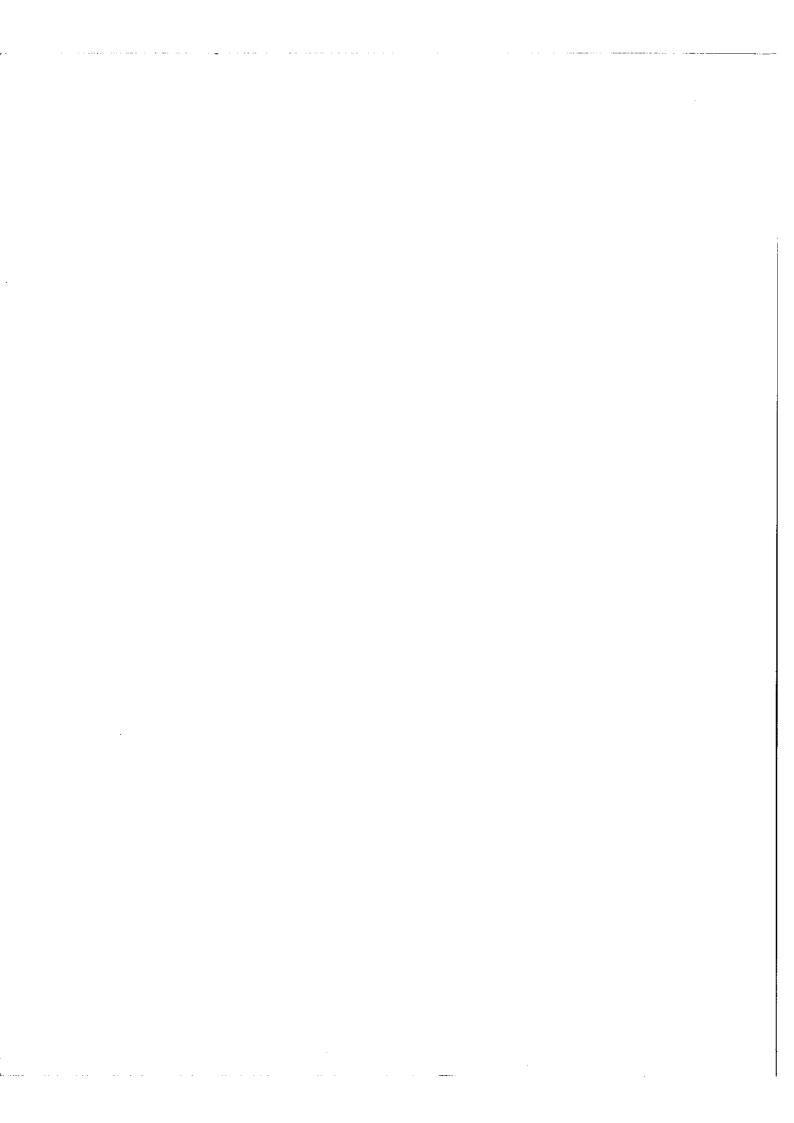
- a) intensité du courant de la décharge,
- b)- pression du gaz porteur
- c)- nature du bain de refroidissement
- d) nature gaz porteurs
- e)- nature du matériau constituant la cathode
- f) géométrie de la cathode

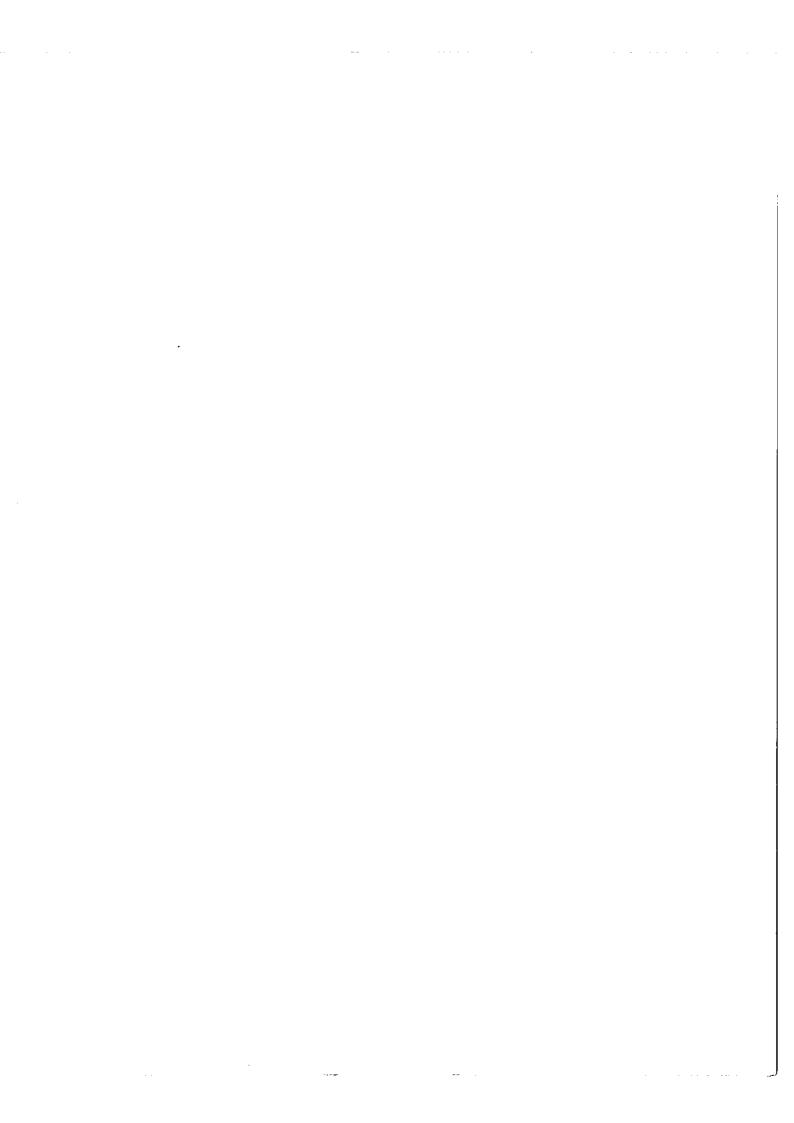
a)- Une augmentation de l'intensité du courant entraîne une plus grande densité des différentes particules intervenant dans la décharge (ions positifs, électrons, atomes neutres, etc...) tout en augmentant leur vitesse, c'est-à-dire, l'agitation thermique ce qui se traduira par une élévation de la température et un accroissement de la largeur des raies. Sur la figure 31 nous avons reporté les largeurs calculées à partir des largeurs mesurées de la raie A lorsqu'on fait varier l'intensité du courant tout en maintenant la pression du gaz de remplissage constante.

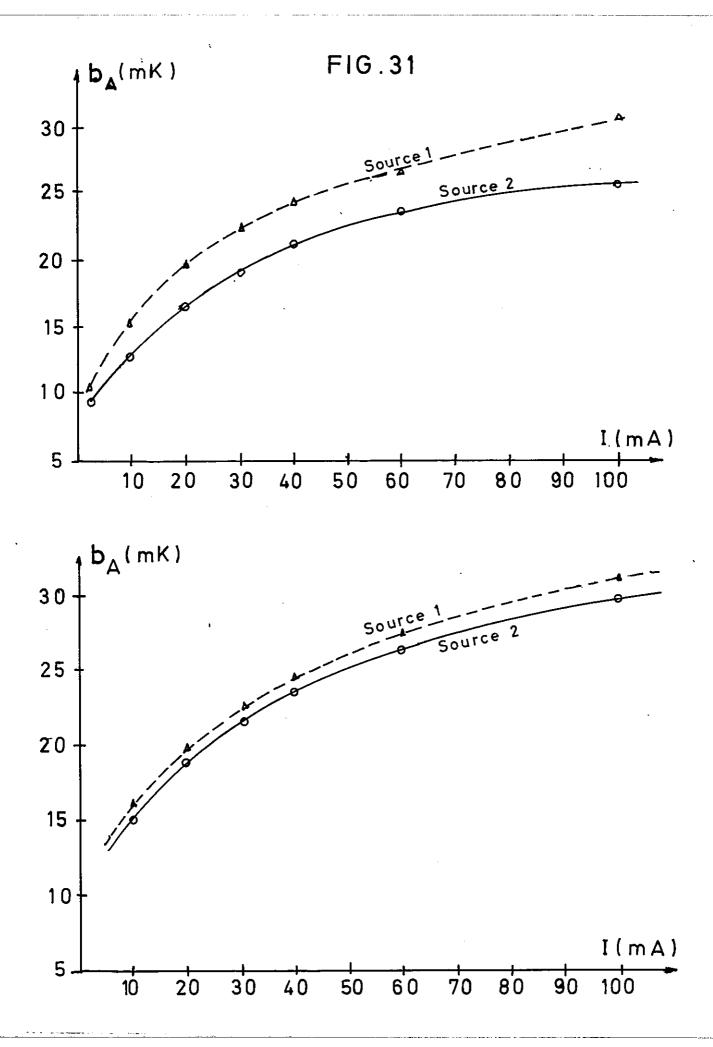
FIG. 30



COURBE DE VARIATION DE L'ECART  $k_1 - k_2$ 







Nous remarquons que les deux courbes ne coïncident pas partout, en particulier pour les courants élevés. Le cas représenté sur la figure 31 est celui pour lequel l'écart trouvé entre les largeurs des deux sources est le plus important. Il faut ajouter que les deux lampes à cathode creuse avaient des luminances qui étaient dans le rapport 2. La plus brillante étant celle qui possède les raies les plus larges.

La figure 31 bis, représente les mêmes sources fonctionnant dans des conditions différentes des précédentes et avec des brillances comparables, l'écart est nettement plus faible.

b)- Variation de la largeur bA avec la pression du gaz porteur: la variation de la largeur bA en fonction de la pression, est représentée par la figure 32. On remarque sur la courbe, un palier, c'est-à-dire, une largeur constante lorsque la pression varie entre 1 et 2 mm de Hg. Cette propriété s'interprête de la façon suivante: en effet, si l'on trace la caractéristique d'une lampe à cathode creuse V = f(p) à intensité constante (V: différence de potentiel aux bornes de la lampe et p pression de néon) on obtient la courbe représentée par la figure 32bis, où l'on retrouve également un palier pour le même intervalle de pression. Il en résulte que lorsque la puissance dissipée dans une cathode creuse est constante, la largeur de raies reste également constante pourvu que l'on se trouve dans un certain domaine de pression correspondant au palier de la caractéristique. Ceci montre, d'une part, que dans ce domaine de pression, la largeur des raies est indépendante de la pression et, d'autre part, que pour déterminer ce domaine de pression, il suffit d'établir la caractéristique de la lampe, ce qui est beaucoup plus aisé qu'une mesure de largeurs de raie.

Mais la pression du gaz porteur et l'intensité du courant ne sont pas des paramètres indépendants pour le bon fonctionnement d'une lampe à cathode creuse, comme on le verra dans le paragraphe (6 - 2 - 3d).

#### c)- De la nature du bain de refroidissement

Si la lampe à cathode creuse de Schüler est très appréciée par les spectroscopistes et se trouve couramment utilisée, c'est parce qu'elle permet d'obtenir des raies fines quand elle est refroidie à l'azote liquide; or l'expérience a montré (fig. 33) qu'on a intérêt à refroidir à l'azote liquide uniquement pour des courants inférieurs à 40 mA. La figure 33 nous donne les courbes correspondant aux refroidissements par eau et par azote liquide. Pour établir ces courbes, nous avons fait varier l'intensité du courant et avons ajusté la pression de néon de telle sorte que chaque mesure corresponde à un maximum de brillance de la cathode.

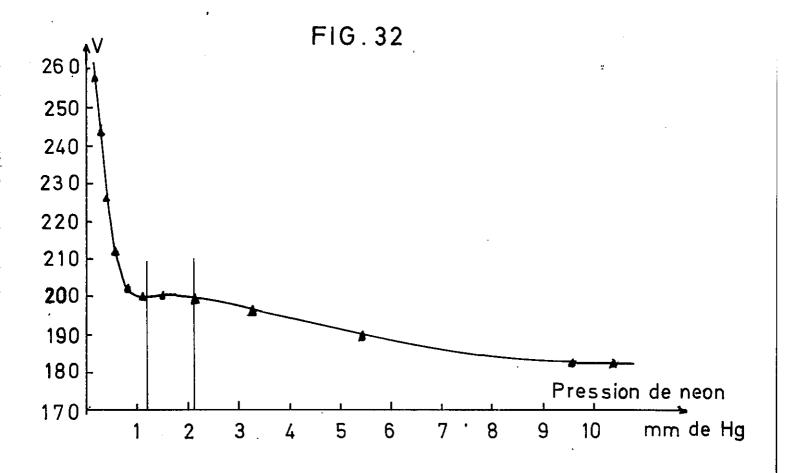
### d)- De la nature du gaz porteur

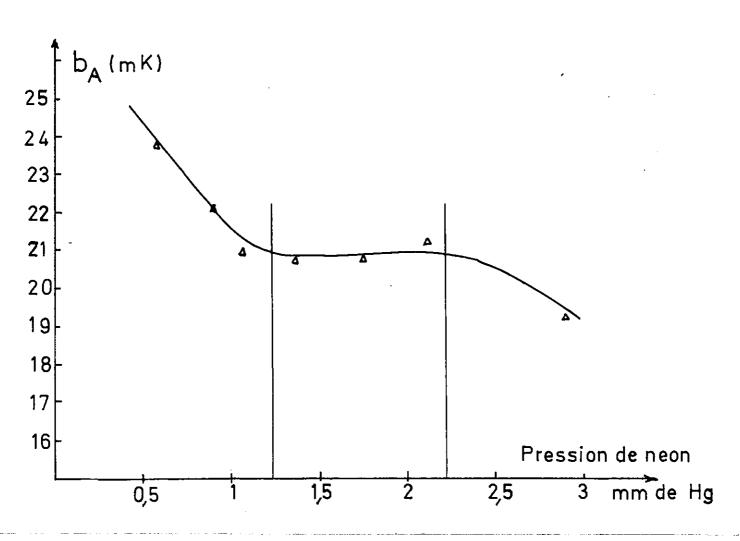
Le maximum de brillance d'une source se produit à une pression optimum p, différente pour chaque intensité de courant donnée I. Cette pression p, varie selon les gaz rares utilisés dans la décharge; généralement, elle est d'autant plus élevée que le gaz est plus léger et que l'intensité du courant est plus importante.

Nous avons utilisé l'Argon et le Néon et les résultats obtenus sur les largeurs de la raie 5027 À de l'uranium avec ces deux gaz, sont représentés sur la fig. 33bis, les deux courbes se confondent, ce qui nous permet de conclure que la largeur d'une raie métallique est indépendante du gaz employé (Néon ou Argon).

#### e) - Du matériau constituant la cathode

Nous avons utilisé deux corps de lampes de géométrie identique, la première comportait une cathode en uranium naturel, usinée dans la masse, la deuxième avait une cathode en cuivre au fond de laquelle nous avons serti une pastille en uranium naturel dont le diamètre était de 1/100 de mm plus grand que celui du trou cathodique et d'épaisseur 1 mm.







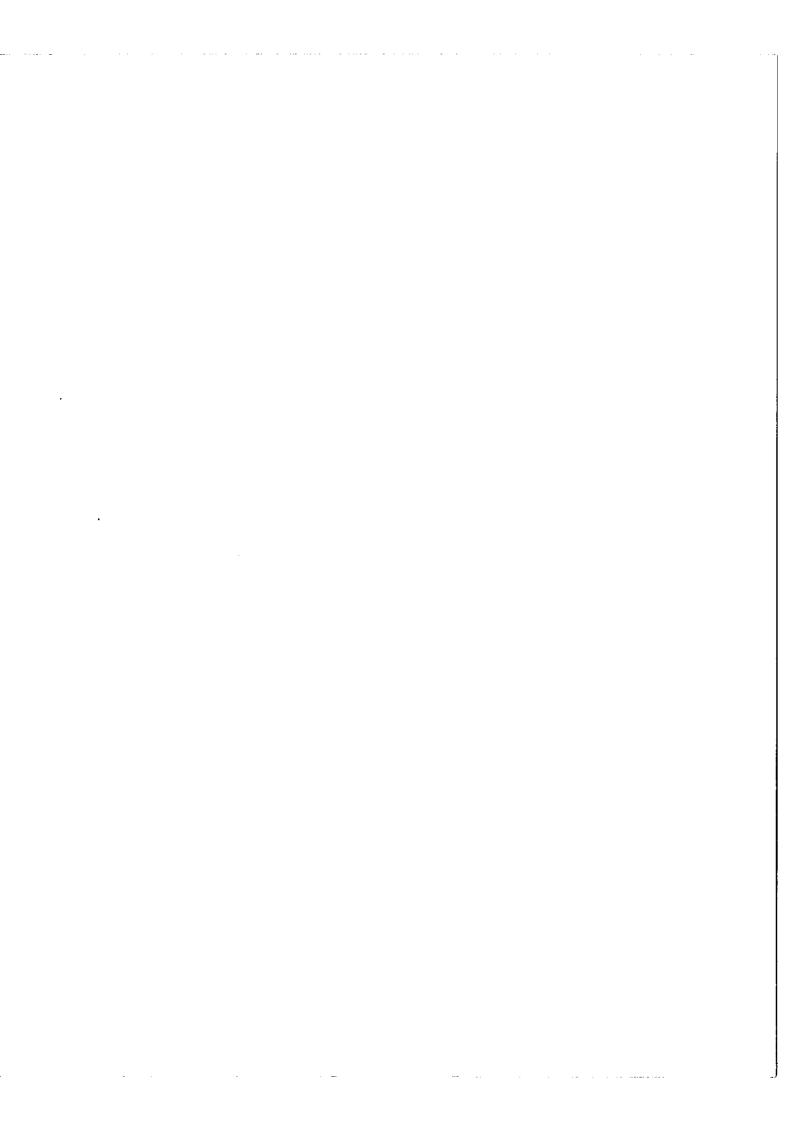
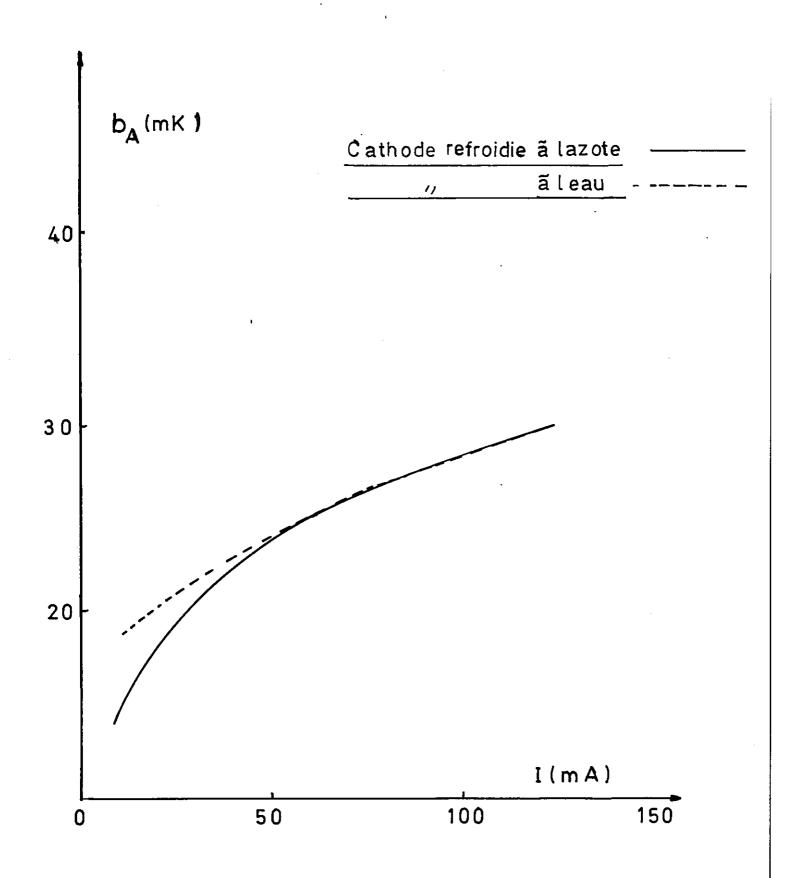
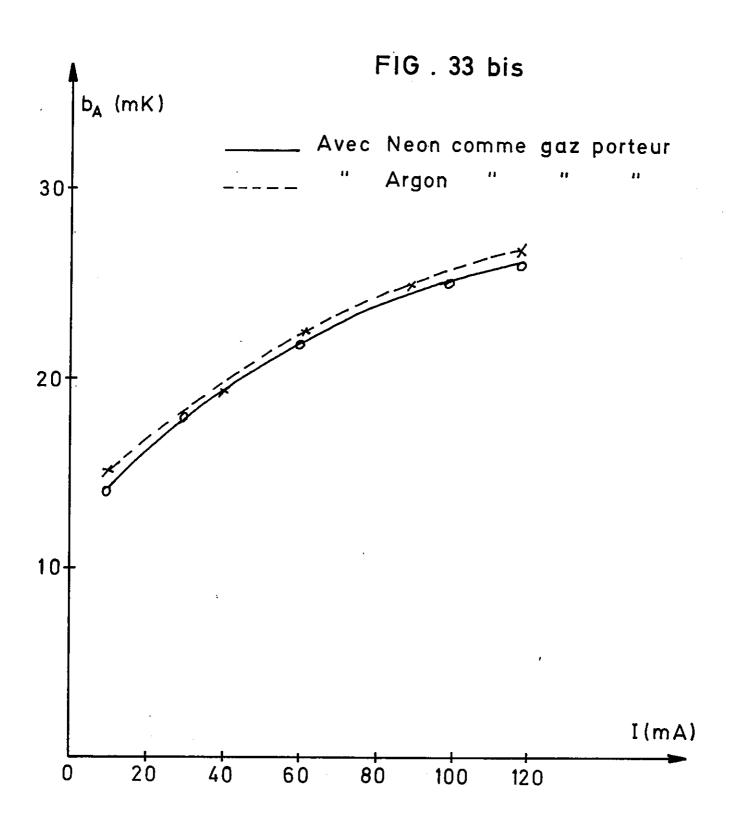


FIG. 33





.

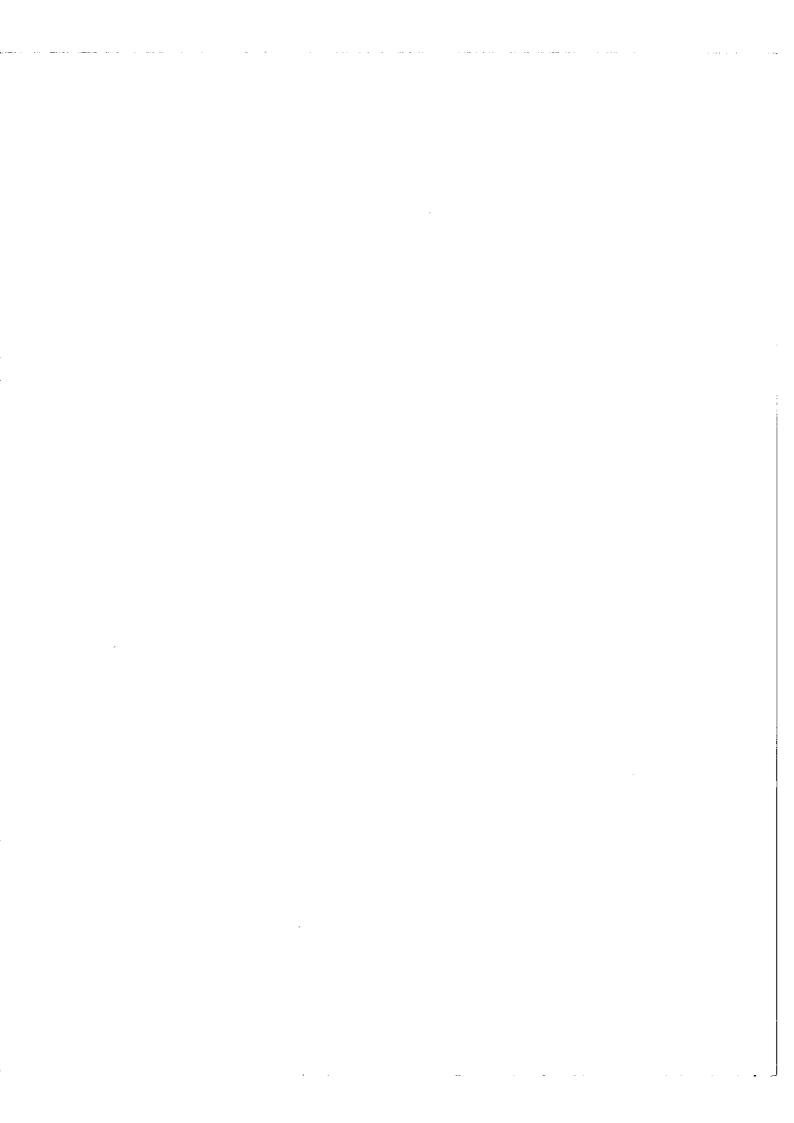
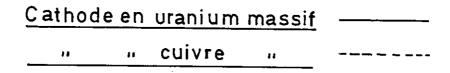
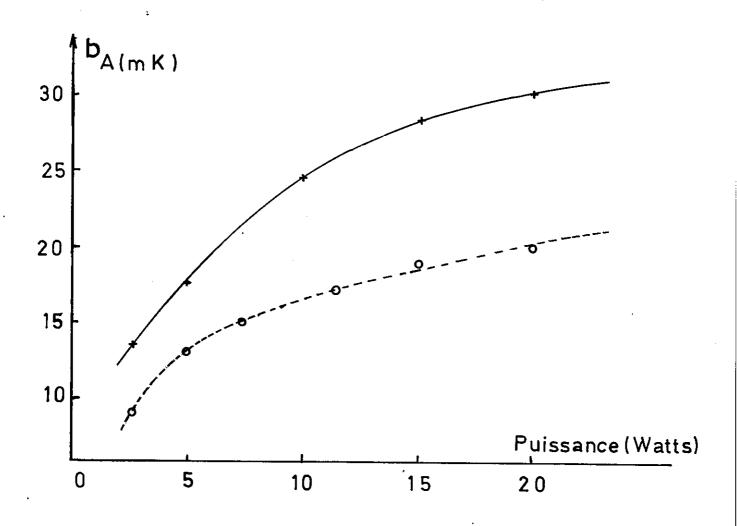


FIG.34





Les deux sources ainsi obtenues ont un rapport de brillance à courant égal qui est de l'ordre de 3 à 4 en faveur de la cathode en Uranium massif. Leurs caractéristiques sont naturellement très différentes ainsi que leurs pressions optimales de fonctionnement. La pression p. pour la cathode en Cu est de 1 mm de Hg avec une intensité de courant de 60 mA, alors que celle de la cathode en uranium massif est de 1,8 mm de Hg.

A priori, les largeurs de la raie 5027 A obtenues à partir de la cathode en cuivre seront inférieures à celles enregistrées avec la cathode en uranium, ceci à cause de la grande conductibilité du cuivre. Ce résultat est bien confirmé par l'expérience (fig. 34). Même en comparant les deux sources, non pas avec des courants égaux ou des puissances dissipées équivalentes, mais pour des brillances égales nous retrouvons des raies plus fines avec la lampe en cuivre. Pour les courants élevés (80 mA) les largeurs de raies sont encore très différentes. Cependant, il reste difficile à interpréter les valeurs élevées de la température des raies, déduites à partir de la largeur des raies supposée être due uniquement à l'effet Doppler.

#### f)- de la géométrie de la cathode

La géométrie de la cathode est un paramètre fixé à priori. Le schéma (fig. 35) montre la transformation de cette géométrie après des centaines d'heures de fonctionnement et nous renseigne sur les zones les plus attaquées, par la pulvérisation cathodique.

Si cette géométrie est définie par les trois données suivantes : d, D et h (fig. 35), l'étude de l'influence de ces trois facteurs sur la largeur des raies a donné des résultats très semblables qui sont groupés dans le tableau VI.

#### TABLEAU VI

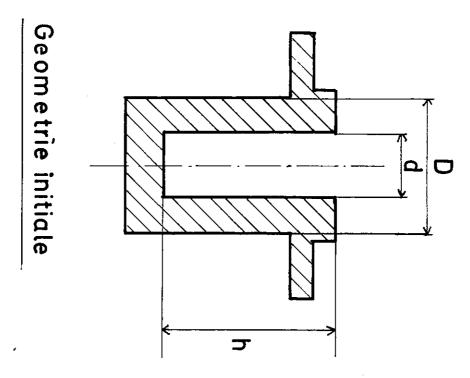
Cathode	. d mm	D mm	h mm	l <sub>A mk</sub>	Intensité de la raie
1 .	. 6	8	15	24,8	25
2	12	13	15	21,7	31
3	6	8	30	22,6	46
4	6	15	15	26	35

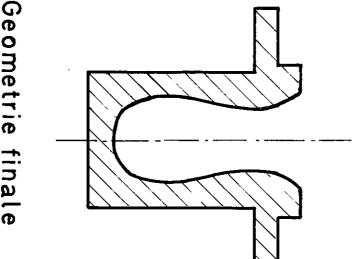
Conclusion: L'influence de tous les facteurs mentionnés ci-dessus (6 - 2 - 3) ne suffit appas à expliquer totalement les différences entre les largeurs des raies émisses par deux sources. Cette différence de largeur peut-elle être attribuée à une différence réelle de température entre les deux sources? C'est ce qu'il reste à démontrer.

# 6 - 2 - 4. Température de décharge

S'il existe un équilibre total entre les différents types de particules présents dans une décharge, on peut alors parler d'une "température de décharge" définie comme température d'équilibre. Or, dans un plasma faiblement ionisé tel que celui de la décharge d'une cathode, on peut dénombrer au moins trois températures

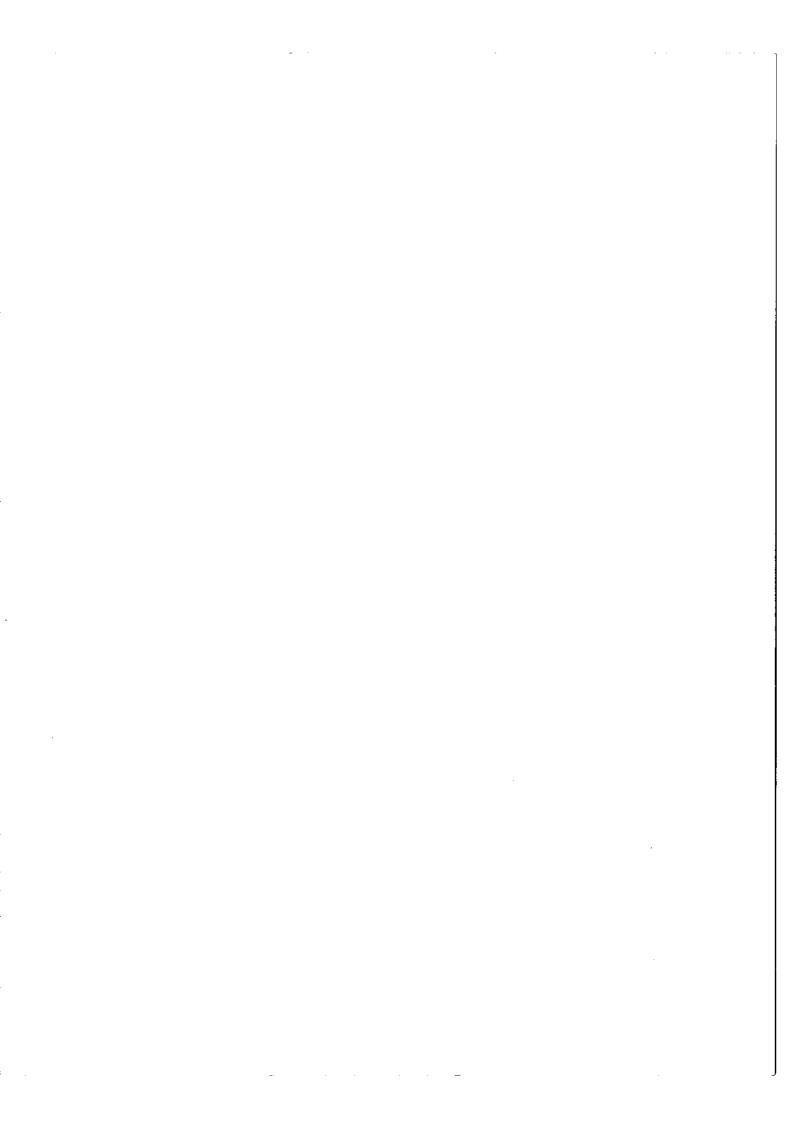
- 1°)- température des atomes neutres
  - 2°)- température des ions
  - 3°)- température des électrons

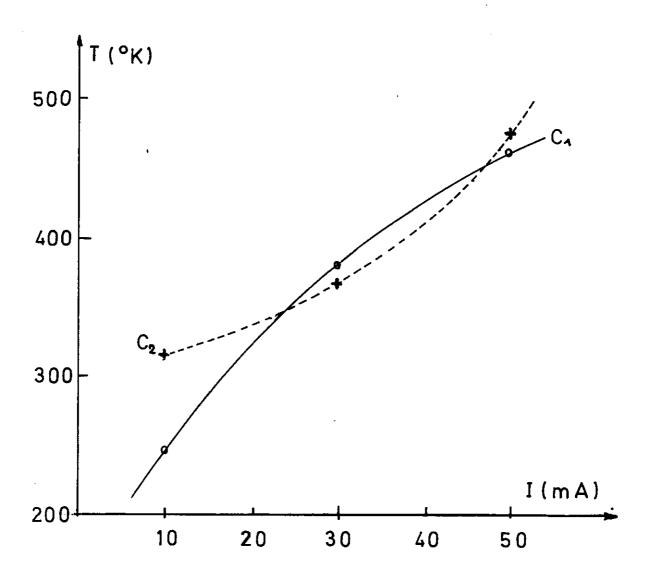




Geometrie finale







# a)- Température des atomes neutres se trouvant dans le plasma

S'il y a équilibre thermique, entre tous les atomes neutres de la décharge, on devrait observer la même température tant pour les atomes métalliques que pour les atomes du gaz porteur. C'est ce que nous avons cherché à vérifier en mesurant les largeurs d'une raie du spectre d'arc du Néon ( $\lambda$  = 5 330 Å) et d'une raie appartenant également au spectre d'arc de l'uranium ( $\lambda$  = 5329 Å). En supposant que les largeurs de raies mesurées, ne sont dues qu'à l'effet Doppler, il est possible de représenter la variation des températures en fonction de l'intensité du courant (fig. 36) la pression étant maintenue constante.

Les courbes C<sub>1</sub> et C<sub>2</sub> sont relatives aux températures respectivement déduites de la raie de l'uranium et de la raie du néon. La cathode creuse en uranium massif est plongée dans un bain d'azote liquide.

Entre 20 et 50 mA, les températures données par le néon et l'uranium sont égales (aux erreurs de mesures près 5 %) ce qui est en accord avec notre hypothèse sur l'équilibre thermique des atomes neutres dans la décharge.

Par contre, pour I < 20 mA, il semble que la température des atomes métalliques, soit dans nos conditions d'expériences, légèrement plus basse que celle du gaz porteur.

#### b)- Mesures directes de la température

Nous avons également mesuré directement la température intérieure régnant dans la cathode en plaçant dans chaque cathode, la soudure chaude d'un thermocouple.

Il est ainsi possible de comparer les températures données par ce thermocouple aux températures qu'on peut déduire des largeurs de raie en supposant que la seule cause d'élargissement est due à l'effet Doppler.

Dans les tableaux (VII) et (VIII), nous avons porté les températures enregistrées par ces deux méthodes. La figure 37 donne l'allure générale de la variation de ces températures en fonction du courant. Toutes les courbes de la fig. 37 ont même origine 0 déterminée par extrapolation. Les coordonnées de ce point 0 sont la température du bain et une intensité non nulle de 2,5 mA, c'est-à-dire, égale au seuil à partir duquel il est possible d'observer une décharge lumineuse.

Les variations des températures obtenues à partir des mesures Dopphen suivent fidèlement, tout en n'étant pas identiques, les températures mesurées à l'aide du thermocouple, en particulier, lorsque la température donnée par le thermocouple reste constante; les largeurs de raies sont également constantes (fig. 37 - Source 1).

Pour établir une relation entre la température donnée par le thermocouple et la puissance dissipée dans la cathode creuse pendant la décharge, nous avons introduit, dans l'une des cathodes, une résistance chauffante dissipant par effet Joule, la même puissance que celle fournie par l'alimentation de la cathode-creuse.

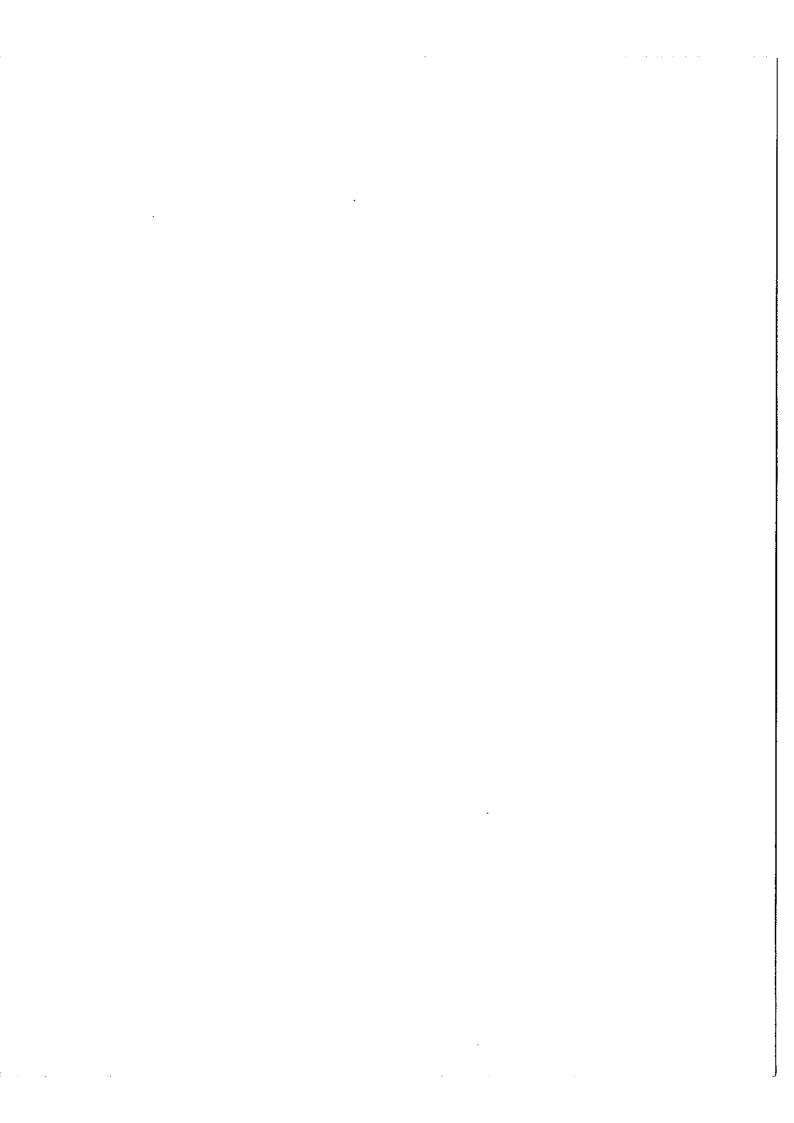
Le tableau IX indique que les mesures relevées à l'aide des 4 thermocouples placés comme l'indique, la figure 38.

TABLEAU IX
TEMPERATURE (° K)

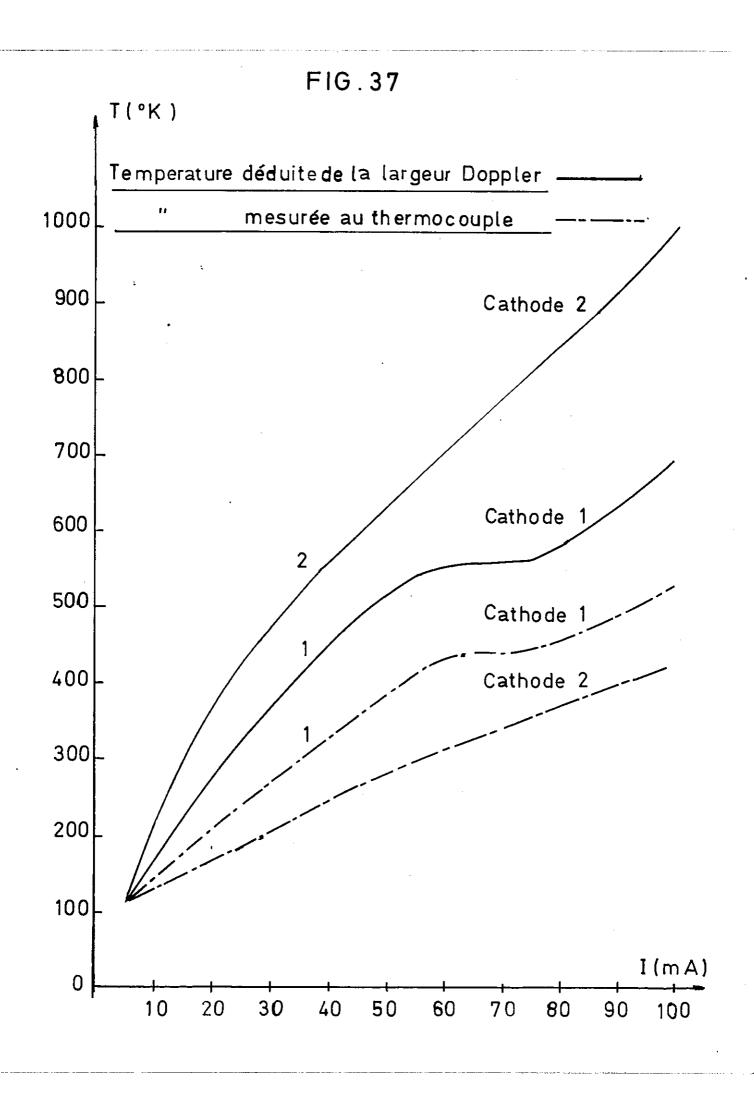
Position	1	2	3	4
Cathode à l'arrêt	100	105	103	98
Cathode en fonc- tionnement P = 30 Watts	568	100	560	109
Cathode avec chauf- fage interne P = 30 Watts			560	

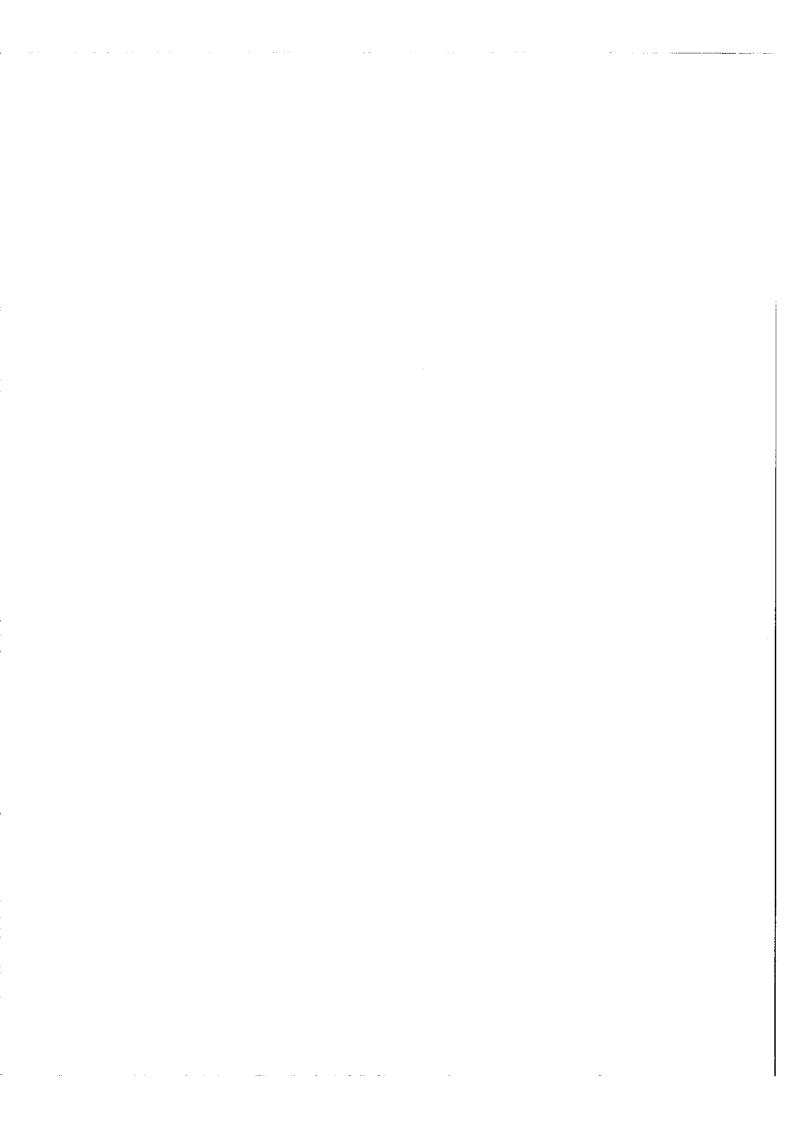
I (MA)	p. de néon en mm de Hv	Tension aux	Potentiomètre mV	Température donnée par T.C	So mesuré	V V	P P	bA calculé	Température Doppler	Intensité de la raie
								Contract of the Contract of th		
100	2,9	214	5,100	390	33,1	0,151	0,910	30,1	1051	
80	2,8	209	2,480	333	30,9	0,161	0,905	28,1	916	
60	১ ড	204	0,153	277	28,6	0,174	0,895	25,7	766	
40	1,9	204	- 1,820	222	26,4	0,189	0,885	23,4	635	
30	1,6	201	- 2,867	190	24,5	0,204	0,880	21,6	541	
20	1,3	200	- 3,625	163	22,7	0,220	0,870	19,8	455	
10	1,2	190	- 4,500	128	18	0,277	0,835	15,1	264	<del></del>
5	0,7	186	- 4,704	118	16,1	0,310	0,815	13,1	199	
2,5	0,5	188	- 4,790	114	13,4	0,373	0,775	10,4	125	
0	. 0		- 4,945	107						

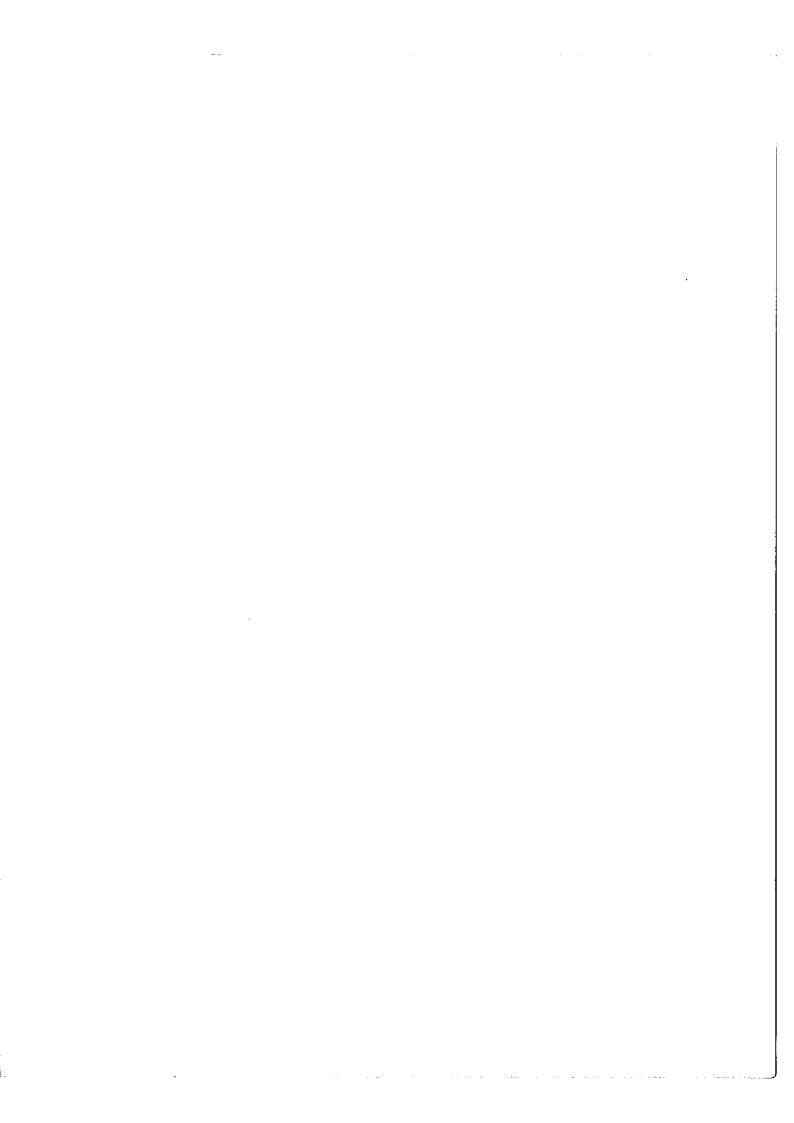


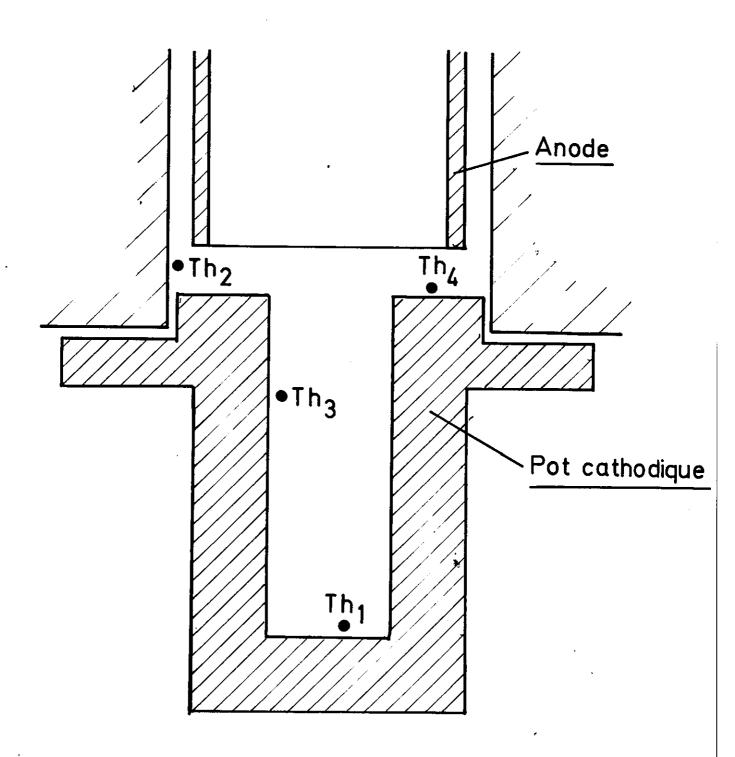


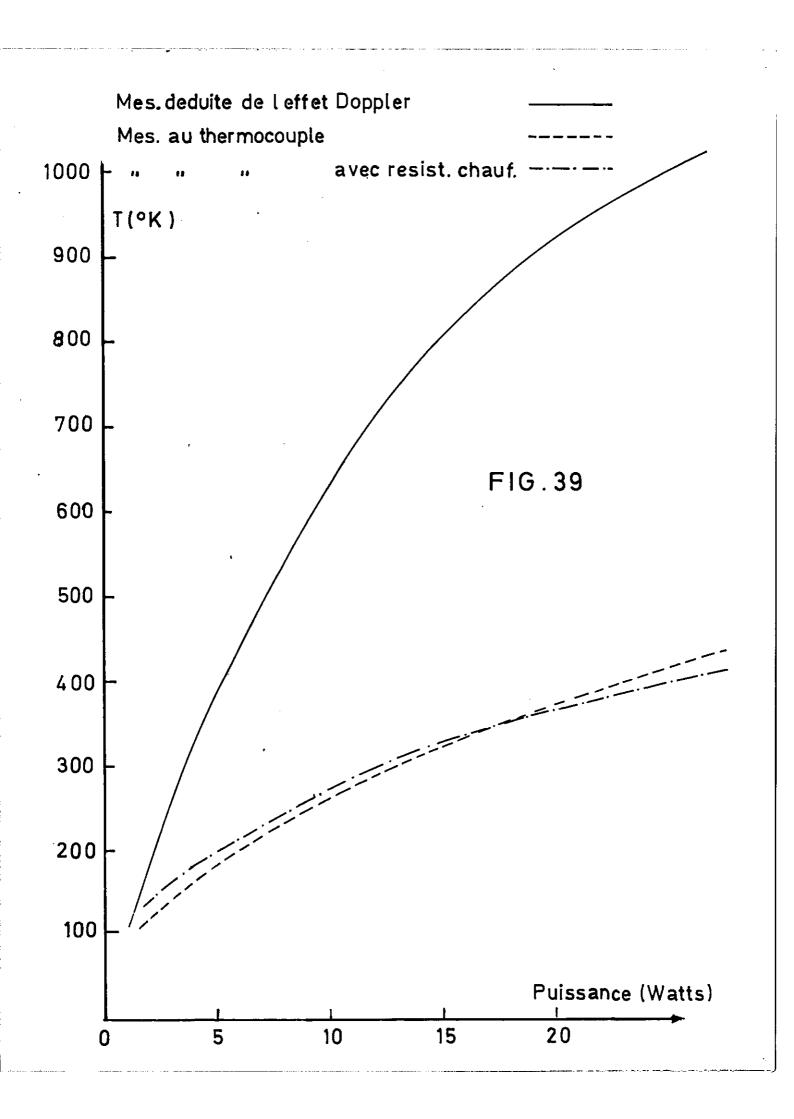
. <sub>[</sub> w											
Intensité de la rais	103	98	89	99	503	28,3	φ	4	<del></del>		
Température Doppler	719	809	601	502	410	335	202	145	94		
b <sub>A</sub> calculé (mk)	24,9	22,9	22,7	20,8	18,8	17	13,2	11,2	6		
<b>мө</b> q	0,895	0,885	0,884	0,875	0,865	0,850	0,815	0,790	0,750		
w paw	0,180	0,193	0,194	0,210	0,230	0,250	0,308	0,352	0,413		
5g mesuré (mk)	27,7	25,9	25,8	23,7	21,7	20	16,2	14,2	12,1		
Température donnée par T.C	504	430	419	327	270	214	145	126	115	100	
Potentiomètre mV	10,950	7,050	6,510	2,200	- 0,127	- 2,098	- 4,080	- 4,530	- 4,770	- 5,070	
Tension aux bornes catho.	212	207	208	207	205	205	200	199	194		
p. de néon en mm de Hy	2,9	2,8	2,5	0,1	1,6	1,3	1,2	7,0	0,5	0	
I (mA)	100	80	09	40	30	20	10	Ŋ	2,5	0	



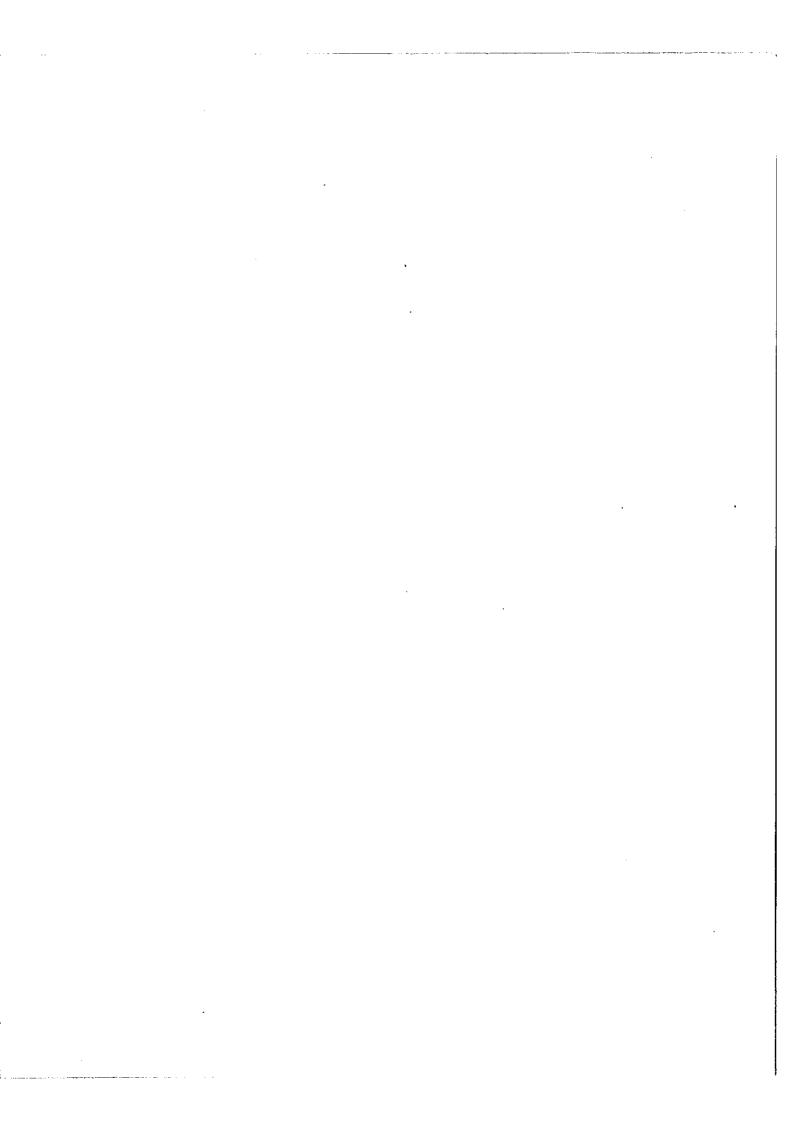


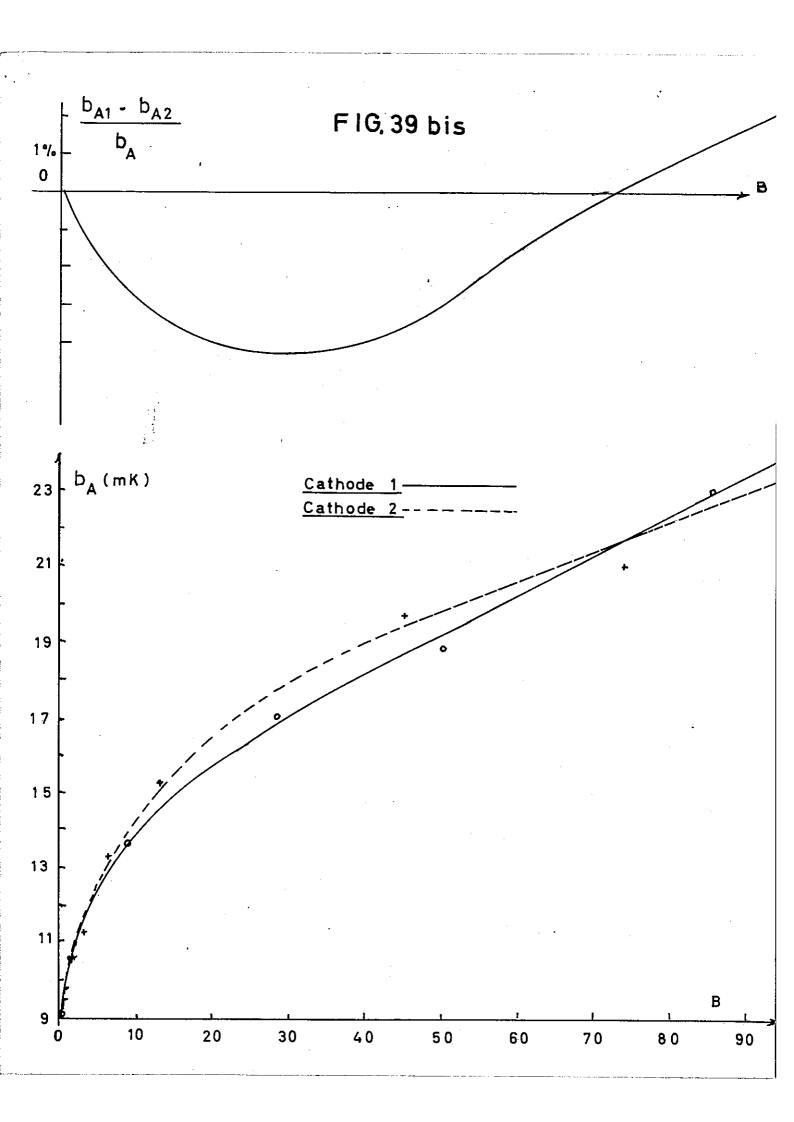












Les températures obtenues en position (3) ne dépendent que de la puissance dissipée, qu'il y ait décharge ou chauffage, les températures résultantes en (3) sont les mêmes (fig. 39). La température mesurée par le thermocouple est donc bien une température de rayonnement, la presque totalité de l'énergie électrique utilisée dans la cathode est dissipée en chaleur. Ce dernier point est également confirmé par les mesures que nous avons faites à l'aide d'une photopile, le rendement lumineux d'une cathode creuse reste très faible, de l'ordre de 10 -5.

Il reste encore à interpréter la différence entre Les températures mesurées par thermocouple et par effet Doppler. Ces dernières températures étant toujours supérieures à celles données par le thermocouple, il est tentant d'invoquer toutes les causes susceptibles d'élargir les raies spectrales. La présente d'autoabsorpsion ne peut, en effet, être exclue puisque l'écart des températures croît lorsque l'intensité du courant augmente, voir également paragraphe (9 - 3). Cependant, le fait d'avoir mesuré des températures égales à partir des raies du néon ou de l'uranium, montre que l'autoabsorption ne peut expliquer, qu'en partie, le désaccord. On ne peut exclure également un faible effet Stark, mais là aussi, il deverait (22) être le même pour les raies du néon et de l'uranium. Finalement, il se peut également que la température donnée par le thermocouple ne soit pas réellement égale à celle du plasma, mais les raisons de cet état de fait nous échappent.

Rappelons que notre objectif est de chercher les conditions expérimentales qui fournissent des raies issues de sources différentes ayant des largeurs semblables. Nous venons de voir (fig. 37) que cette condition n'est pas réalisée lorsque l'on travaille à courant égal ou à puissance dissipée égale dans les différentes cathodes. Néanmoins, à partir de nos mesures, nous pouvons comparer les largeurs des raies fournies par les deux sources lorsque leur brillance est égale. La figure 39bis représente ces variations dans le cas de deux sources. Comparées aux courbes données par læ figures 37, æ différences de largeurs émises par les différentes sources sont bien moins grandes lorsqu'on travaille à brillance égale.

Ces différences peuvent néanmoins atteindre 4%.

## c)- Homogénéité de la température du plasma

Cette température est la même dans la majeure partie du plasma pour des courants élevés. Ceci a été vérifié en prenant sur l'image de la tache cathodique des cercles de diamètre de plus en plus grand (Tableau X). Les largeurs des raies enregistrées des comparables et leurs intensités ont confirmé la distribution de brillance de la figure (21)...

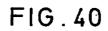
TABLEAU X

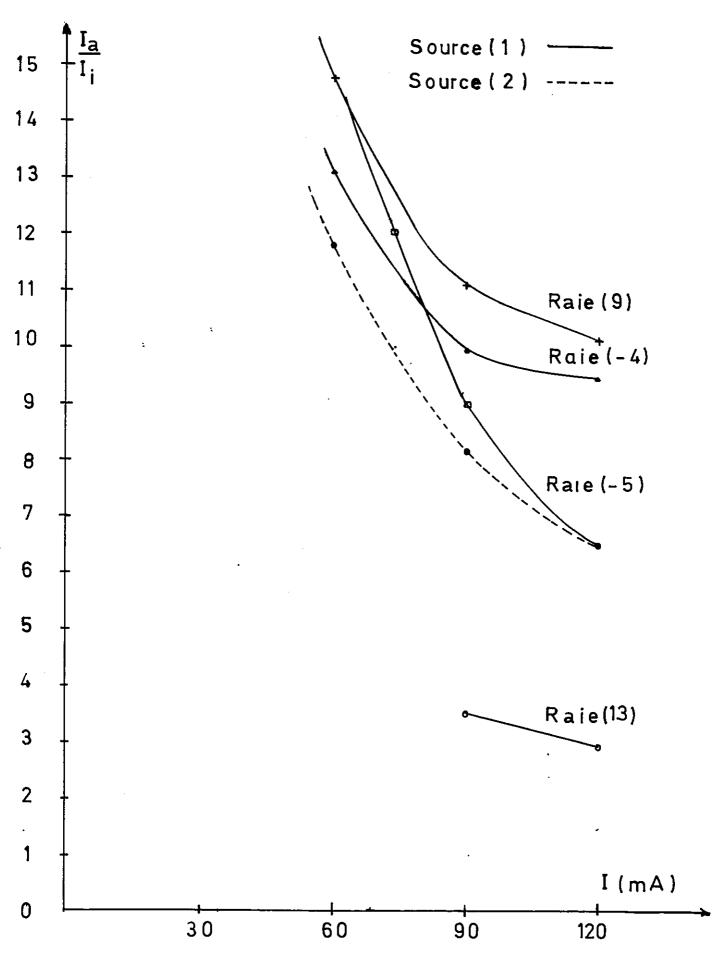
Diamètre du cercle en mm	8,5	6	4	2
Largeur mesurée de la raie en mk	33,4	33,3	33,9	33,7
Intensité de la raie unité arbitraire	178	176	160	112

Par contre, deux sources différentes alimentées par le même courant peuvent avoir des températures très différentes fig. 37, si la densité des atomes émissifs ou leur brillance sont dans un rapport voisin de 2.

Conclusion: Si l'on vent atteindre une précision de 1 % sur les mesures, on ne peut tolérer plus de 10 % de différence entre les largeurs de raies. C'est en travaillant à brillance égale que se trouve les meilleures conditions, mais c'est encore insuffisant, il faut rendre tous les autres paramètres de la décharge (courant, pression, géométrie) aussi identiques que possible. Le moyen de réaliser au mieux ces conditions fera l'objet du chapitre IX, mais il reste encore auparavant à examiner le rôle des raies parasites.







#### 6 - 3. Raies parasites

En écrivant les relations (5 - 5) nous avons supposé pour simplifier qu'il n'y aurait pas de raies parasites qui viendraient se placer par superposition d'ordre sous l'une des raies de mesure A, a, B.

Or, plus un spectre est dense et plus grande est la probabilité de recouvrement d'ordre, ce qui se traduit par :

$$\sum_{P_{i_a}} \neq 0$$
  $\sum_{P_{i_A}} \neq 0$  et  $\sum_{P_{i_B}} \neq 0$ 

Les différentes quantités sous le signe  $\sum$  représentant les intensités totales ou partielles des raies parasites selon que la coincidence entre les raies d'analyse et les raies parasites, est parfaite ou approchée.

Il semblerait que ce phénomène ne soit gênant que dans le cas d'une détermination absolue des abondances et qu'il doive être sans effet quand on utilise deux ou plusieurs sources pour procéder à des mesures relatives. Or, l'expérience démontre le contraire. Ces raies parasites de faible intensité (d'arc ou d'étincelles) sonttrès sensibles aux conditions de fonctionnement des lampes à cathode creuse et la relation suivante :

$$\left(\frac{\sum_{\mathbf{I}_{\mathbf{P}_{i_{A}}}}}{\sum_{\mathbf{I}_{\mathbf{P}_{i_{a}}}}}\right) = \left(\frac{\sum_{\mathbf{I}_{\mathbf{P}_{i_{A}}}}}{\sum_{\mathbf{I}_{\mathbf{P}_{i_{a}}}}}\right)$$

n'est certainement pas toujours vérifrée, ce qui entraîne des différences entre  $k_1$  et  $k_2$ . En particulier, lorsque nous avons entrepris cette étude sans prendre de précautions spéciales dans le choix de l'épaisseur du Fabry-Perot, une raie parasite qui sera notée (-5) venait par recouvrement d'ordre se confondre avec la raie a relative à l'uranium 235. La raie (-5) appartient naturellement à l'isotope 238.

Une étude du rapport des intensités de la raie a et de la raie (-5) a donné les résultats qui figurent sur le tableau XI. Si l'on appelle  $m = \frac{I}{I} \frac{a}{(-5)}$  on observe que m prend des valeurs décroissantes quand le courant augmente et que pour deux cathodes différentes l et 2 les deux séries de valeurs divergent comme le montre la figure 40.

TABLEAU XI

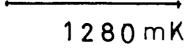
I	en m <sub>A</sub>	120	90	60	30
m <sub>1</sub> =	$=\frac{I_a}{I_{(-5)}}$	6,493	9,23	15,04	la raie (-5) disparaît
m <sub>2</sub> =	$\frac{I_a}{I_{(-5)}}$	6,500	8,00	12,85	la raie (-5) disparaït

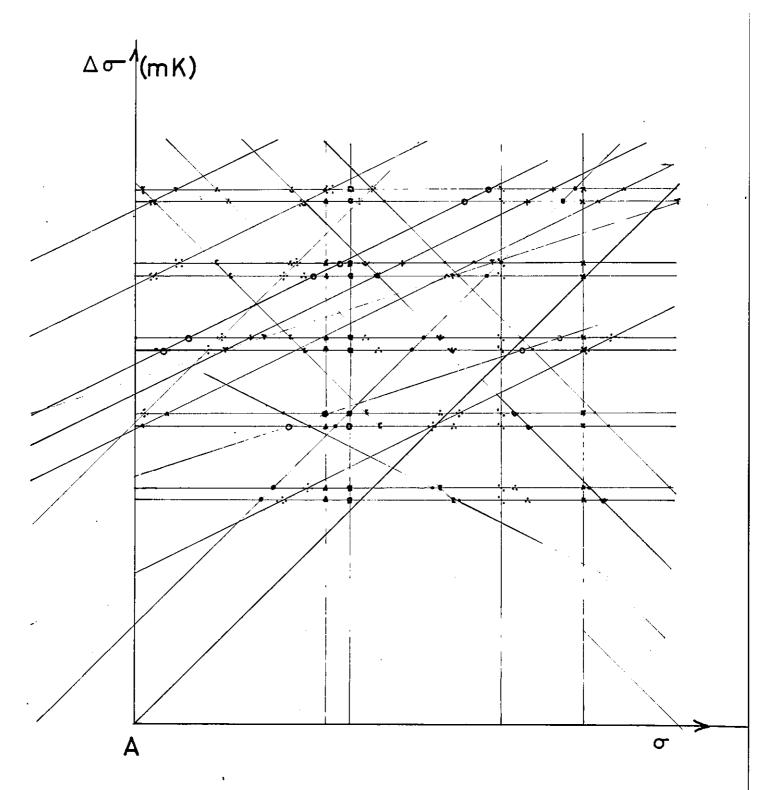
Une étude analogue a été menée sur d'autres raies qui se trouvent dans le voisinage immédiat des raies de mesure, la variation de leur intensité relative à la raie a est représentée aussi sur la figure 40.

Nous avons, par conséquent, entrepris une étude détaillée de l'environnement des raies de mesure, et cette analyse a été effectuée en utilisant quatre méthodes différentes qui vont être successivement décrites au chapitre suivant.



FIG.41





#### CHAPITRE VII

#### IDENTIFICATION DES RAIES PARASITES

# 7 - 1. Méthode des différentes épaisseurs du Fabry-Perot

C'est la méthode qui a été utilisée en premier lieu, elle consiste à faire légèrement varier l'épaisseur d'un interféromètre Fabry-Perot de manière à diminuer ou augmenter son intervalle spectral libre  $\Delta \mathcal{T}$ , ce qui nous permet de suivre les déplacements des raies parasites par rapport aux raies de mesures.

C'est une méthode longue et peu précise dans le cas d'un spectre dense, puisqu'elle nécessite à chaque expérience la détermination précise de l'intervalle spectral libre. Elle comporte par ailleurs, le risque de confondre deux raies parasites ayant des intensités voisines et appartenant à des ordres différents du Fabry-Perot.

Une vingtaine d'épaisseurs différentes ont été nécessaires pour trouver les raies parasites les plus importantes contenues dans une bande passante de 2. À de large. La figure 41 montre les épaisseurs choisies et l'environnement obtenu par cette méthode. Si une raie parasite disparaît ou se déplace beaucoup pour une faible variation d'épaisseur, on conclut qu'elle appartient à des ordres éloignés. Il est évidemment avantageux de commencer par les faibles épaisseurs, mais on était limité pour les grands i.s.l. par :

- 1°)- la linéarité de la fuite dans le F.P qui devient très mauvaise quand on approche de la pression atmosphérique et introduit une imprécision sur la position exacte de la raie.
- 2°)- l'intervalle spectral libre maximum qu'on peut explorer avec une variation de pression d'air égale à 1 atmosphère, est de l'ordre de 1,5 Å pour la région de 5000 Å. Les faibles variations d'épaisseur d'une expérience à l'autre ont été

rendues possibles grâce à la monture F.P représentée par la figure 6.

## 7 - 2. Méthode photographique

Un essai a été tenté en utilisant un tube sans électrode et le spectrographe a réseau installé dans le puits du laboratoire de l'Electro-Aimant. Pour obtenir le pouvoir de résolution maximum, nous avons employé le prisme à double passage. Grâce à ce dispositif, le pouvoir de résolution auquel on est parvenu, était équivalent à celui du F.P de 3,5 mm d'épaisseur. Mais seules les raies d'intensité égales à 30 % de la raie a ont pu être mises en évidence (figure 42.) En effet, la plaque photographique ne peut enregistrer les raies de faibles intensités quand il y a des raies intenses au voisinage:

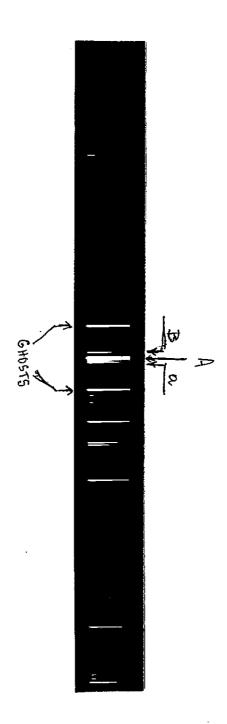
Le spectrographe utilisé avait les caractéristiques suivantes : c'est un montage Littrow avec une distance focale de 9 mètres. Le réseau compte 180 t/mm et a pour dimensions - 230 x 120 mm ~. Il est "Blazé" pour deux angles

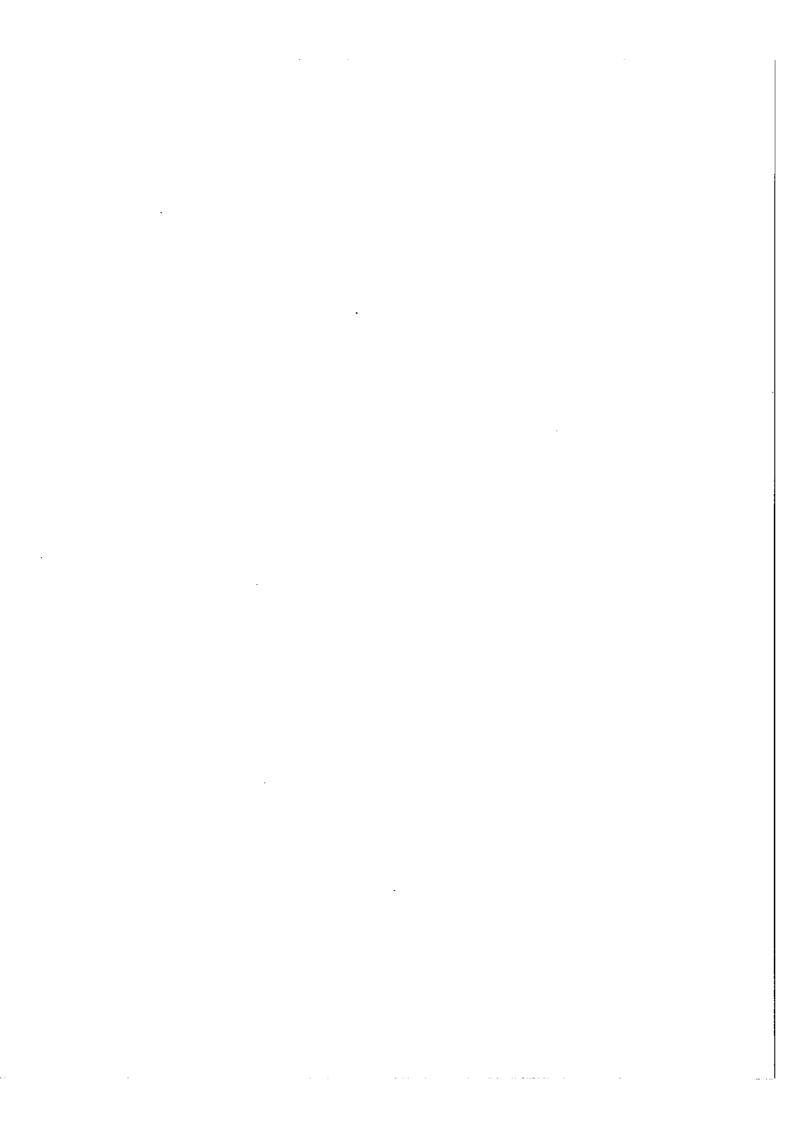
$$\varphi_1 = 24^{\circ}$$
  
 $\varphi_2 = 66^{\circ}$ 

Son pouvoir de résolution effectif dans le 9ème ordre est de 430 000.

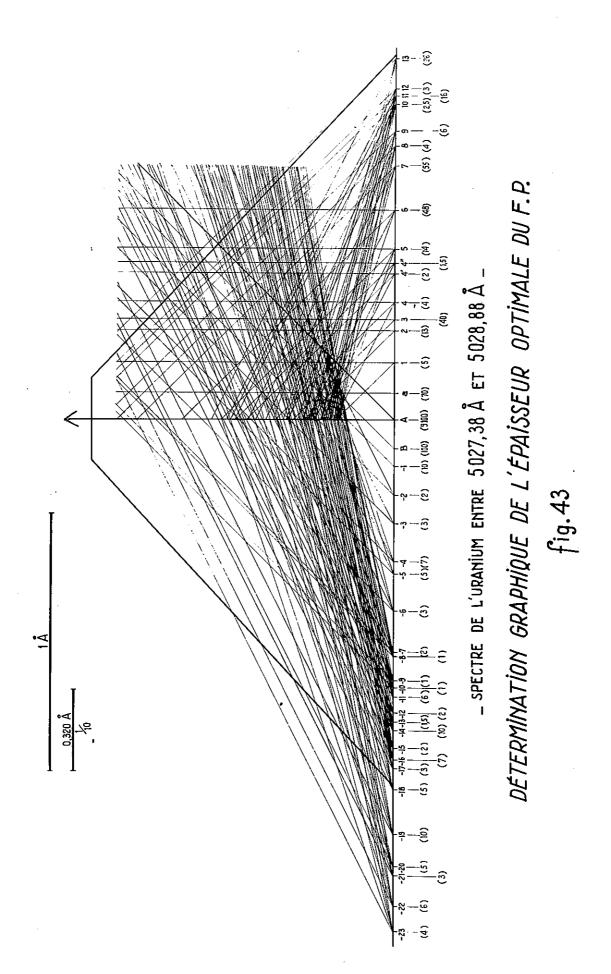
## 7 - 3. Méthode photoélectrique pas à pas

Cette méthode consiste à prendre une bande passante du monochromateur donnérieure ou égale à la moitié de l'intervalle spectral libre du Fabry-Perot, ceci pour éviter tout recouvrement d'ordre. Dans ce cas, si on éclaire le spectromètre avec de la lumière blanche, une exploration réseau avec Fabry-Perot fixe ou une exploration F.P avec le réseau fixe donne le même résultat, c'est-à-dire un spectre dit "cannælé" qui n'est autre que la fonction "Comb" P obtenue par un produit de convolution





• • -



### P = T A

- T étant la fonction caractéristique du monochromateur
- A la fonction d'appareil du Fabry-Perot

La distance entre deux cannelures représentent l'i.s.l. du Fabry-Perot; c'est le pas de la fonction.

Pour obtenir l'environnement recherché, il suffit donc d'avancer le réseau pas à pas, chaque pas étant contrôlé par le spectre "cannelé" équivaut à un déplacement de la bande passante égal à  $\frac{\Delta \mathcal{T}}{2}$ . Entre deux déplacements du réseau, une exploration de l'I.s.l. du F.P donne les raies contenues dans chaque bande passante.

On peut ainsi explorer tout le spectre visible, mais ce procédé est très long pour étudier un grand domaine; il n'utilise pas les avantages de luminosité du F.P et il présente l'inconvénient de transmettre les différentes raies enregistrées avec des intensités très altérées. Il nous a permis néanmoins, de dénombrer dans un intervalle de l A de part et d'autre de la raie A une quarantaine de raies d'intensités comprises entre 1/100 et 1/10 000 de l'intensité de la raie principale A, les raies plus faibles ne pouvant être mises en évidence à cause du fond continu instrumental et du rapport signal/bruit.

La figure 43 représente le voisinage qui a été déterminé par cette méthode. On retrouve les raies détectées par le spectrographé et de nombreuses autres raies plus faibles, que seule une méthode photoélectrique pouvait mettre en évidence. (Tableau XII).

Ce domaine spectral a été enregistré avec un pouvoir de résolution de l'ordre de 360 000, et un F.P dont l'i.s.l. libre était de 1414 mk. La bande passante du monochromateur devait se déplacer à chaque pas de 0,16 Å; ce faible déplacement n'est pas très critique mais nécessite un bon entraînement du réseau et une bonne stabilité du monochromateur.

### 7 - 4. Méthode dite du balayage Synchrone

Elle transforme le spectromètre F.P "Hypeac" en un spectromètre semi-intégral dont la définition serait la suivante : capable d'étudier le spectre le plus général d'émission ou d'absorption à n'importe quel pouvoir de résolution qui comporterait un nombre quelconque de composantes dans un intervalle spectral étendu. Cette étude ne peut se faire que pas à pas, la longueur d'un pas étant exprimée en cm<sup>-1</sup> par

$$d \sigma = \sigma \frac{dn}{n}$$

étant le nombre d'onde moyen de l'intervalle considéré, n l'indice du milieu entre les lames du F.P. Cette méthode paraît être équivalente à la méthode précédente alors qu'en fait, elle lui est nettement supérieure et ceci pour deux raisons fondamentales :

- a)- ici le pas est indépendant de l'intervalle spectral libre du Fabry-Perot. Il est par ailleurs plus grand que celui de la méthode précédente.
- b)- dans cette méthode la bande passante du monochromateur se déplace simultanément et à la même vitesse  $v = \frac{d\sigma}{dt}$  que la fonction de transmission du F.P; leur maximum de transmission restant en coîncidence, ce qui se traduit par l'annulation des altérations causées par la fonction d'appareil du monochromateur sur les valeurs des intensités des raies (cf. paragraphe 3 5 1).

Comme les précédentes, cette méthode a confirmé l'environnement trouvé en apportant plus de précision sur l'intensité des différentes raies. La réalisation de cet entraînement sera exposé au chapitre VIII.

# TABLEAU XII

	Longu	Longueurs d'ondes en	Å			Intensité
W.F.MEGGERS	BOVEY	STEINHAUS	KIESS	RICHARDS	L.A.C.	
			× ×	5.029,37	5.029,394	4
					5.029,290	vo
					5.029,175	က
					5.029,140	ام
		5.029,062		5.029,03		
	·	5.028,844	× × ×	5.028,90	5.028,907	က
			× ×	5.028,78	5,028,752	7
					5.028,714	8
			× × ×	5,028,68	5.028,671	10
					5,028,625	1,5
				*	5.028,567	. <b>0</b> 3
					5,028,534	9
			× ×	5.028,47	5.028,470	-
			× × ×	5.028,65	5.028,434	-
					5.028,406	<b>-</b>
			×××	5.028,32	5.028,310	α
		5.028,158			5.028,138	ന
			× ×	5.028,00	5.027,986	Ŋ
					5.027,942	7
			× × ×	5.027,87	5.027,790	r
			×××	5.027,70	5.027,679	N
			×××	5.027,69	5.027,567	10
			× × ×	5.027,53	5.027,503	100
5.027,38	5.027,38	5,027,385	× ×	5.027,40	5.027,385	9100
					5.027,280	70
					5.027,160	5

## TABLEAU XII

																					5.027,38																								W.F.MEGGERS	
		•								5.026,37	4	5,026,52					5.027,00				5.027,38																								BOVEY	Lon
5.025,433					5.028,072						5.028,521	5.028,528		5.028,759							5.027,385							5.028,158											5.028,844	5.029,062					STEINHAUS	Longueurs d'ondes en
× × ×		× × ×		× ×	×							× ×	-								× × ×	× × ×	×××	×××	× × ×		×××		× × ×		× ×	× ×				× × ×		× × ×	×					× × ×	KIESS	<b>&gt;</b>
5.025,44		5.025,61		5.026,93	5,026,06				5.026,28	5.026,37		5.026,54					5.027,00				5.027,40	5.027,53	5.027,69	5.027,70	5.027,87		5.028,00		5.028,32		5.028,65	5.028,47				5.028,68		5.028,78	5.028,90	5,029,03			•	5.029,37	RICHARDS	
5.025,465	5.026,487	5,025,625	5,025,741	5.023,972	5.026,085	5.026,113	5.026,140	5,026,225	5.026,312	5.026,377		5.026,560	5.026,713	5.026,770	5,026,812	5.026,923	5.026,993	5,027,035	5,027,160	5,027,280	5.027,385	5.027,503	5.027,567	5.027,679	5.027,790	5.027,942	5.027,986	5.028,138	5.028,310	5.028,406	5.028,434	5,028,470	5.028,534	5.028,567	5,028,625	5.028,671	5.028,714	5.028,752	5.028,907		5.029.140	5,029,175	5.029,290	5.029,394	L.A.C.	
100	130	4	26	w	16	25	25	<b>o</b>	4	55		48	14	1,5	N	4	40	113	<b>5</b> 1	70	9100	100	10	N	<b>ω</b>	7	5	ω	N	<b></b>	<b>-</b>	-	6	N)	1,5	10	N	7	ω	,	.л (	w	σ.	4	-	Intensité

### 7 - 5. Détermination de l'épaisseur optimum du F.P

Pour éviter que des raies parasites ayant des intensités différentes d'une cathode à l'autre (tableau XI) viennent se confondre avec les raies de mesure, entraînant des écarts systématiques entre  $k_1$  et  $k_2$  (de l'ordre de 5 %) nous avons cherché à déterminer (une fois que toutes les raies du voisinage ont été inventoriées):

- a)- l'épaisseur optimum à donner au F.P pour isoler les raies d'analyse,
- b)- la largeur de la bande passante du monochromateur pour avoir le maximum de luminosité tout en tenant compte de l'environnement.

Cette détermination de l'épaisseur s'obtient par une méthode graphique (fig. 43) analogue à celle décrite par K.W. Meissner (20).

Pour le problème particulier de l'uranium à faible teneur en 235, l'épaisseur la plus favorable est 3,675 mm. Même avec cette épaisseur, on a été obligé de tolérer quelques superpositions partielles (c'est-à-dire de la raie a avec le pied d'une raie parasite).

Ce choix de l'épaisseur dicte les valeurs que doivent prendre les largeurs de la fente d'entrée et de la fente de sortie pour éliminer les raies suffisamment intenses susceptibles de fausser les mesures. Nous avons représenté sur la figure 43 la forme et la position de la bande passante dans le spectre de l'uranium.

### CHAPITRE VIII

### REALISATION EXPERIMENTALE D'UN BALAYAGE SYNCHRONE ENTRE

### LE MONOCHROMATEUR ET LE FABRY-PEROT

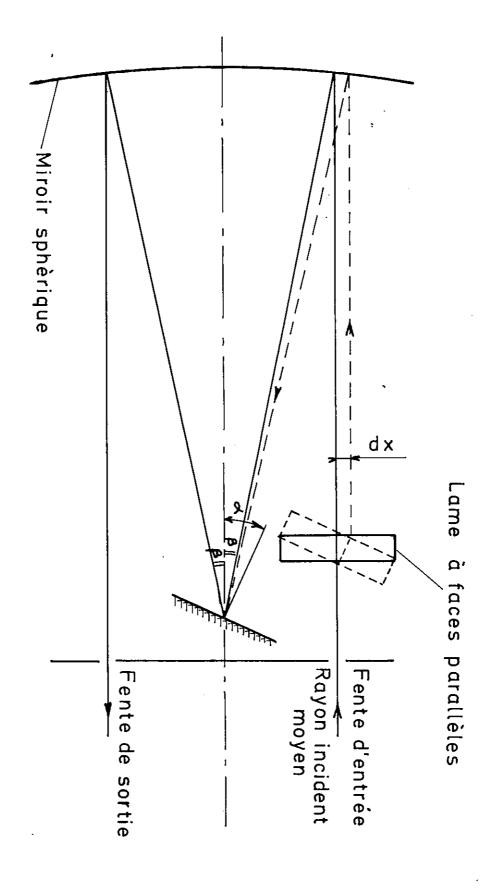
### Introduction

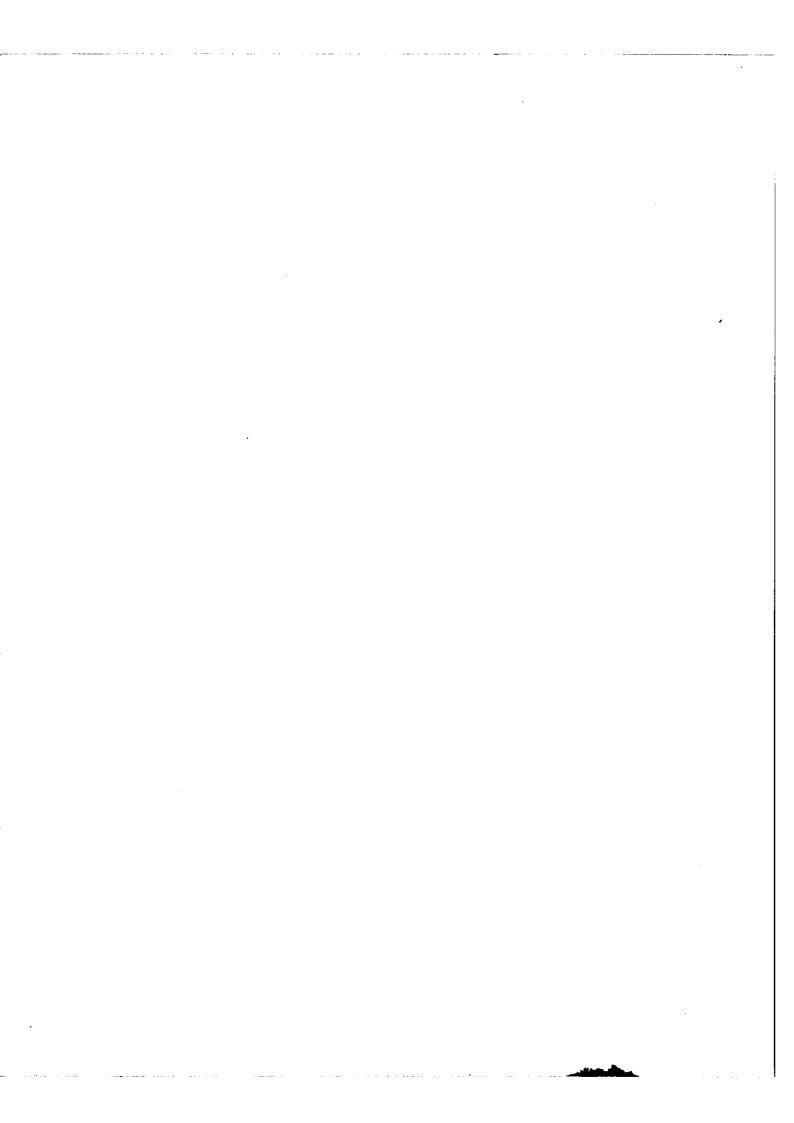
Un spectromètre F.P intégral a été réalisé par R. CHABBAL (17) avec une chaîne de 2 F.P en série qui, permettait d'étudier un spectre dans un domaine de l'ordre de 4000 cm<sup>-1</sup>. Par contre, le dispositif qui va être décrit ci-dessous et dont il a été question au paragraphe (7 - 4) n'est intéressant que dans le cas où on cherche à étudier un spectre (d'émission ou d'absorption) à haute résolution dans un domaine spectral qui n'excède pas 50 à 100 cm<sup>-1</sup>.

### 8 - 1. Principe du balayage synchrone

Pour réaliser un spectromètre Fabry-Perot à bande passante unique constitué par un monochromateur et un F.P, trois conditions doivent être satisfaites :

- a)- le monochromateur est astreint à fournir une bande passante inférieure ou égale à l'intervalle spectral libre du F.P
- b)- déplacer simultanément les bandes passantes du monochromateur et du F.P Ce déplacement doit avoir la même vitesse pour les deux éléments  $(\frac{d\sigma}{dt})_{M} = (\frac{d\sigma}{dt})_{F.P}$
- c)- un dispositif approprié doit amener en coincidence les maximums de la bande passante du monochromateur avec celui de la bande passante du F.P





12375 <u>بۇر.</u> ، 1 A Charac

Le mode d'exploration le plus simple à réaliser pour le F.P s'obtient par variation de l'expression 2nne et plus spécialement celle de n . Cette variation de l'indice n est elle-même reliée linéairement à celle de la pression  $\varpi$  qui règne entre les lames du F.P . La bande passante du monochromateur sera donc assujettie à se déplacer en fonction de cette même variation de pression produite par un procédé quelconque.

### 8 - 2. Réalisation du déplacement de la bande passante du monochromateur

Pour déplacer la bande passante du monochromateur, il faut faire varier la différence de marche  $\Delta = \alpha \left( \sin (\alpha - \beta) + \sin (\alpha + \beta) \right)$ ,  $(\alpha - \beta)$  étant l'angle du rayon incident et de la normale au réseau,  $(\alpha + \beta)$  étant l'angle du rayon diffracté avec la normale. Ce résultat est obtenu en donnant à l'axe du réseau une rotation qui change l'angle  $\alpha$ . Il est souvent avantageux de rendre cette rotation linéaire en fonction du temps, or ceci est difficilement réalisable quand on impose à cette linéarité d'être définie avec une précision de  $10^{-4}$ ; car les organes mécaniques de transformation du mouvement de rotation en mouvement de translation (fig. 15) ne peuvent prétendre à de pareilles précisions. Nous avons donc remplacé ce mode d'exploration non précis(illustré par la figure 44 représentant un spectre dit "cannelé") par un autre procédé. Grâce à la rotation d'une lame à faces parallèles d'épaisseur e placée sur le trajet du faisceau, après la fente d'entrée,  $\alpha$  fait varier l'angle d'incidence  $\alpha$   $\beta$  (fig. 14).

En effet, une rotation  $\chi$  de la lame déplace le rayon moyen - figure 46 - de la quantité :

$$x = e \frac{\sin (\xi - r)}{\cos r}$$

Dans le cas où les angles utilisés sont faibles; c'est-à-dire la lame s'écartant peu de la position perpendiculaire au rayon moyen; le déplacement sera :

$$dx = e \delta d\delta$$
 en posant  $\delta = (1 - \frac{1}{9})$  et  $\beta$  = indice de la lame

Ce déplacement introduit une variation de l'angle d'incidence sur le réseau et par conséquent une variation du nombre d'onde (d'après l'équation (8 - 1) qui est dérivée de l'équation générale sur le réseaux (5 - 1).

On obtient par dérivation en utilisant les notations de la figure 14.

$$d G = -\frac{G^2 \cos \beta d \beta}{k N}$$
 (8 - 1)

or

$$d \not \beta \quad \stackrel{\mathbf{d}}{\sim} \quad \frac{dx}{F}$$

ce qui entraîne

$$d = -\sigma^2 \frac{e \delta \cos \beta}{Nk F} d$$

où F désigne la distance focale du miroir sphérique du monochromateur.

N nombre de traits du réseau par mm

k ordre dans lequel est utilisé le réseau

Le déplacement de la bande passante du F.P obéit à la relation :

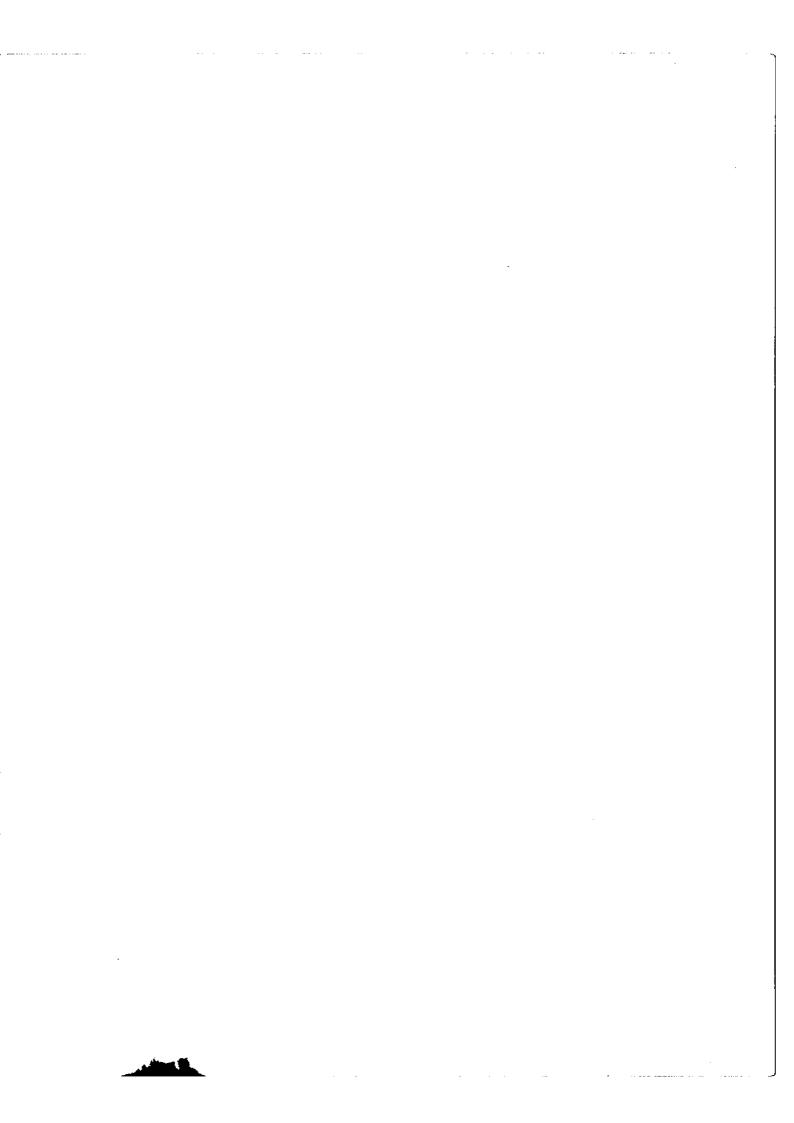
$$d\sigma_{F \cdot P} = -\sigma \frac{dn}{n} \qquad (8 - 2)$$

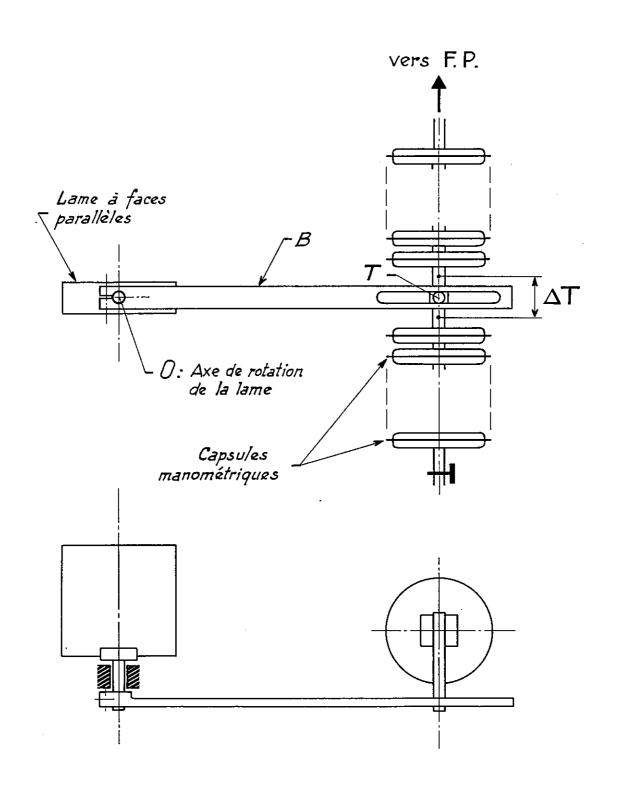
$$d \nabla_{\mathbf{F} \cdot \mathbf{P}} = - \chi \sigma \, d \boldsymbol{\omega} \qquad (8 - 3)$$

X étant un coefficient caractéristique du gaz placé entre les lames du F.P du représentant la variation de pression de ce gaz.

Nous obtiendrons une exploration synchrone du spectre par le F.P et le monochromateur si les deux expressions d $\sigma_{M}$  et d $\sigma_{F.P}$  sont égales, c'est-à-dire si :

FIG:46 Ф lame à façes paralléles





DISPOSITIF DE ROTATION

DE LÀ LAME À FACES PARALLÈLES

fig. 47

$$d \Upsilon = d \varpi \left( \frac{N k F \chi}{\sigma e \delta \cos \beta} \right)$$
 (8-4')

on pose:

$$\frac{NkFX}{\sigma e \delta \cos \beta} = C$$

C est une constante pour un T donné.

La rotation d de la lame à faces parallèles doit donc être rendue proportionnelle à la variation de pression entre les lames du F.P. Ce coefficient de proportionnalité C est malheureusement fonction de T; mais ceci ne présente pas de grands inconvénients pour l'exploration de faibles intervalles spectraux de l'ordre de 80 cm<sup>-1</sup>. Cependant, le dispositif doit prévoir la possibilité de changer le coefficient de proportionnalité C quand on passe d'une région du spectre à une autre, car dans ce cas, la variation de le proportionnelle de proportion de proportionnelle de proportionnelle de proportionnelle de proportionnelle de proportionnelle de proportion de proportionnelle de proportionnelle de proportion de pro

### 8 - 3. Description du dispositif de rotation de la lame à faces parallèles

Un empilement de capsules manométriques, comme l'indique la figure 47 donne à la tige T un mouvement de translation quand la pression varie, soit dans l'ensemble supérieur, soit dans l'ensemble inférieur. Cette translation  $\Delta$ T du point T est liée au nombre de capsules et à la variation de pression.

Pour une capsule, l'allongement est donné par :

$$E_1 = \int (\overline{\omega}_1 - \overline{\omega}_2)$$

- $\overline{m{\omega}}_{_{\mathsf{T}}}$  étant la pression régnant à l'intérieur de la capsule
- ಹ್ಸ್ pression extérieure quelconque
- Jun coefficient de proportionnalité

Si nous plaçons deux capsules en opposition, nous aurons :

1.1.1.1.

$$\mathbf{E}' = \mathbf{E}_{1} - \mathbf{E}_{2} = \mathbf{S}(\overline{\omega}_{1} - \overline{\omega}_{2}) - \mathbf{S}(\overline{\omega}_{1}' - \overline{\omega}_{2})$$

$$\mathbf{E}' = \mathbf{S}(\overline{\omega}_{1} - \overline{\omega}_{1}') \tag{8-5}$$

 $\overline{\omega}_1'$  étant la pression à l'intérieur de la deuxième capsule, nous éliminons ainsi les variations dues à la pression extérieure  $\overline{\omega}_2$ . On maintiendra donc l'ensemble inférieur des capsules à une pression fixe qui sera de l'ordre d'une demi-atmosphère, l'ensemble supérieur est relié directement à l'enceinte du F.P, quand la pression varie, la tige T se déplace dans son logement en donnant au bras B un mouvement de rotation autour de l'axe 0 (fig. 47).

Ce mouvement de rotation est en même temps communiqué à la lame à faces parallèles. Si AT est linéaire avec la variation de pression A il en sera de même pour la variation d'angle.

$$\Delta \delta = \frac{\Delta T}{OT}$$
 (8 - 6)

La formule (9 - 8) pour la série du N<sub>1</sub> capsules de l'ensemble supérieur devient :

$$\Delta T = N_1 \leq (\overline{\omega}_1 - \overline{\omega}_1') = N_1 \leq \Delta \overline{\omega}$$

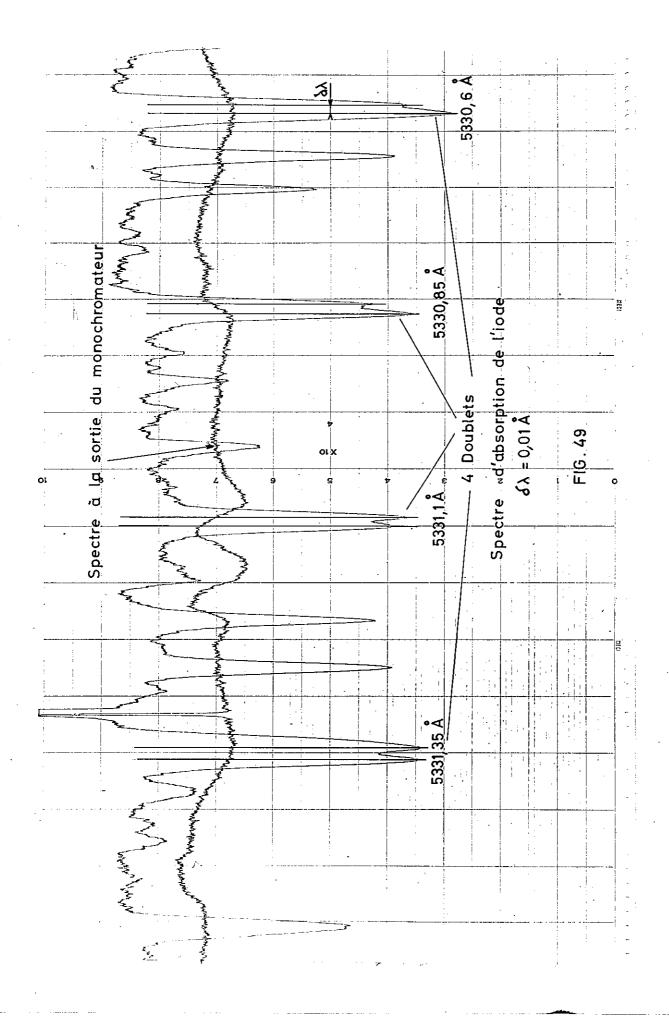
et la formule (9 - 7) prend la forme :

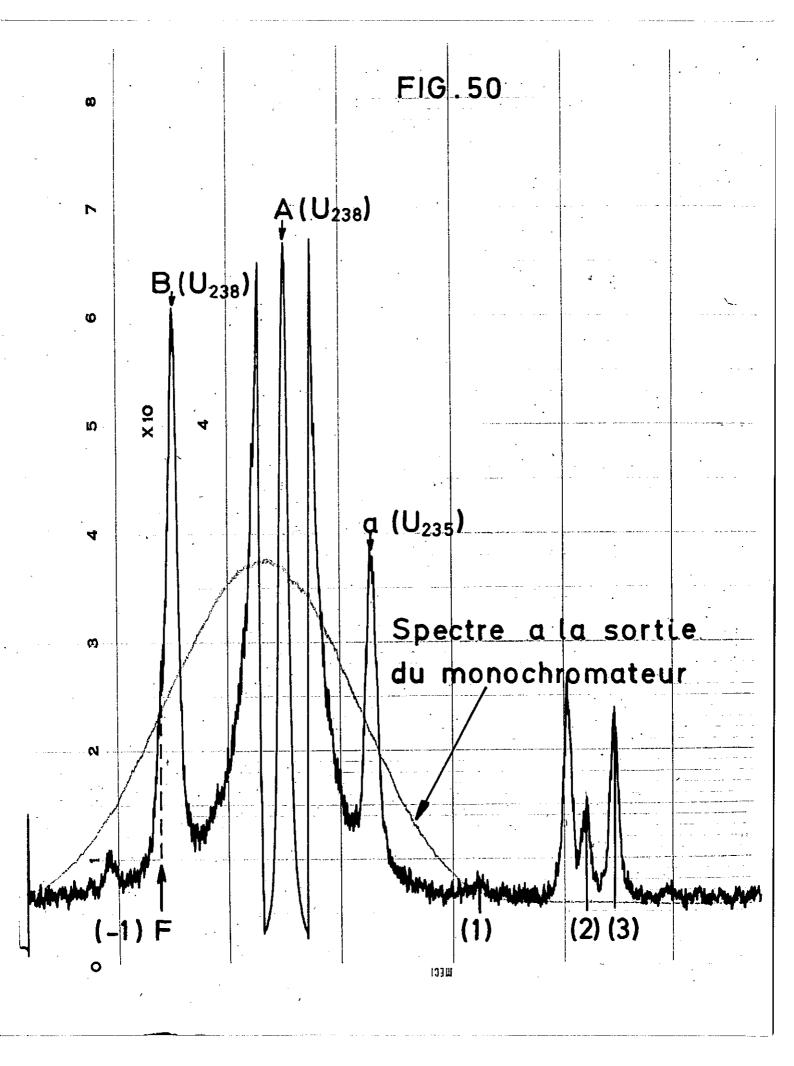
$$\frac{N_{4} > \Delta \overline{\omega}'}{OT} = \Delta \overline{\omega} \left( \frac{N \text{ k F } X}{\text{Te S cos } \beta} \right)$$

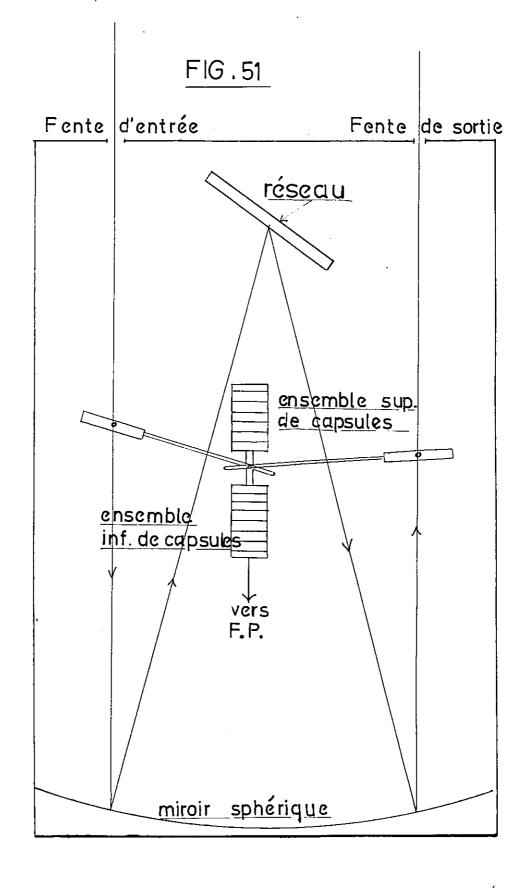
$$\Delta \overline{\omega}' = \Delta \overline{\omega} \left( \frac{N \text{ k F } X}{S N_{4} \text{ e S cos } \beta} \right) \left( \frac{OT}{O} \right) \qquad (8 - 7)$$
Pour maintenir le coefficient C constant, il suffit de faire varier OT dans le même

Pour maintenir le coefficient C constant, il suffit de faire varier OT dans le même sens que de sorte à maintenir oT = Cte. Ce résultat peut être obtenu en faisant coulisser l'ensemble des capsules avec la tige T par rapport au bras OB.

		::::::::::::::::::::::::::::::::::				1					· · ·		· · !		
		<del>∠</del> A	mplit	uae	ae	la	1	mod	<u>lulati</u>	<u>on</u>	->	<b> </b>			
				,	•		W WANT		,	****	1		:	:	
					i	•	A STATE OF THE PARTY OF THE PAR		:					:	-
				<b>I</b> ,	ì	:	*	-	:		:				
		2	3.		1		1		: :	**	: 7		В	!	9
	<u></u> -		· · ·		<del>-</del>	··	3		_		<del></del>			<del></del>	 ·
Precision		eri			!			•		}					
<u>v</u> .		fic					No.			}	· · · · · · · · · · · · · · · · · · ·				
<u>.</u>		Verification			:				: !						
<u> </u>									i i						
						·	A PARTY AND A			{					
Λ < T	þ	syı	٠				A STATE OF THE PARTY OF THE PAR	:	:	Ì					П
synchronism	155	<u> </u>					N. W.	40	m K	<u>}</u>	<del></del>	·	!		_ <u>ਰ</u> -
5	passantes	ron		•			-	<del>*************************************</del>	HILL						IG . 48
<u>,</u>	es	synchronism	·		<del> </del>		P. Jak				i				
Ď		O		,			A A A			(	· ·				
<u>``</u>		des								}					
20 BX					·										
^		bandes					~14					•			
		- <del>N</del>	<del></del> ;						:	}			<del>!</del>		<del></del>
		i	; ;		•				!				; 		
			:	<del></del>	. :		1								 
					-		7	]			! !				
			• [	•	· · · · · · · · · · · · · · · · · · ·		<b>₹</b>		)	}					







## 8 - 4. Vérification de la synchronisation du déplacement des bandes passantes du monochromateur et du F.P

Cette vérification se fait par l'intermédiaire d'une source de lumière blanche auxiliaire. Quand les deux vitesses d'exploration  $\left(\frac{d\sigma}{dt}\right)_M$  et  $\left(\frac{d\sigma}{dt}\right)_{F,P}$  sont égales le signal résultant est nécessairement constant comme le montre la figure 48. Si les deux vitesses sont différentes le signal est modulé et nous pouvons agir soit sur la longueur du bras de levier OT ou sur la pression des capsules de l'ensemble inférieur pour augmenter ou diminuer la vitesse  $\left(\frac{d\sigma}{dt}\right)_{F,P}$  du monochromateur.

Pour amener les deux bandes passantes en coincidence nous utiliserons aussi la même source auxiliaire en agissant sur la rotation lente de l'axe du réseau de sorte que le maximum de sa bande passante vienne coincider avec le maximum d'un pic d'Airy.

Conclusion. - Ce dispositif a été testé en étudiant un spectre d'absorption de l'iode correspondant à la figure 49 et un spectre d'émission, celui de l'uranium figure 50. Sur ces dernières figures, nous voyons deux spectres : le spectre donné par la cellule de référence à la sortie du monochromateur, et celui qui est obtenu avec la cellule d'analyse sur lequel la résolution instrumentale était de 10<sup>6</sup>. Les résultats obtenus à l'aide de ce dispositif, peuvent être considérés comme étant très satisfaisants.

Remarque. - Par contre son utilisation dans l'ultraviolet lointain, nécessite de grandes variations de , on pourrait alors utiliser le même dispositif mais symétrique, c'est-à-dire en employant deux lames à faces parallèles de même épaisseur, l'une après la fente d'entrée et l'autre avant la fente de sortie, commandées simultanément par le même système de capsules (fig. 51). Ce montage a l'avantage de maintenir la symétrie et le réglage du monochromateur, le synchronisme s'obtenant dans ce cas uniquement par variation de pression dans les capsules de l'ensemble supérieur.

### CHAPITRE IX

### EFFETS PROPRES AUX SOURCES

Nous étudierons dans ce chapitre, les effets dus uniquement aux imperfections des sources, entraînant un écart entre les valeurs de  $k_1$  et  $k_2$  et ceci même si l'instrument est sans défaut. Ces effets sont différents de ceux exposés dans les chapitres précédents où les défauts de l'appareil étaient entièrement ou en partie responsables de l'écart entre  $k_1$  et  $k_2$ .

Nous distinguerons trois sortes d'effets propres aux sources :

- 1\*)- Variations globales de la luminance (stabilité de la source)
- 2°)- Erreurs introduites par la raie B
- 3°)- Autoabsorption différente entre sources.

Pour palier tous ces défauts qui entraînent des erreurs ou qui nécessitent des corrections, nous avons cherché le moyen de rendre les conditions d'excitation des sources les plus semblables en construisant une source à cathodes creuses multiples.

### 9 - l. Variation globale de luminance (stabilité)

Les raies d'analyse sont enregistrées successivement. Pour que le rapport soit mesuré avec une précision supérieure à 1 %, il est nécessaire que la luminance globale fournie par la source reste constante à la même précision pendant tout le temps de l'analyse. Or, une telle stabilité de la décharge est difficile à obtenir; c'est ce qui nous a amenés, comme il a été signalé au paragraphe (2 - 3 - 3) à introduire un canal de référence (Fig. 4). Cette méthode s'est révélée nécessaire et satisfaisante; en effet, dans le fonctionnement des lampes à cathode creuse, on observe des variations lentes de la luminance de l'ordre de quelques pour cent par heure, trop grandes

pour la précision cherchée. Et d'une source à l'autre, cette variation n'a pas nécessairement ni le même sens, ni la même importance. L'une des principales causes de cette variation de luminance est la pression du gaz porteur qui varie en fonction :

- 1°)- de l'évaporation de l'azote liquide qui refroidit la source,
- 2°)- de la pulvérisation des atomes métalliques qui viennent se déposer sur la paroie et jouent le rôle de piège pour le gaz porteur dont la pression diminue ainsi avec le nombre d'heure de fonctionnement de la lampe. Ce phénomène est d'autant plus appréciable que le volume de la lampe est faible et que les courants de décharge sont forts.

On pourrait espérer corriger facilement ces variations de luminance en effectuant le rapport des signaux entre le canal d'analyse et le canal de référence. Mais on peut se demander quelle est la validité d'une telle correction faite sur deux canaux différents compte tenu de ce qui a été exposé au paragraphe (6 - 1 - 3).

Il peut arriver, lorsqu'on compare les deux sources, qu'on obtienne sur le canal de référence, deux signaux  $x_1$  et  $x_2$  et sur le canal de mesure, deux signaux correspondants  $y_1$  et  $y_2$  tel que :

$$\frac{x_1}{x_2} \neq \frac{y_1}{y_2}$$
 ou  $\frac{y_1}{x_1} \neq \frac{y_2}{x_2}$ 

Cet effet sera étudié plus en détail dans le paragraphe (11 - 4 - 1); ajoutons cependant, qu'il est sans incidence sur le résultat final puisqu'il est identique pour les composantes A, B et a d'une même source à condition, bien entendu, que la distribution de luminance dans une lampe, ne change pas au cours du temps. Nous avons vérifié cette dernière condition - tableau (XII) en observant la constance du rapport  $\frac{y}{x}$  pour chacune des sources en fonction d'une variation de pression.

### TABLEAU XIII

Pression de néon	2	1,5	1
y <sub>1</sub> / x <sub>1</sub>	0,,827	0,821	0,823
/ <sub>2 / <sup>x</sup><sub>2</sub></sub>	1,087	1,088	1,081

Le canal de référence est très utile pour corriger des différences entre  $k_1$  et  $k_2$  qui peuvent atteindre 2 % dans le cas où  $\frac{d}{dt} > 0$  et  $\frac{d}{dt} > 0$  (B étant la brillance de la source 1) mais cette correction ne

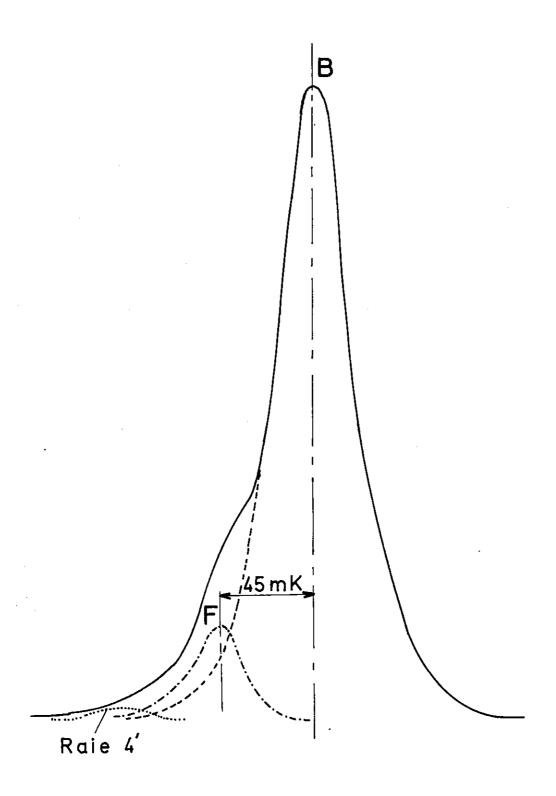
dt dt seral la brillance de la source l) mais cette correction ne sera effectuée qu'après s'être assuré de la stabilité de la bande passante du monochromateur.

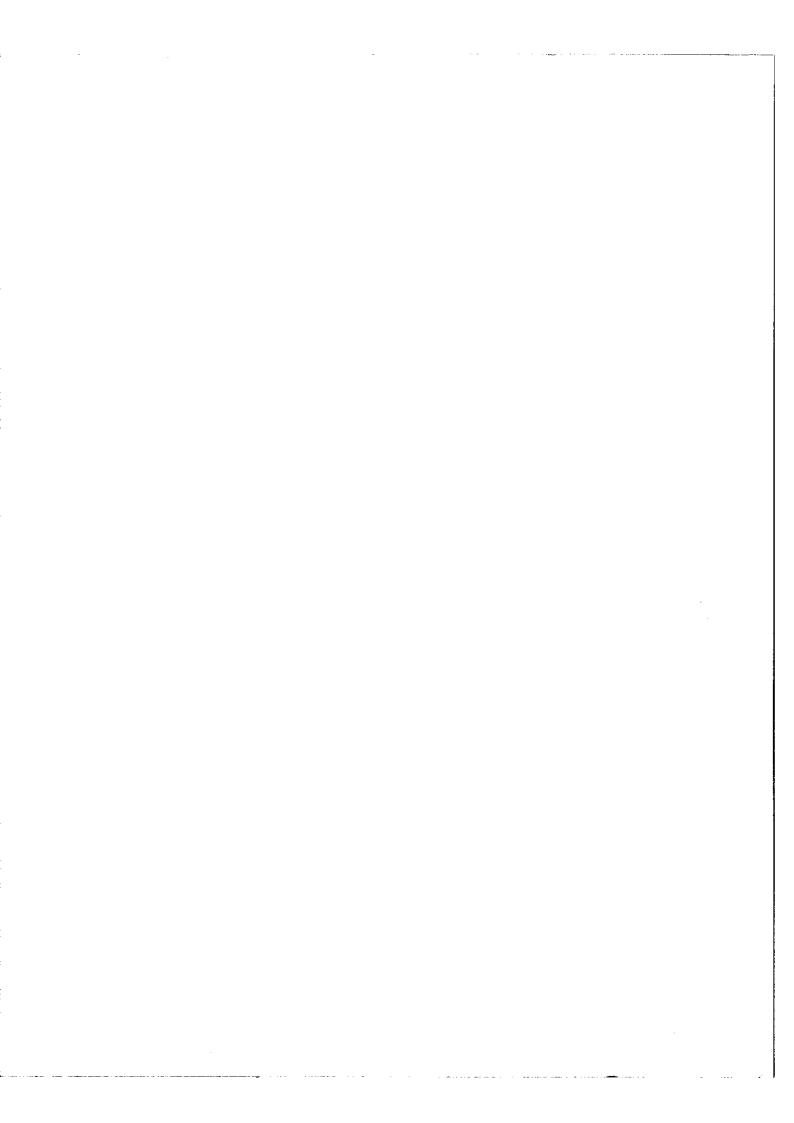
### 9 - 2. Erreurs introduites par la raie B

L'idée de vouloir comparer la raie a relative à l'isotope 235 directement à la raie B appartenant à l'uranium 238 en remplacement de A, était séduisante à priori, car nous savons que la raie A est nécessairement sujette à l'autoabsopption et que pour les faibles concentrations en uranium 235 les raies a et B avaient des intensités comparables. Cependant, cette tentative a dû être définitivement abandonnée et ceci pour deux raisons:

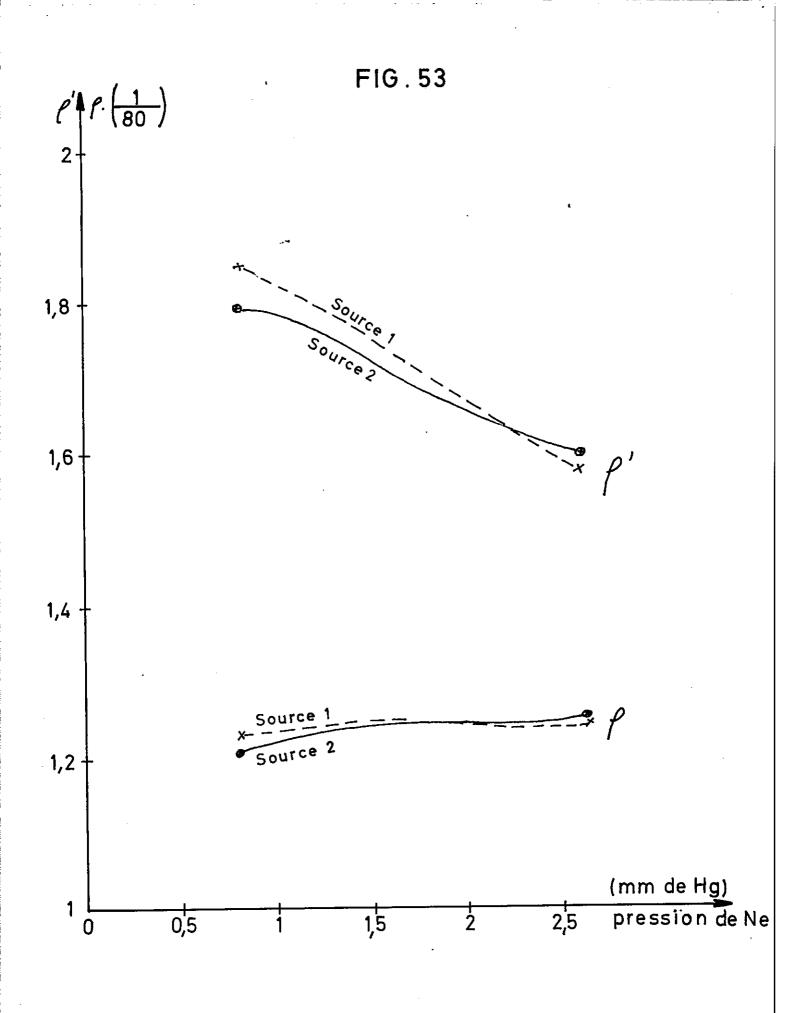
1°)- nous avons découvert que la composante B était accompagnée vers les grandes longueurs d'onde d'une autre raie d'intensité non négligeable et qui se trouve à 0,00% A de B. Ces deux composantes ne sont pas résolues étant donné la largeur de la fonction d'appareil utilisée (fig. 52).

FIG.52









2°)- Une étude systématique des intensités relatives des trois composantes a, A, B en fonction des conditions d'excitation des sources, a donné les résultats suivants pour les deux sources:

Une variation du courant d'alimentation de la cathode entraîne un changement des valeurs  $\rho$  et  $\rho$ '. Plus exactement, une augmentation de l'intensité du courant diminue la quantité  $\rho$  ceci sera étudié en détail au paragraphe suivant sur l'autoabsorption et augmente la valeur de  $\rho$ '.

De même une variation de la pression du gaz porteur modifie la valeur de :

$$\rho' = \frac{I_B}{I_a}$$
 et laisse le rapport  $\rho = \frac{I_A}{I_a}$  inchangé. (fig. 53)

Les variations de p'avec les deux paramètres (intensité du courant et pression) ne sont pas surprenantes puisque les deux raies a et B ont des niveaux supérieurs et inférieurs qui sont certainement différents.

La raie B doit donc être rejetée car elle introduit une imprécision supplémentaire sur  $k_1$  et  $k_2$  étant donné que les deux sources ne sont pas strictement identiques et la mesure des abondances ne pourra s'effectuer que sur les raies homologues A et a.

### 9 - 3. Autoabsorption

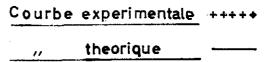
Nous avons déjà abordé ce problème dans la première partie de ce travail et nous avons rappelé que les raies d'analyse choisies devaient être sensibles à l'auto-absorption, puisqu'elles aboutissent au niveau fondamental. Il nous reste à déterminer l'importance et l'influence de ce phénomène sur l'identité des valeurs de k, et k,.

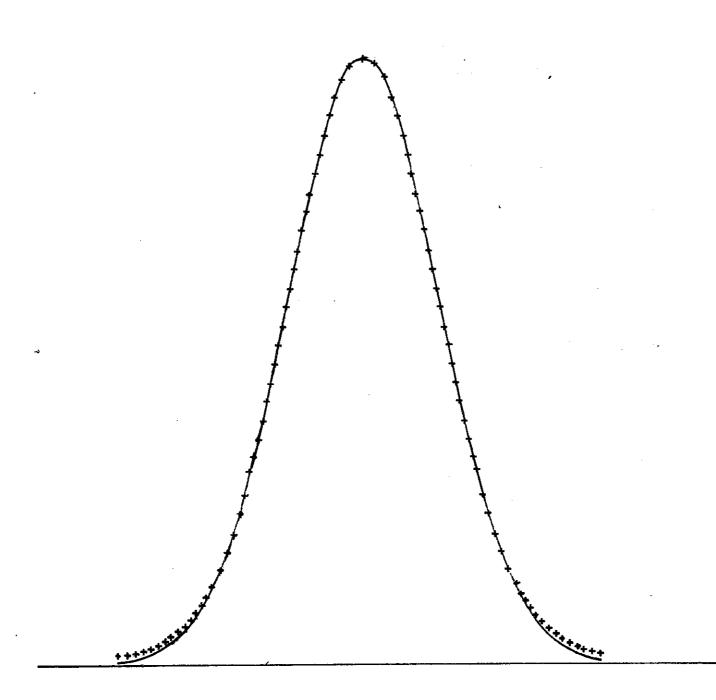
- 9 3 1. La première méthode que nous avons utilisée a été celle de l'étude du profil de la raie A avec une fonction instrumentale très fine. Le profil ainsi enregistré Y était alors comparé à une fonction de Gauss G. Cette courbe théorique G a été tracée graphiquement, point par point, en choisissant pour largeur et pour maximum d'amplitude les valeurs homologues de la fonction Y. Les deux courbes Y et G ainsi obtenues, se confondent exactement à la précision du tracé (fig. 54). Ce qui démontre que les raies émises ont un profil gaussien. Ce résultat ne nous permet pas de conclure ni à l'absence totale ni à la présence notable d'autoabsorption.
- 9-3-2. Deuxième méthode. Si nous nous reportons aux formules (3-4) nous remarquons que l'expression  $\frac{I}{I}$  pour les composantes A et a ne diffèrent que par la valeur de  $\mu$ .

Or, en maintenant l'hypothèse que la composante a a un profil proche de la fonction de Gauss, la formule (3 - 5) montre que les deux composantes. A et a ont des coefficients d'absorption ou qui ne varient que par la valeur de No. Rappelons que No. représente la population du niveau inférieur et que nous avons admis, par ailleurs, que le nombre d'atomes des différents isotopes dans un état donné est toujours proportionnel à leur abondance.

Nous étudierons donc uniquement la variation du rapport  $\rho$  des intensités  $I_A^{\wedge}/I_a$  en fonction du nombre d'atomes intervenant dans la décharge. Cette mesure pour être exacte, doit s'effectuer, soit avec un pouvoir de résolution très élevé, soit avec une fonction d'appareil de largeur équivalente à celle de la fonction source à condition de tenir compte de la variation de la transparence (paragraphe 6 - 2- 2). Mais nous pouvons négliger ces corrections dues à la transparence puisque nous nous intéressons surtout aux mesures relatives des  $\rho$ . Les mesures effectuées ont montré que l'autoabsorption augmentait avec le courant

FIG.54







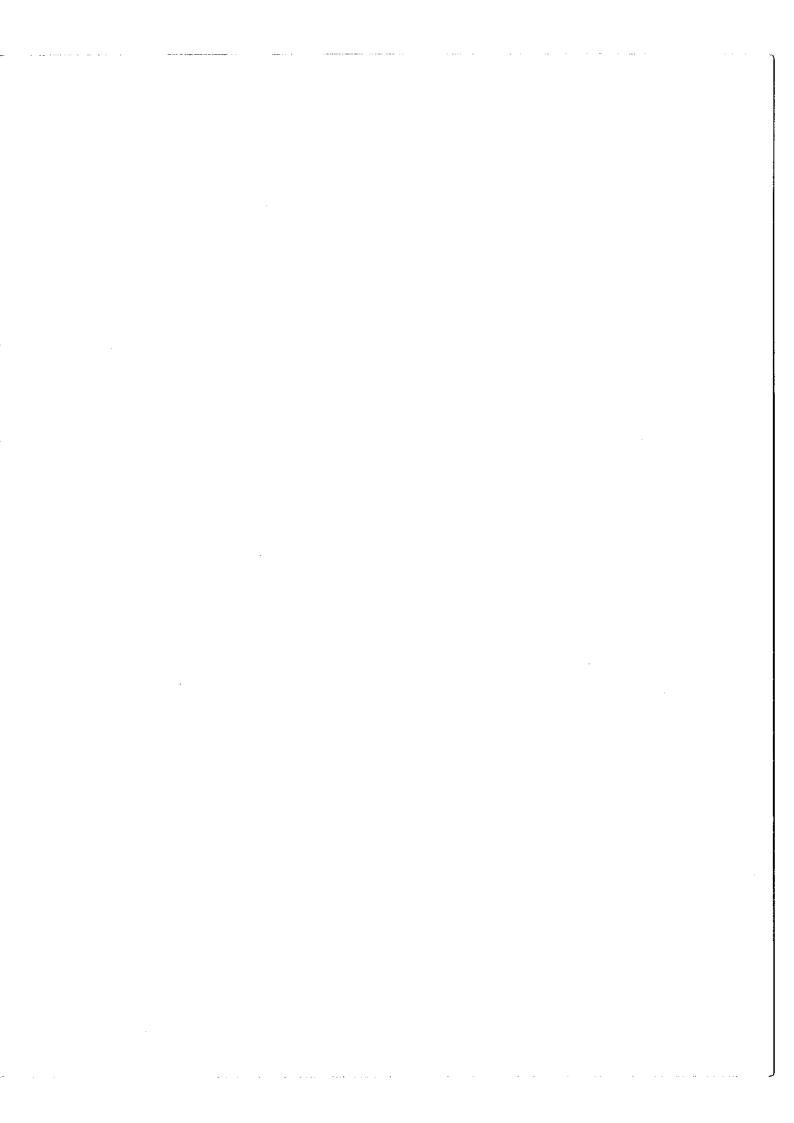
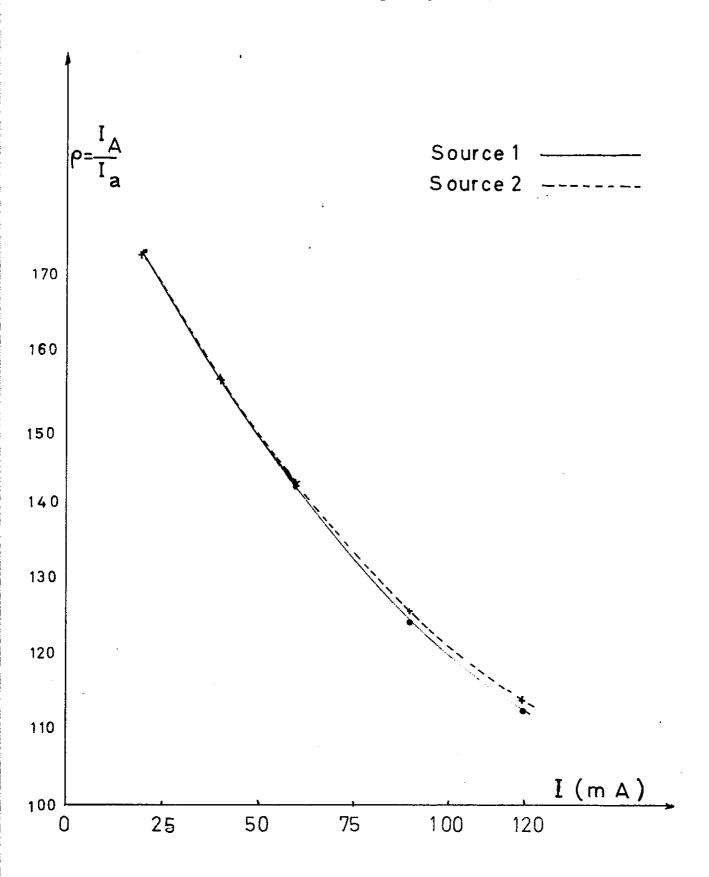


FIG. 55



d'alimentation des cathodes ce qui est attendu. Par ailleurs, deux cathodes différentes donnent deux courbes  $C_1$  et  $C_2$  (fig. 55) qui ne sont pas absolument confondues. La différence des ordonnées représente l'erreur  $\Delta$   $\delta$ (I) commise en passant d'une source à l'autre. Cette erreur peut atteindre 1,5 % elle n'est donc pas négligeable et il importe de la réduire en rapprochant au maximum les conditions d'excitation des sources.

### 9 - 4. Multicathode

Ayant abandonné la raie B, l'utilisation de la composante A exige que l'erreur qui entache son intensité et qui est due principalement à l'autoabsorption, soit la même quelque soit la cathode. Dans tous les phénomènes étudiés et qui incombent à la source, nous sommes toujours parvenus à la même conclusion: les sources doivent avoir les conditions d'excitation les plus "identiques" possibles.

C'est donc pour attribute à ce but, que nous avons construit une multi-cathode où les différentes sources qui la composent se trouvent placées dans les conditions les plus semblables. La figure 56 représente le schéma de la lampe qui a été réalisée et qui comporte quatre cathodes placés dans la même enceinte.

De grandes précautions ont été, par ailleurs, prises pour donner aux sources constituant cette nouvelle lampe la même géométrie et des positions des anodes par rapport aux cathodes qui soient identiques. En effet, la distribution de luminance dans une cathode creuse dépend de la forme de l'anode ainsi que de la position de cette dernière par rapport à la cathode, les résultats de cette étude seront discutés dans le paragraphe (10 - 4).

Malgré tous les soins qui ont été apportés à la réalisation de la nouvelle lampe, nous remarquons encore deux phénomènes dont l'interprétation exacte nous échappe.

- a)- les pressions optimums du gaz porteur pour les différentes sources ne sont pas égales tel que le montre la figure 57 et ceci pour le même courant d'alimentation.
- b)- quand on compare les caractéristiques des deux sources 1 et 2, V = f(I) (V étant la différence de potentiel aux bornes de la lampe et I l'intensité) et à pression de néon constante, on remarque que les courbes ne coincident pas exactement (fig. 58).

### 9 - 5. Résultats obtenus avec cette source

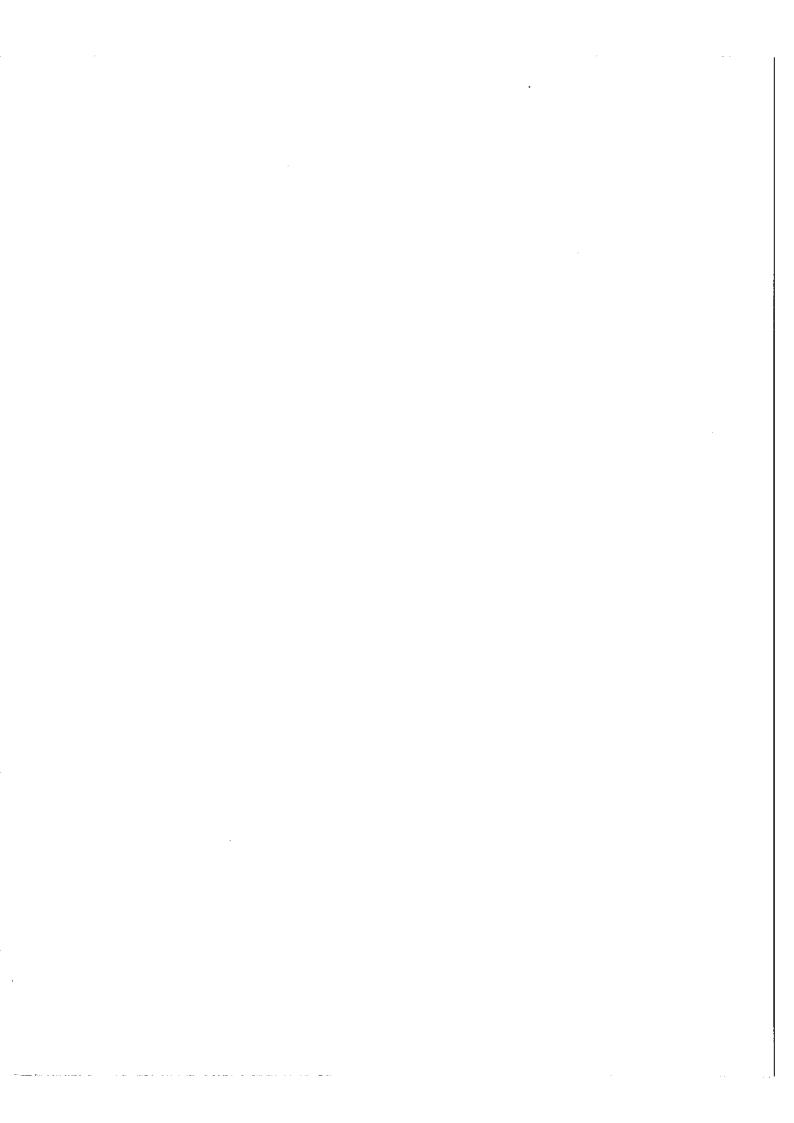
Tous les défauts que nous avons rencontrés dans les Chapitres VI et IX dus aux imperfections de la source ou aux différences entre sources supposées "identiques" ont été minimisés grâce à la multicathode. En effet, les résultats obtenus sur la mesure de prontrent que les conditions desxdifátion des chifférentes cathodes sont beaucoup plus voisines que dans les sources décrites précédemment au paragraphe (4 - 2). En particulier, pour un même courant et une même pression, les brillances des quatre cathodes ont des valeurs comparables.

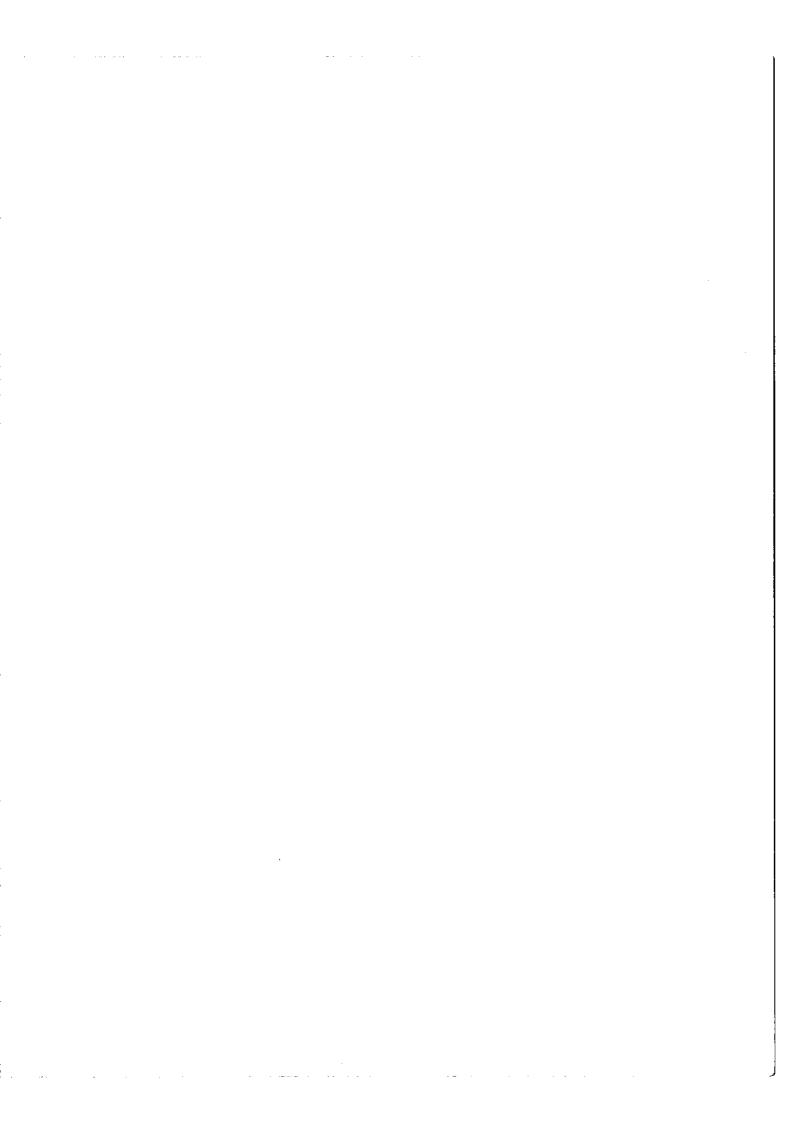
Le tableau XIV résume une série de mesures effectuées dans ces conditions.

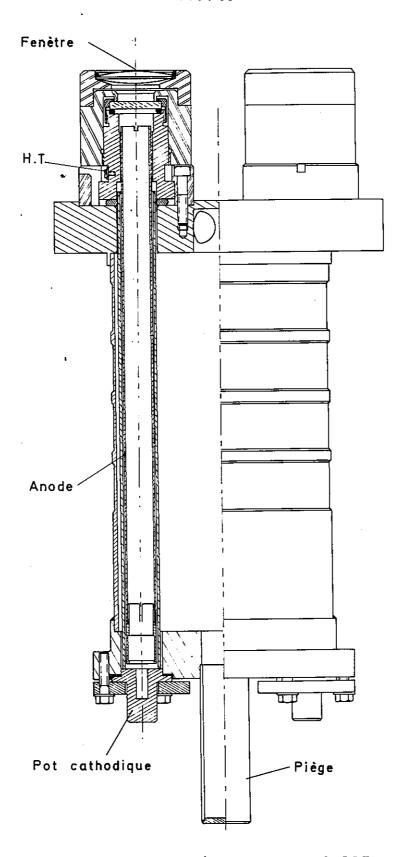
La précision sur la détermination de  $\rho$  est limitée maintenant principalement par le rapport signal/bruit de nos enregistrements, en particulier la composante a dont le rapport signal/bruit n'est que dell'ordre de 20.

Pour améliorer les mesures, par intégration des signaux et pour démit :nær le temps d'analyse, nous avons entrepris la réalisation d'un instrument ne comportant pas de balayage dans le temps. Le principe et la réalisation de cet instrument, le quantomètre F.P, est l'objet de la 3ème partie de ce mémoire.

 	H	н	Ħ	H	ij		ij	н	II	н	Ħ	 Н	Ħ		II	н	II	н	lα	
	I 167	187,5	165,5	186,5	I 164,5	186,5	165,9	188,2	175,5	195,7		195,2	170,75	190,5	[ 171	189,25	175	189,5	Intensité mesurée B	
	72,5	89,4	71	88,5	72,1	88,6	72,9	90	78,7	91,9	78,8	95,5	75,1	92,6	76	92,5	76	91,2	Réf.	
	2,303	2,097	2,330	2,107	2,281	. 2,104	2,275	2,091	2,229	2,129	2,189	2,043	2,273	2,057	2,250	2,045	2,302	2,077	Intensité corrigée de B	
	107,7	121,5	107	119,5	106,5	120,5	107	120,5	114,2	128,1	112,3	126,5	110,5	120,25	108,5	120,2	112	122	Intensité mesurée <u>a</u>	
	71,2	90	71,2	88,7	71,7	88,8	71,8	88,2	79	96,2	77,9	95,5	76,2	93	76,5	92,6	76,6	91,3	Réf.	
	1,512	1,350	1,502	1,347	1,485	1,356	1,490	1,366	1,445	1,331	1,441	1,324	1,450	1,293	1,418	1,298	1,462	1,336	Intensite corrigée de a	TABLEAU XIV
	172,9	195,25	171	191,8	170	190,1	169,9	189,1	183,8	205	178,9	200	176,7	196	174	193,1	174,7	193,5	Intensite mesurée <u>A</u>	XIV
	72	89,8	72	89	71,5	89,1	71,5	88,2	79,6	97	79	96,2	77,3	93,5	76,5	93,3	74,8	91,5	Réf.	
	2,401	2,174	2,375	2,155	2,377	2,133	2,376	2,143	2,309	2,113	2,264	2,079	2,285	2,096	2,274	2,069	2,335	2,1114	corrigée de A	
	1,523	1,553	1,551	1,564	1,536	1,551	1,526	1,530	1,542	1,599	1,519	1,543	1,567	1,590	1,586	1,575	1,574	1,554		
	1,587	1,610	1,581	1,599	1,600	1,573	1,594	1,568	1,597	1,587	1,571	1,570	1,575	1,621	1,603	1,593	1,597	1,582	$\rho = \frac{\lambda_{3}}{I}$	•
		1,0196	1,0012	1,0083	1,0182	1,0097	1,0163	1,0026	0,9922	1,0369	1,0526	1,0157	0,9846	1,0146	1,0025	0,9930	1,0006	0,9237	r.	
		1,0144	1,0103	1,0113	0,9993	0,9831	0,9868	0,9836	0,9818	0,9937	1,0101	0,9993	0,9968	1,0292	1,0112	0,9937	0,9974	0,9906	r	







SCHEMA D'UNE MULTICATHODE

FIG. 57

8

ဝ္ဓ

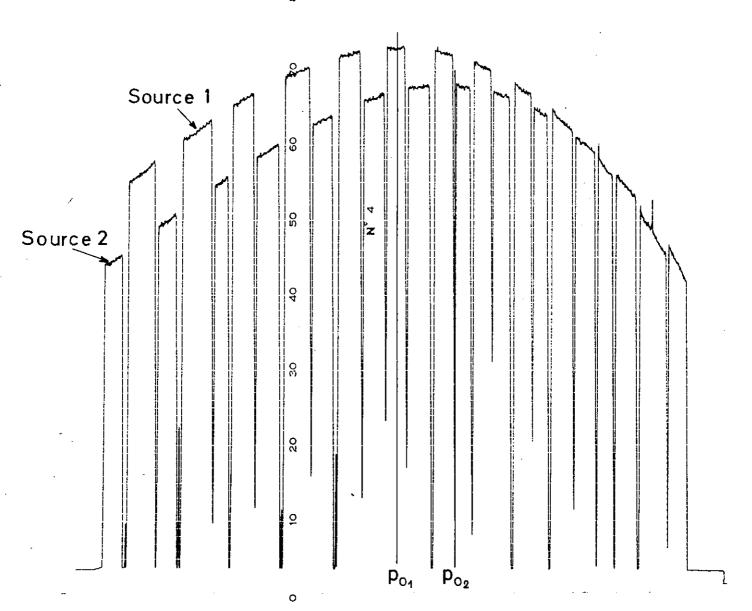
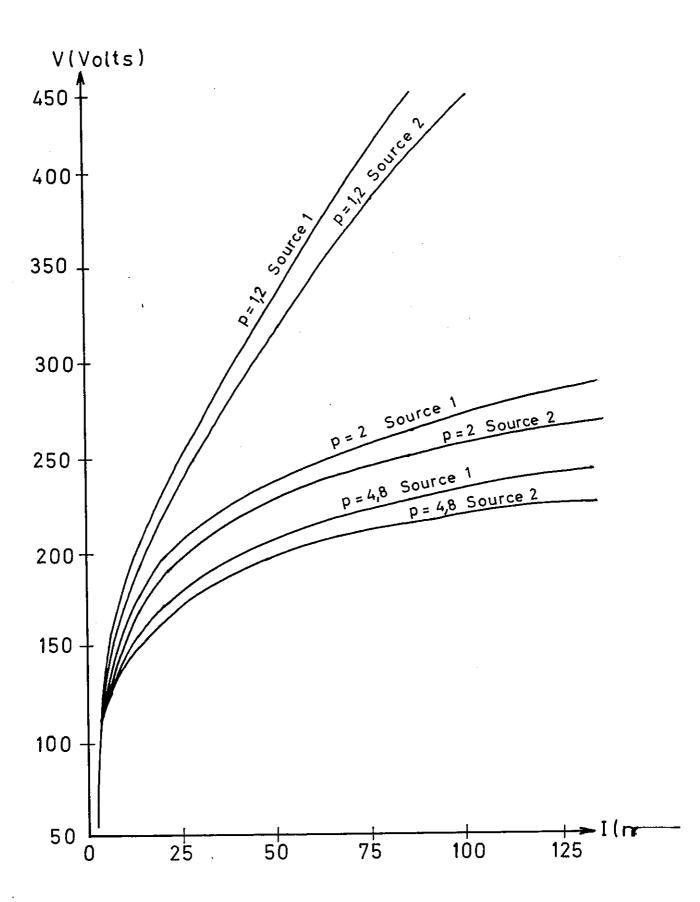
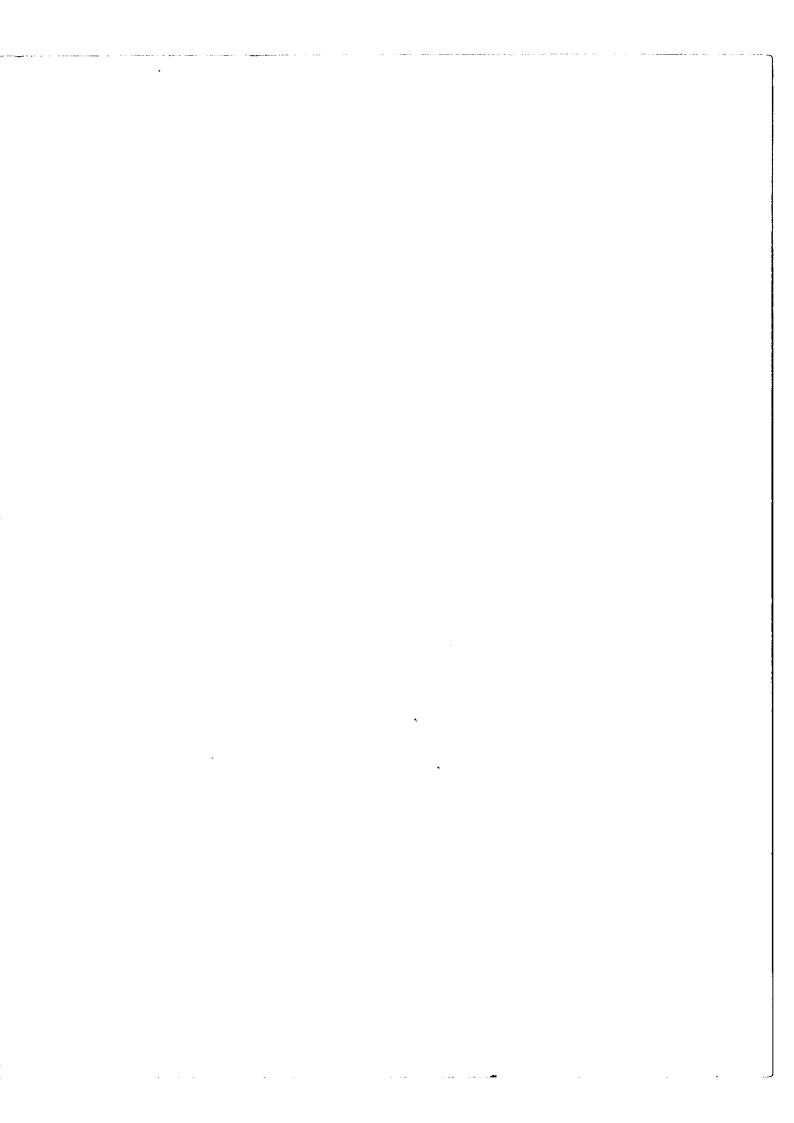




FIG. 58





#### TROISIEME PARTIE

### QUANTOMETRE F.P

#### Introduction

Pour effectuer des dosages isotopiques, le quantomètre F.P. décrit dans ce mémoire présenté par rapport à l'HYPEAC, deux avantages; le premier est la simultanéité des mesures des intensités de chacune des raies isotopiques (ce n'est pas un appareil de balayage), le deuxième est une plus grande luminosité. Bien que le monochromateur du quantomètre fournisse une bande passante plus étroite, le gain de luminosité tient au fait que le monochromateur à réseau de l'HYPEAC est remplacé dans le quantomètre par un F.P

Par contre, le domaine d'utilisation d'un quantomètre en spectroscopie est très restreint comparé à celui de l'HYPEAC.

C'est à partir des résultats obtenus au cours de l'étude effectuée dans la deuxième partie de ce travail que nous avons entrepris la réalisation de ce quantomètre.

#### CHAPITRE X

#### QUANTOMETRE A DEUX CANAUX

### 10 - 1. Principe du Quantomètre F.P

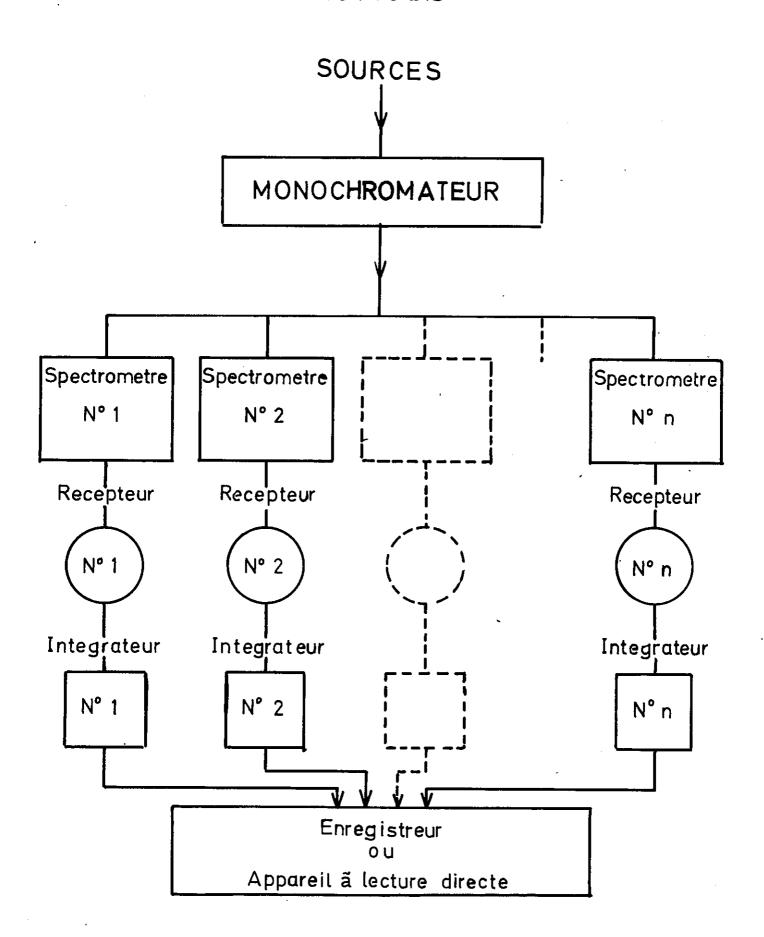
Comme tout quantomètre, l'appareil va comporter autant de récepteurs que de composantes spectrales à mesurer et il sera constitué en fait, par un certain nombre de spectromètre F.P placés en parallèles, chacun d'eux étant centré sur une composante déterminée. Ces spectromètres sont par ailleurs, précédés par un monochromateur commun constitué par l'association d'un filtre interférentiel et d'un F.P de faible épaisseur (fig. 58 bis). Les flux lumineux sortant de chacun des spectromètres sont recueillis par les différents récepteurs et les signaux auxquels ils donnent naissance sont envoyés à des intégrateurs. La mesure des tensions aux bornes de ces intégrateurs peut être, soit enregistrée sur un millivoltmètre, soit transmise à des appareils à lecture directe.

#### 10 - 2. Description du Quantomètre

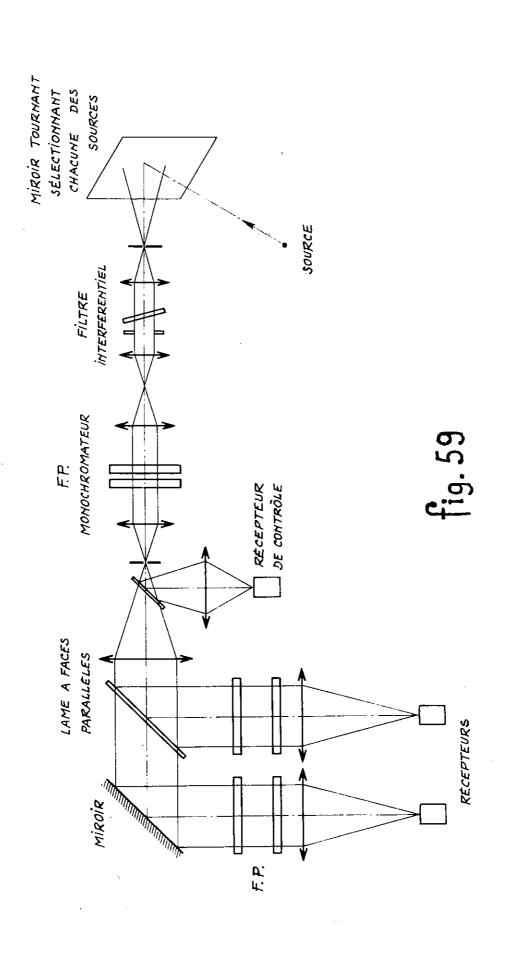
L'instrument réalisé a été adapté à la mesure des abondances isotopiques de l'uranium naturel, problème qui a été déjà étudié sur l'HYPEAC et dont toutes les données nous sont familières. Les composantes d'analyses appartiendront à la raie 5027 A du spectre d'arc et les mesures d'abondance seront évidemment des mesures relatives qui nécessiteront l'usage de deux ou plusieurs sources.

Cet appareil ne dose que les deux isotopes 238 et 235 de l'uranium. Dans un premier temps, il comporte uniquement deux canaux, la figure 59 en donne le schéma optique.

FIG. 58 bis







### 10 - 2 - 1. La source

C'est la lampe à cathode creuse dont il a été question au paragraphe (9 - 4) les 4 cathodes fonctionnent en parallèle et contiennent le même échantillon. Ceci devent nous permettre de vérifier l'identité du facteur k intervenant dans la formule (4 - 1) pour les différentes sources. Au dessus de chaque source est placé un miroir M<sub>1</sub> qui renvoie le faisceau lumineux au centre d'un miroir M<sub>2</sub> tournant autour d'un axe vertical. Ce miroir M<sub>2</sub> nous permet de sélectionner l'une quelconque des cathodes. Il est nécessaire que le faisceau réfléchi par ce miroir M<sub>2</sub> et provenant de n'importe quelle source, soit confondu avec l'axe de rotation afin de satisfaire la condition invoquée dans le paragraphe (5 - 2), ce réglage important se fait une fois pour toute.

### 10 - 2 - 2. Le monochromateur

Il est constitué par l'association de deux éléments : le filtre interférentiel et un interféromètre F.P

a)- le filtre interférentiel découpe dans le spectre une bande passante dont la largeur à mi-hauteur  $\Delta\lambda_{F.I}$  est de 9 Å et dont le maximum de transmission est fixé sur la longueur d'onde 5030 Å . C'est un filtre "Grubb Persons"; sa transparence moyenne est de 33 %. Pour centrer la bande passante sur la raie d'analyse qui est à 5027 Å on est conduit à lui donner une légère inclinaison par rapport à la perpendiculaire au faisceau.

Ce filtre pourrait, à lui seul, servir de monochromateur dans le cas de l'étude d'un spectre pauvre en raie; mais il est nécessaire ici, comme on l'a vu au chapitre VII d'affiner sa bande passante par l'introduction d'un F.P en série, le spectre étant excessivement dense.

Une étude précise de la fonction de transmission de ce filtre a été faite, elle nous a permis de déterminer l'importance des pieds de cette fonction de transmission, surtout quand le filtre est traversé par un faisceau d'ouverture non négligeable. Le tableau XV groupe les résultats obtenus. La bande passante est aussi fonction de la surface couverte par le faisceau, car nous avons observé que ce filtre n'est pas parfaitement homogène.

### b)- le Fabry-Perot monochromateur

Si le monochromateur à réseau présente l'inconvénient fondamental de ne pas fournir l'étendue acceptable par les F.P résolvants, le monochromateur F.P possède lui aussi un inconvénient différent; celui de transmettre des pics parasites distants de  $\Delta G_{F.P.M}$ ° Si le pic principal a pour intensité 1000, nous voyons sur le tableau XV qu'il faut prendre un F.P d'i.s.l. égal à 110 Å pour que les premiers pics parasites aient une contribution inférieure à 1 ‰ par rapport à l'intensité utile. Or, un tel F.P aura une épaisseur de 10 microns; des cales de cette épaisseur sont actuellement difficiles à réaliser et sa bande passante sera trop large pour être admise toujours à cause de la densité du spectre de l'uranium.

Nous sommes donc conduits à admettre ces pics de transmission parasites, cependant en tenant compte des données particulières de notre problème, nous pouvons réduire leur inconvénient.

C'est ainsi que nous avons été amenés à prendre des lames de F.P distantes de 0,01 cm (ce qui correspond à un  $\Delta \sigma_{\text{F.P.M.}} = 50 \text{ cm}^{-1}$ ) munies d'un revêtement diélectrique de 7 couches.

Pour assurer la stabilité de ce F.P monochromateur, il était nécessaire d'utiliser des cales en silice qui adhèrent optiquement aux lames du F.P

TABLEAU XV

	į	Transmis		Transmission				
		(Faisceau par		(Faisceau avec faible ouverture)				
Maxim	u m Dîstance du sommet	100	JO	1	000			
en A	en i.s.l. du F.P.	vers みゝ0	vers $\lambda$ $<$ $\circ$	vers $\lambda > 0$	vers $\lambda < O$			
2,45		811,8	811,8	838	838			
4,90		523,5	523,5	530,8	530,8			
7,35		276,8	276,8	325,4	325,4			
9,80		173,9	173,9	219,3	219,3			
12,25		112,2	120,6	157,2	169,8			
	er ordre	106	108		·.			
17,15		65,8	68,3	100	103,4			
20,05		42,12	42,1	70,8	69,1			
<del></del>	eme ordre	30,5	30,5	: .				
26,95	11. 基本版 11. 技术	28,1	28,1	53,4	53,4			
31,85		20,6	21,5	41,9	41,9			
36,75		15,2	16,5	34,8	33,9			
	eme ordre	13,5	13,4					
41,65		11,6	11,4	29,6	27,6			
46,55		9,2	10,7	25,7	23 24			
51,45	1 - 1 - 1 - 1 - 1 - 1 - 1 - 1 - 1 - 1 -	7	8,5	22,2	19,6			
	me ordre	6,8	7					
58,80	me ordre	5,3	6,3	18,3	15,7			
68,61	l ordre	3,6	4,8	14,8	12			
78,41		2,6	3,4	12,3	9,3			
88,21		2	2,6	10,7	7,7			
98,01		1,4	2,2	9,4	6,0			
107,81		1,1	2	8,7	4,9			
117,62		0,8	1,6	7,9	4			
•								
	I		.1	-L	ل			

. • L'exécution de ces cales est soumise à deux conditions :

1°)- Pour explorer avec la bande passante du F.P monochromateur, la raie : 5027 A, (et ceci pour une variation de pression comprise entre 0 et une atmosphère) il l'épaisseur des cales soit voisine de :

$$e \# \frac{p \lambda}{2 n}$$
 avec  $\lambda$  = 5027,385 Å

et p nombre entier de l'ordre de 400

 $2^{\circ}$ )- En outre, ces cales doivent être égales entre elles avec une précision supérieure à  $\lambda/30$ , car elles sont d'épaisseur si faible que la latitude de réglage de l'étalon F.P par pression sur ces cales, est négligeable.

Nous avons enregistré de grandes finesses avec le F.P monochromateur, de l'ordre de 50. Ceci s'explique par le fait qu'on utilise une très faible partie de la surface des lames. En effet, on a (17):

$$s_{M} = \frac{R_{M}}{R_{R}} - s_{R}$$

S<sub>M</sub> : surface du monochromateur couverte par lerfaisceau

Sp : surface utilisée des F.P résolvants

 $R_{M}$  &  $R_{R}$ : Résolvance du monochromateur et du quantomètre

# Application múmatéřiqie

$$R_{M}$$
: 20.000  $R_{R}$ : 360.000

$$d^{\dagger}o\tilde{u} S_{M} / S_{R} = 1/18$$

La surface utilisée sur le Fabry-Perot monochromateur est donc 18 fois plus faible que celle des Fabry-Perot résolvants.

# 10 - 2 - 3. Circuit de positionnement de la bande passante du F.P monochromateur

Pour vérifier dans certains cas, la position de la bande passante du F.P monochromateur, par rapport à la raie d'analyse, nous avons introduit une lame à faces parallèles, escamotable qui prélève, soit d'une façon continuelle, soit d'une manière provisoire, une faible fraction du flux lumineux issu du monochromateur pour l'envoyer sur une cellule auxiliaire (fig. 59).

# 10 - 2 - 4. Spectromètres résolvants

Les deux F.P résolvants placés en série sont traversés par deux faisceaux lumineux provenant d'un seul faisceau principal, ce dédoublement est obtenu par une division de la brillance du faisceau principal comme le montre la fig. 59.

Toute la surface des F.P résolvants est traversée par la lumière, l'utilisation de l'étendue maximum est rendue possible grâce à la nature de monochromateur. Les deux spectromètres ainsi réalisés ne nécessitent pas de description plus longue; ajoutons, toutefois, que leurs intervalles spectraux  $\Delta \sigma_{\rm R}$  doivent obéir à une condition supplémentaire afin de supprimer les pics parasites les plus importants du F.P monochromateur :

$$\Delta \sigma_{R} \# \frac{2}{2n+1} \Delta \sigma_{Monochromateur}$$

Ceci nécessite la connaissance précise de  $\Delta U$ , l'i.s.l. du monochromateur. Ce point sera examiné ci-dessous - paragraphe 10 - 3.

Les récepteurs qui accompagnent les spectromètres sont des photomultiplicateurs R.C.A. de type 1P 21. Le refroidissement à l'azote liquide annule le courant d'obscurité, ce qui constitue une nécessité quand on intègre les signaux; par contre nous perdons en seppirititétant/i cui le prefer the represent ces à l'apparent.

# 10 - 2 - 5. Système optique de conjugaison

Nous avons tenu compte comme pour l'HYPEAC des produits des inhomogénéttés de la source et de la fenêtre d'une part et des différentes pupilles des éléments interférentiels, d'autre part, pour conjuguer entre elles bes pupilles de chaque ensemble tel que le montre la figure 59.

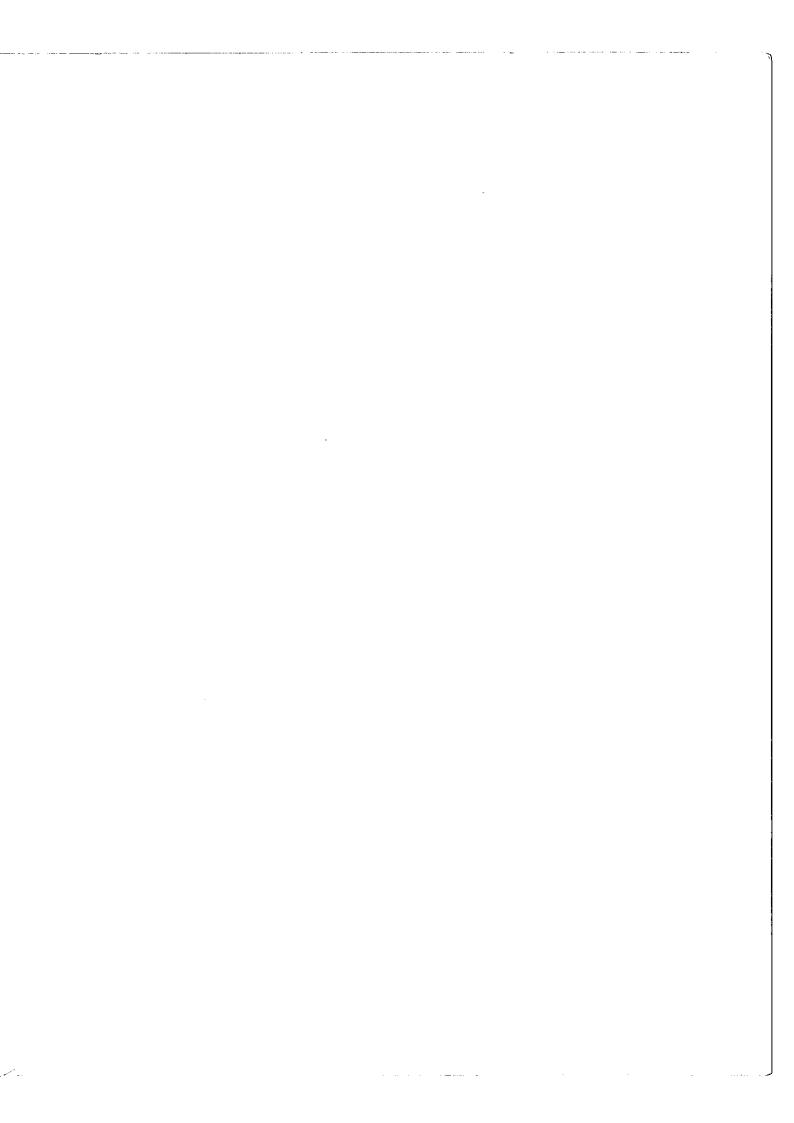
Tous les F.P sont conjugués avec la fenêtre de la cathode; quant à la tache cathodique, elle est conjuguée avec les diaphragmes isolateurs des différents F.P et avec les récepteurs. La surface utilisée sur la photocathode est très réduite afint de diminuer les variations de sensibilité (21).

# 10 - 3. Détermination de l'épaisseur du F.P monochromateur

Cette détermination doit tenir compte, à la fois, du profil fourni par le filtre interférentiel (tableau XV) et du spectre de l'élément à étudier.

Nous avons étudié le spectre de l'uranium dans un domaine de 200 Angströem et relevé les longueurs d'onde de toutes les raies intenses. L'épaisseur est choisie en fonction de ce relevé pour éviter que l'un des pics parasites ne vienne coincider avec l'une quelconque de ces raies.

C'est ainsi que nous avons vérifié que l'épaisseur des cales qui étaient à notre disposition (e = 0,01 cm), remplissait bien les conditions nécessaires pour supprimer la majorité des raies parasites.



#### CHAPITRE XI

#### QUANTOMETRE A PLUSIEURS CANAUX

Supposons que l'on désire mesurer les abondances isotopiques d'un échantillon d'uranium ou d'un autre élément possédant cette fois plus de deux isotopes. Il est nécessaire, dans ce cas, que le quantomètre comporte autant de canaux que d'isotopes à analyser; ceci peut être réalisé de deux façons :

- a)- soit par division de brillance successive comme dans l'exemple étudié dans le chapitre précédent,
- b)- soit par séparation spéciale en utilisant toute l'étendue que les sources peuvent fournir.

Nous allons étudier successivement les deux cas.

# 11 - 1. Cas d'une séparation spatiale - Exemple avec deux canaux -

L'instrument réalisé est représenté par la figure 60, les canaux C<sub>1</sub> et C<sub>2</sub> utilisent des sections différentes du monochromateur (filtre et F.P) ainsi que du faisceau principal ce qui va entraîner certaines conséquences pour le problème qui nous intéresse.

## 11 - 1 - 1. Effet sur l'échelle des fréquences

Chaque canal analysera une plage différente du F.P monochromateur et du filtre; si ces derniers étaient parfaits, le résultat serait identique et les deux

fonctions de transmission à travers C<sub>1</sub> et C<sub>2</sub> seront confondues.

Or, ni le F.P ni le filtre ne sont parfaits et comportent des défauts de planéité (et autres) qui contribueront à différencier les deux fonctions de transmission du monochromateur : l'épaisseur optique n'étant pas la même, les deux axes de symétrie des fonctions de transmission  $T_1$  et  $T_2$  se produiront pour des longueurs d'ondes différentes; ce résultat a été effectivement enregistré (fig. 61). Il ne représente pas un inconvénient de la méthode, bien au contraîre, on peut l'exploiter pour que chaque canal transmette une composante de mesure avec le maximum de transparence :

Un défaut de la planéité moyenne entre les deux plages de  $\lambda$ /250, ce qui est peu, entraîne un déplacement des deux bandes passantes du monochromateur de 400 mk, c'est-à-dire, la distance de la raie A et a de l'uranium.

# 11 - 1 - 2. Effet sur les flux lumineux

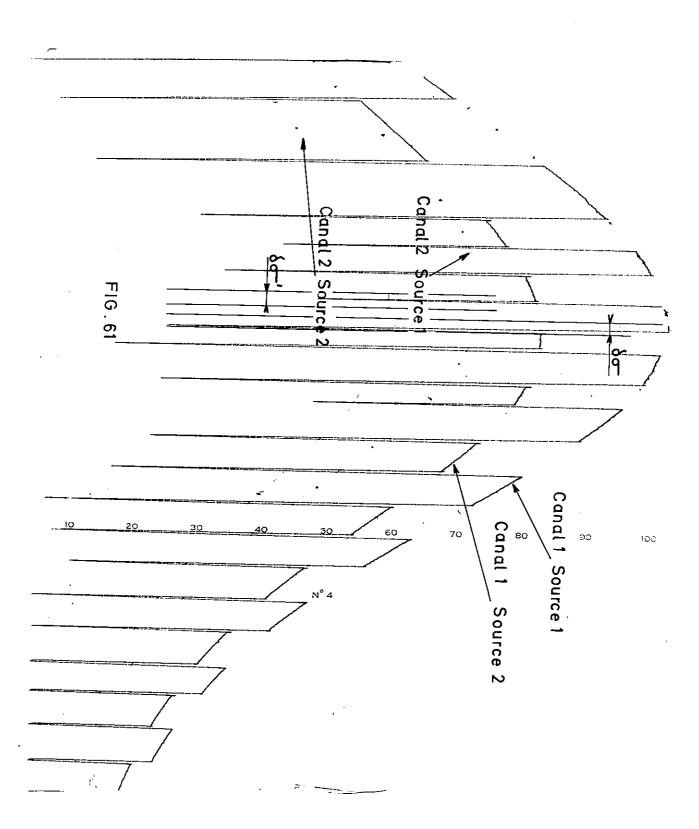
Considérons la raie A et étudions les signaux donnés par cette composante à travers les deux canaux  $C_1$  et  $C_2$ . Supposons, par ailleurs, que les deux faisceaux qui transitent le long de  $C_1$  et  $C_2$  soient limités par des surfaces égales.

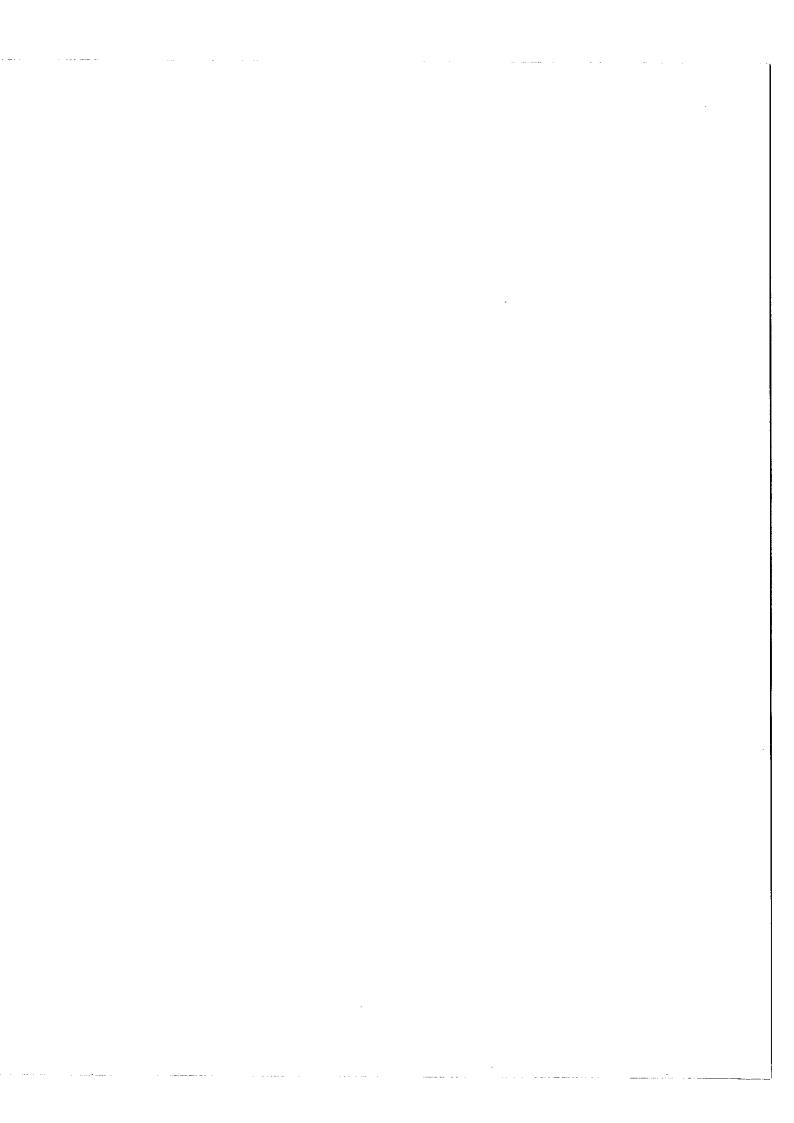
L'expression du flux recueilli par les cellules s'écrit pour la cathode 1 :

$$\bigoplus_{\Omega, B_1(\Omega)} = \iint_{\Omega, B_1(\Omega)} B_1(\Omega) \quad \text{s } \mathcal{T} \quad d \Omega \quad \text{pour le canal } 1$$

$$\bigoplus_{\Omega, B_1(\Omega)} B_1(\Omega) \quad \text{s } \mathcal{T} \quad d \Omega \quad \text{pour le canal } 2$$

(s représentant la surface du trou d'entrée, C la transparence de l'appareil et d A l'angle solide élémentaire).

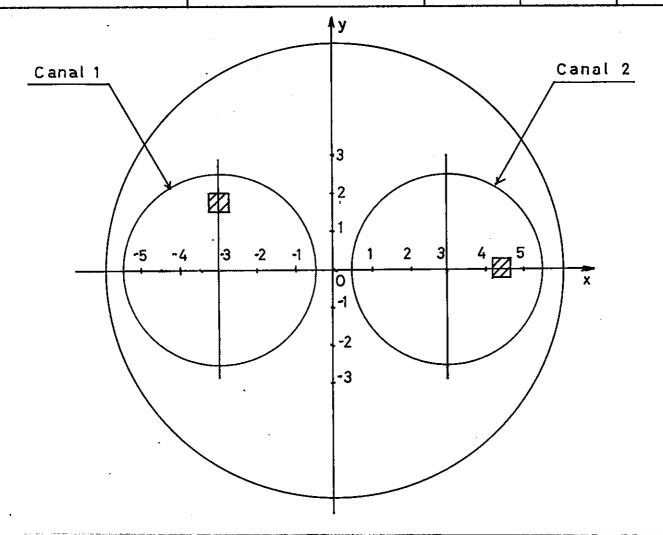




,

TABLEAU XVI

Coordonnées de la surface élémentaire sur le canal 1	Coordonnées de la surface élémentaire sur le canal 2	42	Ψ <sub>2</sub>	Ψ <sub>1</sub> / <sub>Ψ<sub>2</sub></sub>
x = - 1 y = 0	x = 1  y = 0	1,09	1,14	0,95
$x = -5 \qquad y = 0$	x = 1 y = 0	0,64	0,54	1,18
x = -1 y = 0	x = 5  y = 0	1,71	1,54	1,11
x = - 3 y = 2	x = 3  y = 2	0,75	0,68	1,10
x = -3 y = -2	x = 3  y = 2	0,81	0,83	0,97
x = - 3 y = -2	x = -3 $y = -2$	1,19	1,13	1,05
$x = -3 \qquad y = 2$	x = 3  y = -2	1,18	1,10	1,07
x = - 5 y = 0	x = 5  y = 0	1,04	0,76	1,36



Pour la cathode no 2, nous aurons de même :

$$\oint_{\Omega_{1}} B_{2}(\Omega) s \approx d\Omega \quad \text{pour le canal 1}$$

$$\oint_{\Omega_{2}} B_{2}(\Omega) s \approx d\Omega \quad \text{pour le canal 2}$$

B<sub>1</sub> et B<sub>2</sub> représentant la distribution de luminance des cathodes 1 et 2; qui n'est pas uniforme (paragraphe 6 - 1) ce qui entraîne généralement :

$$\frac{\Phi_{11}}{\Phi_{12}} \neq \frac{\Phi_{21}}{\Phi_{22}^2}$$

Ce résultat a été vérifié par des mesures photoélectriques faites sur des flux élémentaires :

d = Bs & d \Omega

Si 
$$\varphi_1$$
 représente 
$$\frac{d \, \varphi_{11}}{d \, \varphi_{12}} \quad \text{et} \, \varphi_2 = \frac{d \, \varphi_{21}}{d \, \varphi_{22}}$$

Le tableau XVI résume les valeurs obtenues pour  $\varphi_1$  et  $\varphi_2$  ceci en combinant différentes surfaces élémentaires sur chaque canal.

Que la luminance ne soit pas uniforme n'est pas très important, nous obtiendrons:

 $\varphi_1 \quad \text{et } \varphi_2 \quad \text{différents de l'unité. Mais ce qui est grave et condamne la méthode, c'est l'inégalité des } \varphi_1 \quad \text{et } \varphi_2.$ 

Exemple. - Supposons que la distribution de luminance pour les sources 1 et 2 soit celle qui est représentée sur la figure 62, cas simplifié ou les deux canaux sont éclairés suivant un diamètre de faible largeur. Dans ce cas, l'expression du flux

peut être facilement intégrée et sa valeur sera égale dans chaque cas à la surface rayée de la figure 62. Il est manifeste que  $\frac{21}{\sqrt{12}}$  est bien différent de  $\frac{21}{\sqrt{22}}$  Cette expérience a été effectivement réalisée en utilisant des filtres mentrés où la transparence varie linéairement.

## 11 - 2. Cas d'une division par brillance

C'est le cas déjà décrit au paragraphe (10 - 2) qui utilisait deux canaux. Nous allons étudier si sa généralisation pour n canaux est possible. Soit un quantomètre schématisé par la figure 63, tous les canaux enregistreront simultanément la même bande passante du monochromateur. Supposons que cette bande passante transporte à un instant donné un flux  $\oint$  et que les différentes lames semi-transparentes  $L_1$ ,  $L_2$  ...  $L_{n-1}$  soient identiques et possèdent un pouvoir réflecteur égal à r

Dans ce cas, le premier canal reçoit le flux 
$$r$$

le deuxième canal reçoit le flux  $r$ 
 $r$ 
 $r$ 

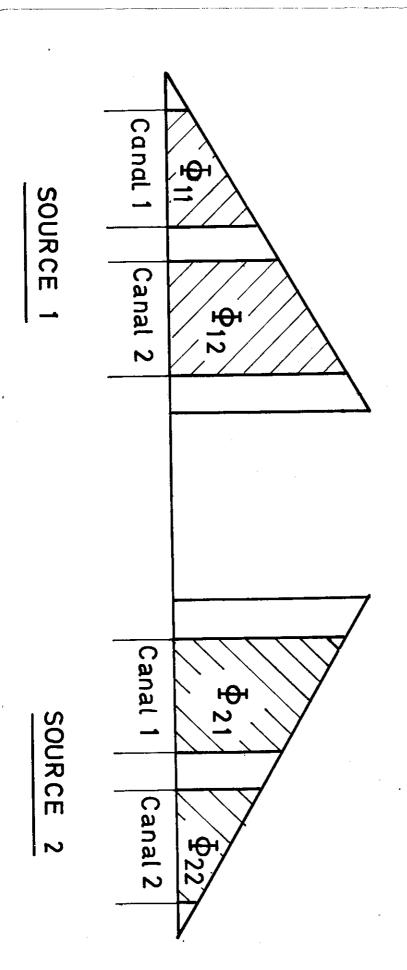
le p

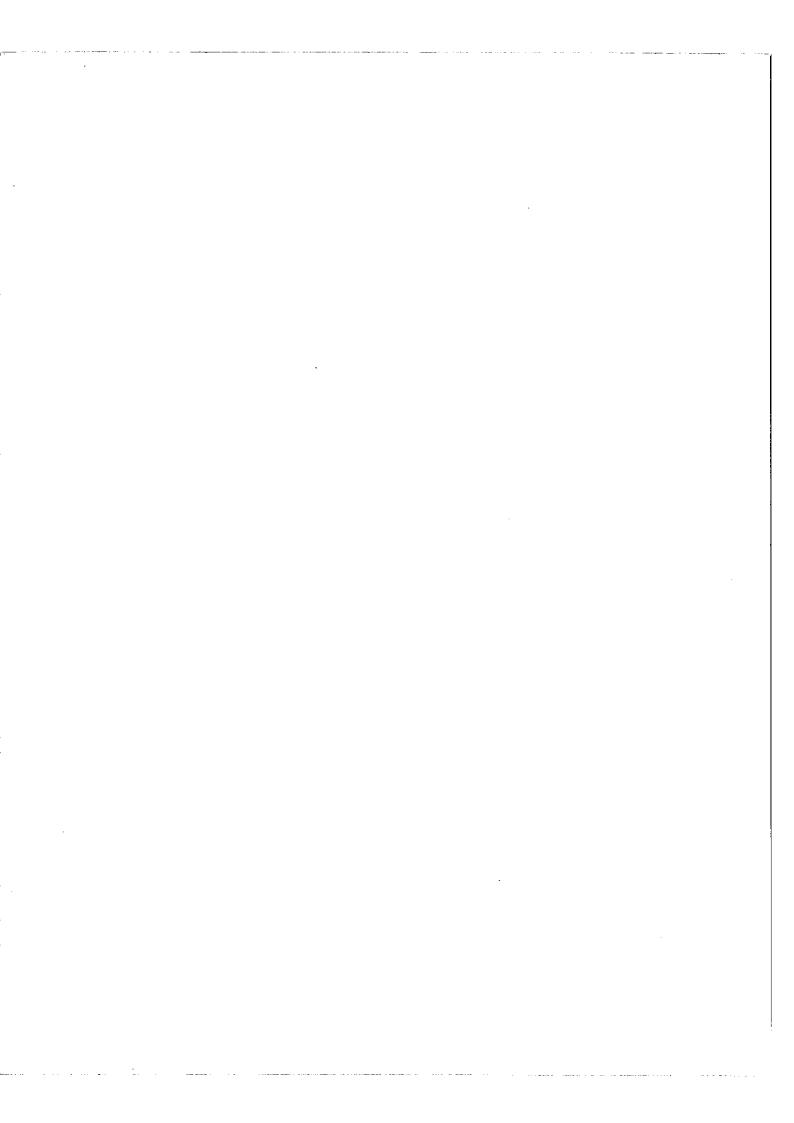
ième canal reçoit le flux  $r$ 
 $r$ 
 $r$ 
 $r$ 

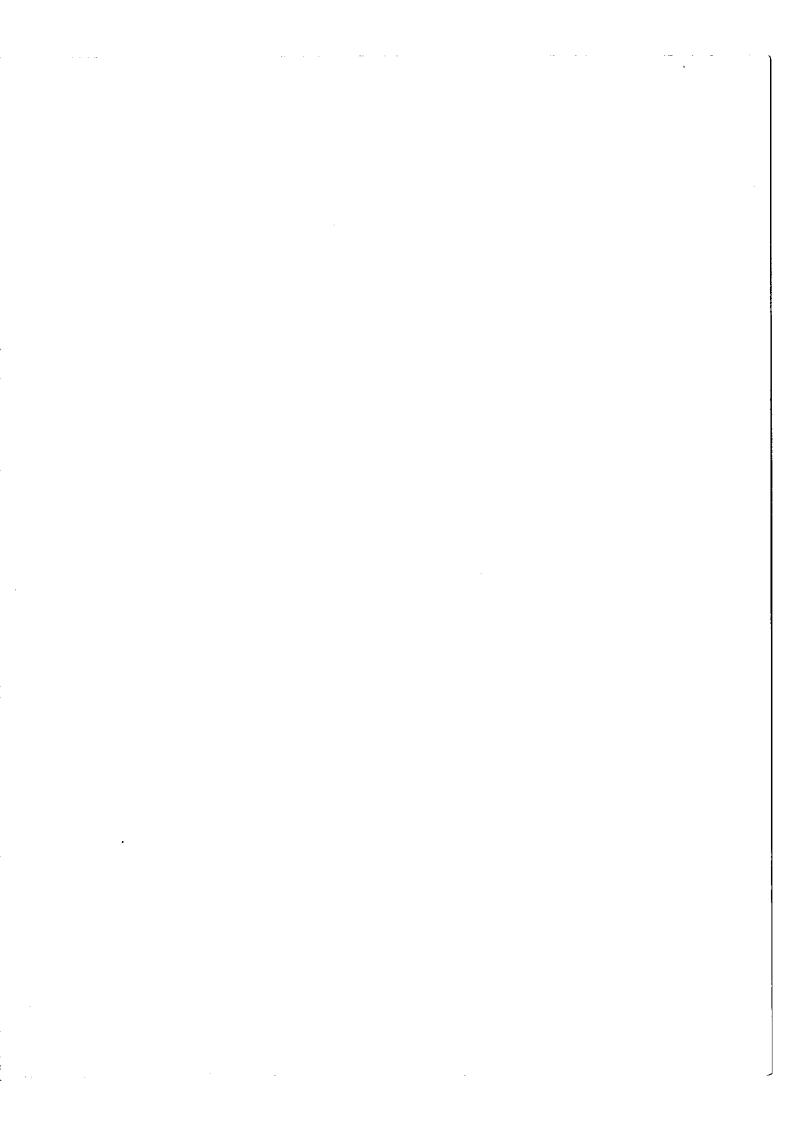
Nous voyons que, quelles que soient la source utilisée et les valeurs de  $\downarrow_1$  et  $\downarrow_2$  le rapport des flux entre deux canaux quelconques p et q va s'exprimer :

$$\frac{\oint_{1} r (1-r)^{p-1}}{\oint_{1} r (1-r)^{q-1}} = \frac{\oint_{2} r (1-r)^{p-1}}{\oint_{2} r (1-r)^{q-1}}.$$

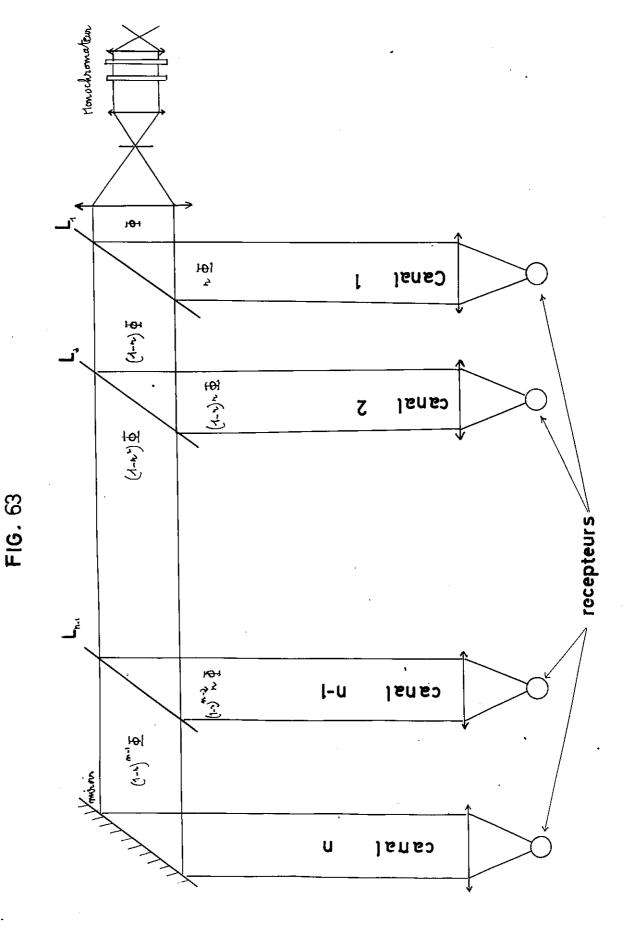
où:  $\frac{1}{\sqrt{2q}} = \frac{\sqrt{2p}}{\sqrt{2q}}$  ce qui représente l'égalité recherchée, à condition que r soit indépendant de  $\frac{1}{\sqrt{2q}}$  ou qui revient à dire r indépendant de la luminance. Cependant, cette solution présente le grand inconvénient de fractionner

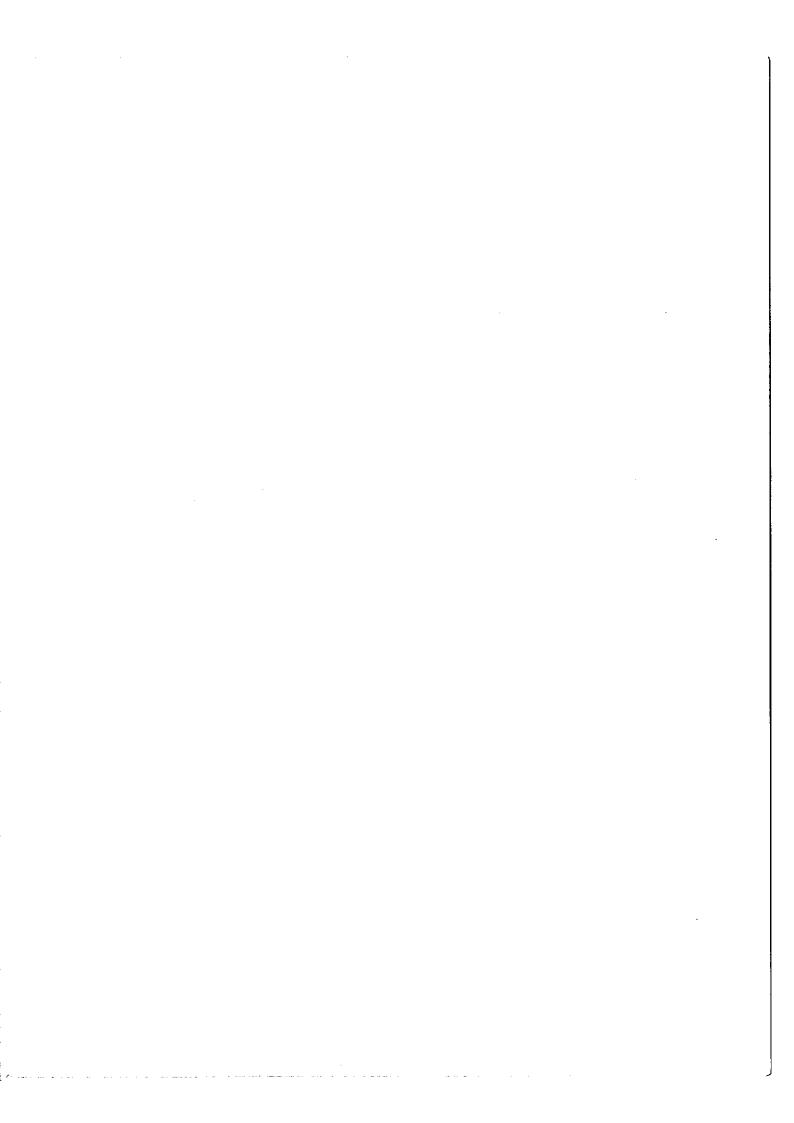


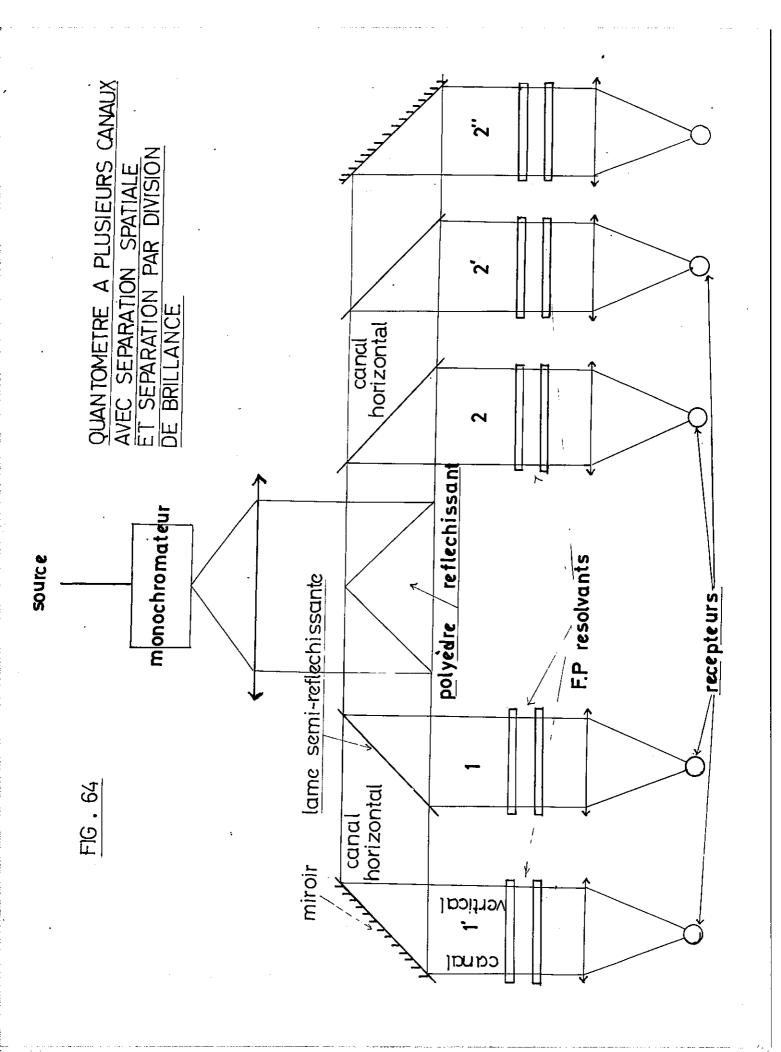




QUANTOMETRE A PLUSIEURS CANAUX SEPARATION PAR DIVISION DE BRILLANCE







la luminosité du quantomètre dans la mesure où elle n'utilise pas toute l'étendue fournie par la source.

### 11 - 3. Réalisation d'un quantomètre à plusieurs canaux

C'est une combinaison entre les deux solutions qui a fourni le principe du quantomètre à plusieurs canaux. On bénéficie de la séparation spatiale pour placer autant de canaux horizontaux que l'étendue de la source nous le permet; et chaque canal horizontal subit p divisions par brillance; ainsi nous multiplions le nombre de canaux par p. Pour n canaux horizontaux nous compterons donc pn canaux verticaux. Les mesures devant se faire nécessairement entre canaux verticaux appartenant au même canal horizontal.

La figure 64 montre un schéma de principe de ce quantomètre à plusieurs canaux. Celui que nous avons réalisé comportait deux canaux horizontaux et chaque canal horizontal se subdivisait en deux canaux verticaux. Ce dispositif peut donc servir à l'analyse d'un élément ayant quatre composantes spectrales à mesurer correspondant à quatre isotopes.

# 11 - 4. Conséquences de l'inhomogénéité de luminance dans le cas du quantomètre à quatre ou à n canaux

Nous avons vu dans le paragraphe (11 - 1) l'influence de l'inhomogénéité de la luminance sur le principe même du quantomètre. Le tableau XVI nous donne des chiffres très significatifs sur la variation de la distribution de la luminance d'une source à l'autre, lorsque les anodes sont constituées par des simples tiges. Cette grande variation de la distribution de la luminance était voulue pour faciliter les mesures. Nous avons amélioré, par la suite, cette situation, par l'introduction d'une anode du type étudié au paragraphe (9 - 4) dont le centrage par rapport au

trou cathodique a été réalisé avec précision. C'est ainsi que les mesures effectuées avec des enodesschindrésses, ont donné:

$$\varphi_1 = 1,90$$
 et  $\varphi_2 = 1,93$   $\varphi_1/\varphi_2 = 0,985$ 

Ce résultat est intéressant pour des raisons qui vont être étudiées, bien qu'il soit insuffisant pour comparer les mesures entre deux canaux horizontaux à la précision que nous recherchons, c'est-à-dire supérieur à 1 %.

# 11 - 4 - 1. Influence du produit d'inhomogénéité sur la réponse de deux canaux C1 et C2

Cette question a été déjà étudiée au paragraphe (6 - 1) dans le cas où les deux sources utilisent un canal unique d'analyse.

Cette fois-ci nous allons nous placer sur le même canal horizontal et étudier les effets d'une inhomogénéité différente entre deux sources 1 et 2 sur les deux canaux verticaux  $C_1$  et  $C_2$ . Ces deux canaux utilisent chacun un Fabry-Perot résolvant et un récepteur différent. Nous supposerons que la réflection de la lame à faces parallèles est homogène. Nous admettons, en outre (bien que cette condition ne soit pas nécessaire) que les flux globaux émergents de la source 1 et 2 soient égaux.

Traitons le cas de la distribution de brillance unidimentionnel étudié dans l'exemple du paragraphe (11 - 1 - 2). Cette fois, on ne s'intéresse plus qu'à un seul canal horizontal.

Soit  $Y_1$  (x) et  $Y_2$  (x) les distributions de luminances pour les cathodes 1 et 2, et  $Z_1$  (x),  $Z_2$  (x) les fonctions représentant la sensibilité des photocathodes. Si nous désignons par S le signal recueilli à la sortie du récepteur, nous

aurons:

aurons:
- pour la cathode 1 : 
$$S_{11} = r \int_{x_1}^{x_2} y_1 Z_1 dx$$
 $S_{12} = \int_{x_1}^{x_2} (1-r)y_1 Z_2 dx$ 
- pour la cathode 2 :  $S_{21} = r \int_{x_1}^{x_2} y_2 Z_1 dx$ 
 $S_{22} = \int_{x_1}^{x_2} (1-r)y_2 Z_2 dx$ 

les quantités  $\frac{S_{11}}{S_{12}}$  et  $\frac{S_{21}}{S_{22}}$  doivent être égales à la précision recherchée, quelle que soit la composante étudiée.

Exemple simple. Si nous supposons que les inhogénéités ainsi que les réponses varient linéairement avec x et sont opposées d'une source à l'autre, un calcul élémentaire nous donnerait dans ce cas :

$$\frac{S_{11}}{S_{12}} = 2 \frac{(1-r)}{r}$$
 et  $\frac{S_{21}}{S_{22}} = \frac{1}{2}$   $(\frac{1-r}{r})$ 

Même si nous utilisons deux canaux obtenus par une séparation de brillance, il est nécessaire que les différentes sections flu faisceau entre deux sources distinctes aient des luminances, tel que y (x) et y (x) soient très voisins, quel que soit x compris entre x compris color appris color app

Nous avons vérifié l'homogénéité du faisceau et celle de la réponse des récepteurs, les résultats obtenus en utilisant la même composante sur les deux canaux, sont résumés sur le tableau XVIII

#### TABLEAU XVIII

Mode de mesure	Signal direct enregistré	S	ignal intégré	
$\frac{s_{11}}{s_{12}}$	1,3578	1,0382	1,0369	1,0371
$\frac{s_{21}}{s_{22}}$	1,3568	1,0387	1,0358	1,0364
Ecarts	1 %0	0,5 %0	1,1 %。	0,7 %

Ces résultant sont satisfaisants et représentent la précision limite que nous permet d'atteindre cette méthode. Dans notre cas, cette précision est de 1 pour mille.

11 - 4 - 2. Influence d'une grande inhomogénéité ou d'un mauvais réglage optique sur les mesures.

Considérons le cas d'un quantomètre à quatre canaux (fig. 64) avec deux canaux horizontaux H<sub>1</sub> et H<sub>2</sub> dûs à la séparation spaciale, chacun d'eux se subdivisant en deux autres canaux verticaux.

Entre les deux fonctions de transmission obtenues à partir d'une source de recegistrées par ces deux canaux H<sub>1</sub> et H<sub>2</sub> à la sortie du F.P monochromateur, existent un écart : soit  $\delta\Gamma$  cet écart exprimé en nombre d'ondes (fig. 61).

Si nous utilisons deux sources avec des distributions de luminance quelconques, nous obtiendrons au total quatre fonctions de transmission, les deux premières sont distantes de  $\delta \Gamma$  et les deux autres de  $\delta \Gamma$  (fig. 61) avec  $|\delta \Gamma - \delta \Gamma'| = d\Gamma$ 

La conséquence d'un tel défaut se traduit par une erreur systématique of sur l'un des canaux entre les deux sources, tel que:

$$2I = I - \frac{2Q}{N \cdot QQ}$$

I étant l'intensité de la raie de mesure

N la finesse du F.P monochromateur et Δ T son i.s.l.

#### CHAPITRE XII

# ANALYSE ISOTOPIQUE DE L'URANIUM AVEC LE QUANTOMETRE

L'appareil décrit au paragraphe (10 - 2) nous a permis de reprendre l'analyse isotopique de l'uranium à faible concentration en uranium 235, où deux canaux seulement sont utilisés; le canal l pour la composante A et le canal 2 pour la composante a. Ce dernier canal étudiant la raie de faible intensité reçoit les 90 % du flux total.

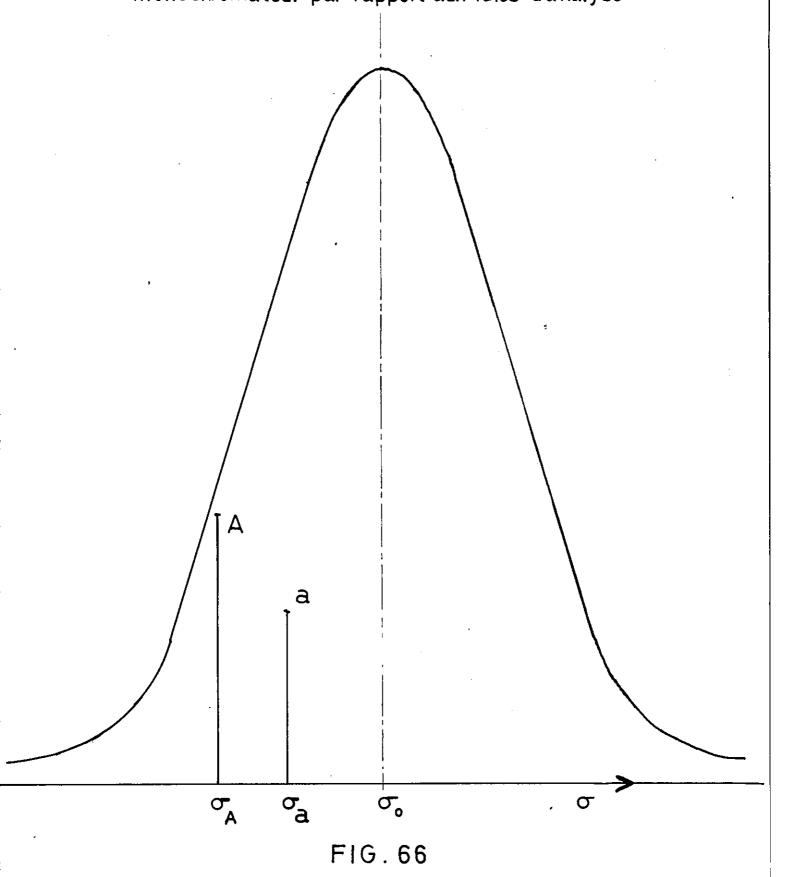
### 12 - 1. Ajustement des bandes passantes

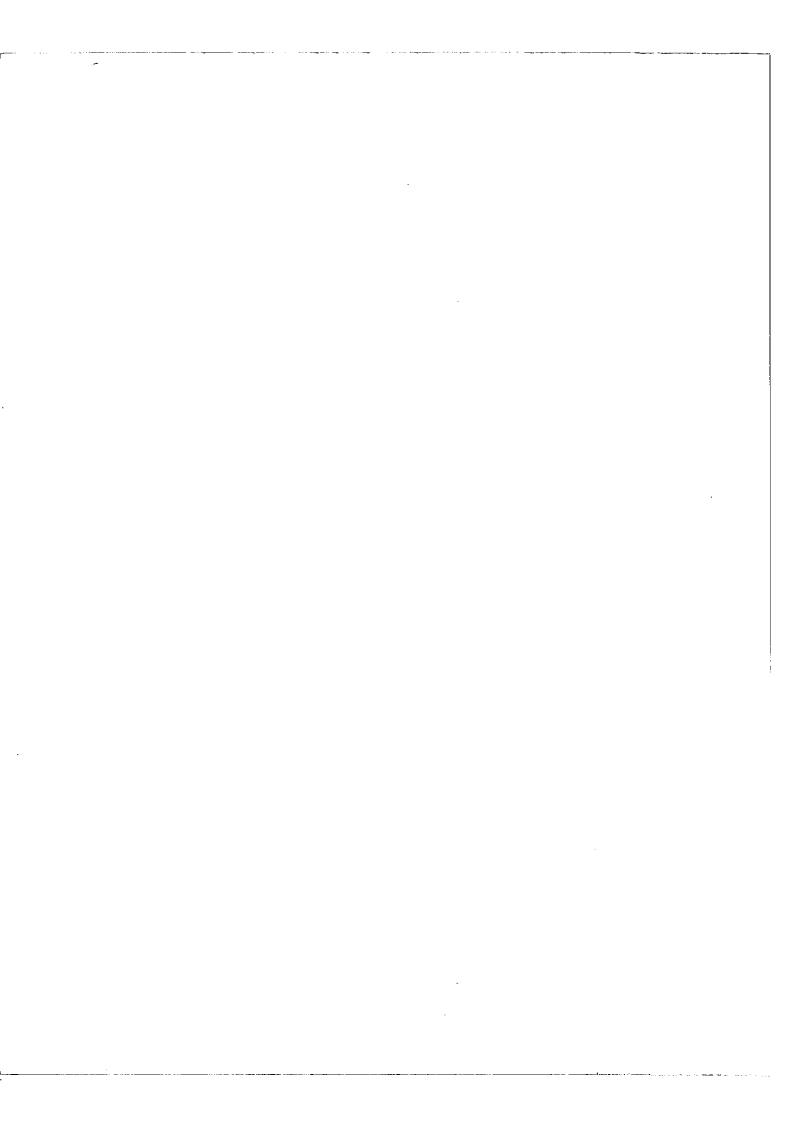
Le filtre interférentiel isole dans le spectre d'émission de l'uranium donné par l'une des différentes sources, une bande passante qu'on centre par rapport à la raie d'analyse en donnant au filtre une faible inclinaison.

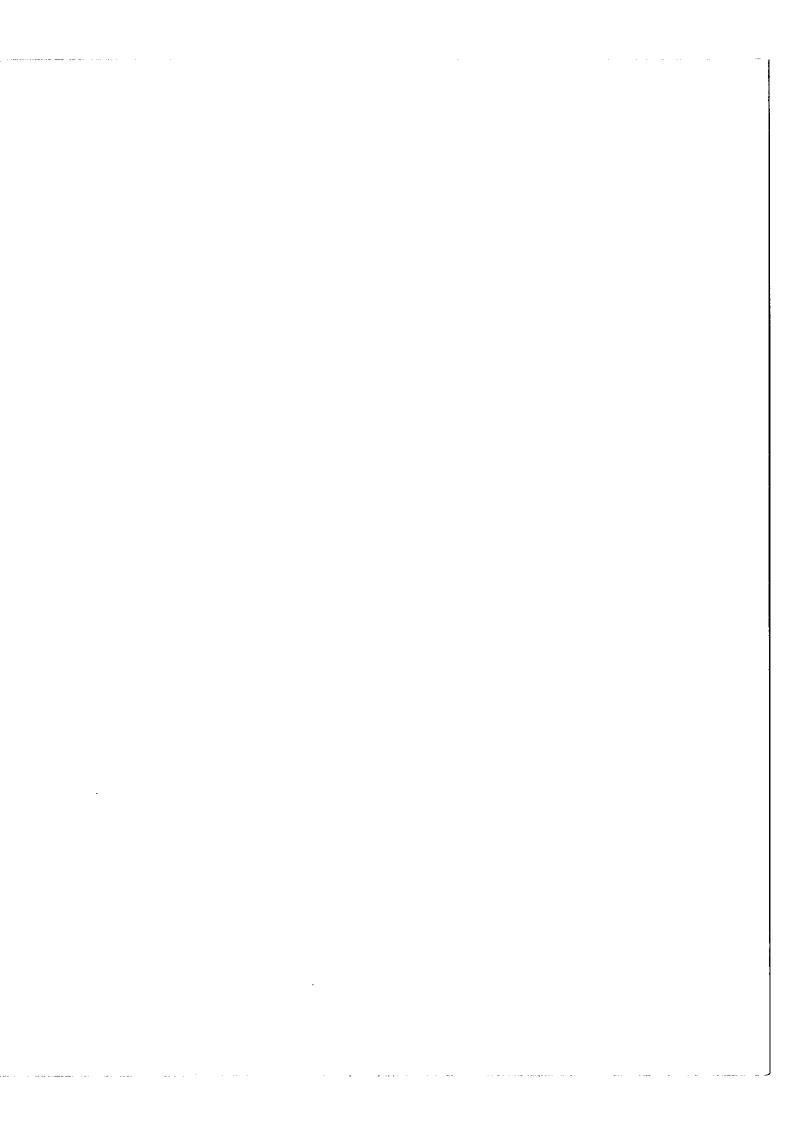
La pression du F.P monochromateur est alors amenée puis est fixée à une valeur  $\overline{\omega}_{\mathsf{M}}$  de sorte que les deux composantes d'analyse A et a se trouvent sur la partie quasi-linéaire et du même côté du maximum de la fonction de transmission de ce F.P (fig. 66). A la sortie du F.P monochromateur, la bande passante devient donc plus étroite et il y a cette fois moins de composantes parasites qui accompagnent les raies d'analyse que dans le cas de l'Hypeac. Cependant, les intensités des composantes A et a sont altérées par ces différentes fonctions de transmission successive (fig. 66) et (fig. 65), mais ceci ne présente pas d'inconvénient pour la méthode des mesures relatives.

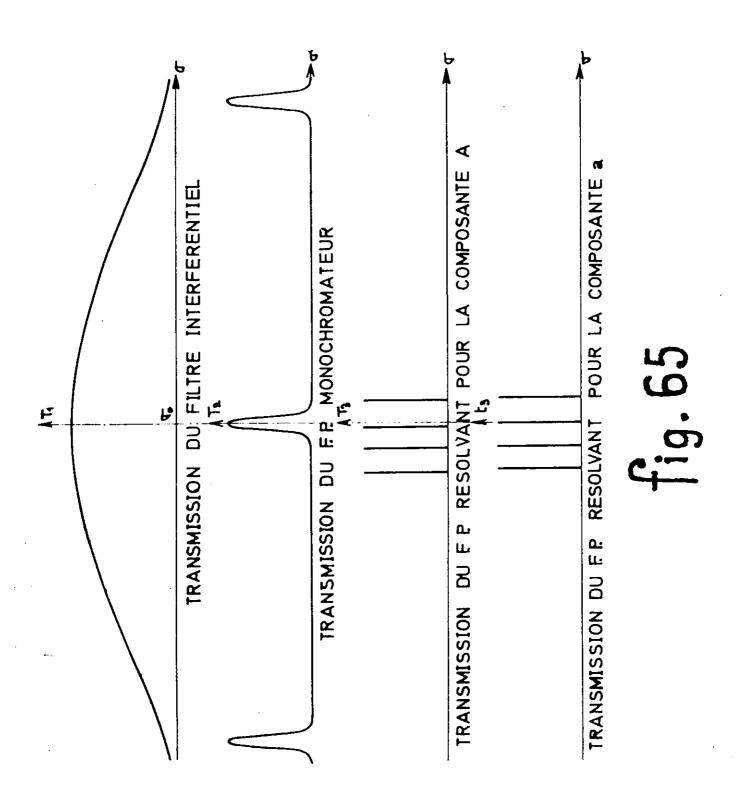
Un faible déplacement  $\delta \tau'$  de la fonction de transmission du F.P monochromateur dû à une instabilité quelconque aura donc un effet tout à fait négligeable.

Positionnement de la fonction de transmission du F. P. monochromateur par rapport aux raies d'analyse









Nous pouvons écrire avant le déplacement :

$$\frac{SI_A}{I_A} = \frac{T_A - T_o}{ST} \quad \text{et} \quad \frac{SI_a}{I_a} = \frac{T_a - T_o}{ST}$$

J: nombre d'onde du maximum de transmission

T: largeur de la fonction de transmission

Après le déplacement 
$$ST'$$
 on pose  $T_o \pm ST' = T_o'$  
$$\frac{ST'_A}{I_A} = \frac{T_A - T_o'}{ST} \quad \text{at} \quad \frac{SI'_a}{I_a} = \frac{T_a - T_o'}{ST}$$

On voit d'après ces relations que :

$$\frac{SI_A'}{SI_A} = \frac{SI_a'}{SI_a}$$

Ceci ne reste valable que si 50 n'est pas très important. Ce qui est le cas avec un F.P thermostaté.

La vérification de la constance du rapport  $\rho$  mesuré en donnant à la bande passante du F.P monochromateur de faibles déplacements  $\mathfrak{ST}'$  a été effectuée. Les maximums des fonctions de transmission des F.P résolvants du canal 1 et 2 sont respectivement sur l'axe de symétrie de la composante A pour le canal 1 et celui de la composante a pour le canal 2.

L'épaisseur de ces F.P résolvants est moins critique que celle qui a été définie par l'Hypeac et ceci pour deux raisons :

- 1°)- il n'y a plus qu'une seule raie de mesure associée à chaque F.P
- 2°)- les raies parasites sont moins nombreuses car la bande passante du monochromateur est plus fine.

Rappelons, toutefois, que pour diminuer l'importance des ghosts du F.P monochromateur, l'épaisseur du F.P résolvant, doit obéir à une conditions supplémentaire étudiée au paragraphe (10 - 2 - 4).

#### 11 - 2. Résultats

Toutes les mesures ont été effectuées sur un millivoltimètre enregistreur, soit par balayage des composantes, soit en statique en se fixant sur l'intensité maximum des composantes d'analyse.

Nous avons vu dans le paragraphe (11 - 4 - 1) que la limite de la précision ultime de la méthode est de 1 % ce qui veut dire que pour un signal ayant une amplitude de 20 cm, la mesure doit être précise à 0,2 mm près. Or le rapport signal/bruit sur la composante faible a est compris entre les valeurs 10 et 20. Nous voyons alors l'intérêt de l'intégration qui améliore et facilité la lecture des mesures.

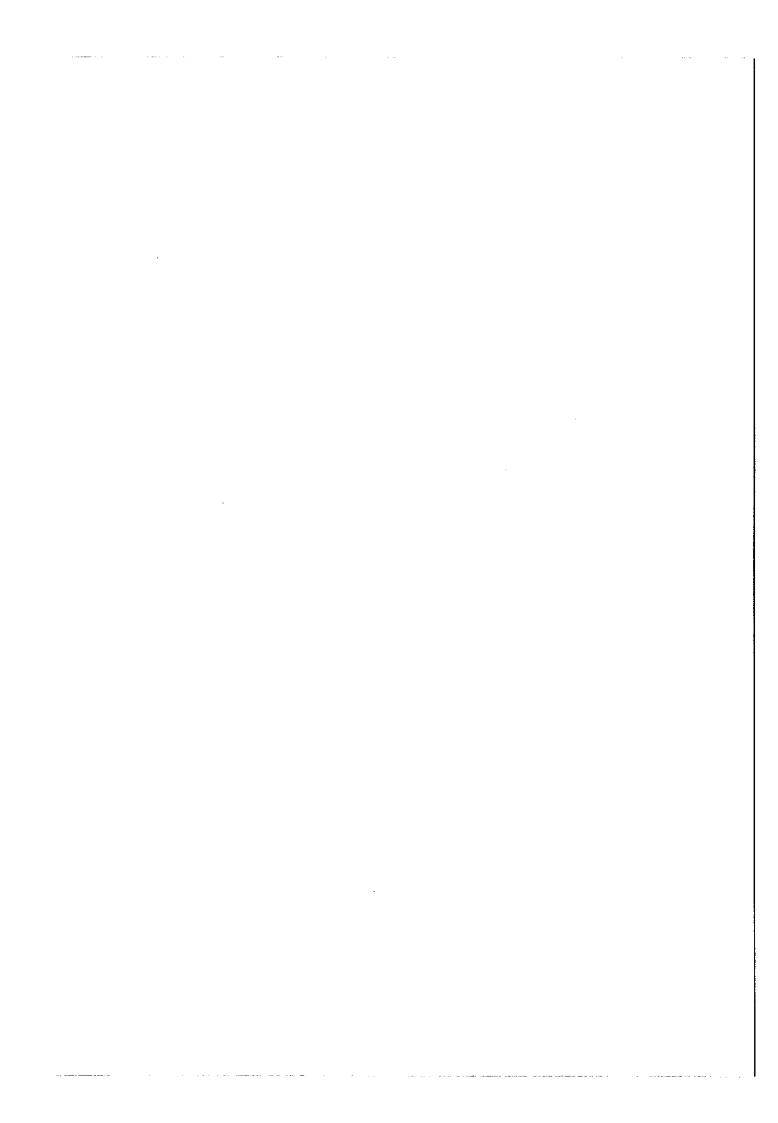
Cette intégration est simultanée sur les deux canaux (fig. 69); sa mise en marche et son arrêt sont commandés par des relais.

Les résultats définitifs obtenus avec deux sources identiques, sont satisfaisants. Le tableau XIX illustre un exemple d'une série de mesure effectuées par

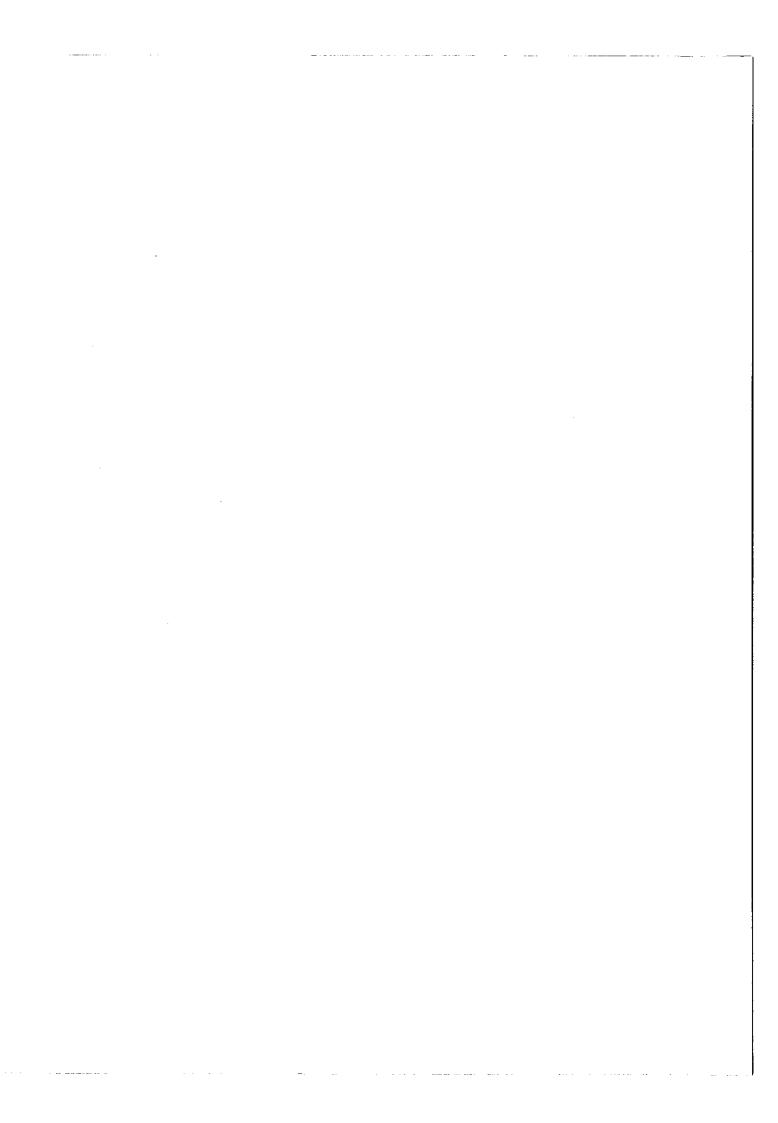
# TABLEAU XIX

				·	
Pı	0,687	0,685	0,666	0,661	0,959
P2	0,687	0,686	0,666	0,663	0,957
<b>v</b> –	•	1			

						7
	7		· · · · · · · · · · · · · · · · · · ·			
	cathode nº 2		The second secon			1,0364
	<u> </u>					
	C					1,037
	cathod n° 1					
0 1	o 100	90 40	50 60	70	80	90 100
	cathode ne 2		N°4	···		,0358
l e	ode 2					
9						
ma (	cat					1,0369
_ ·	cathod n°1					1-8
0		The second secon			and the second of the con-	
•	Ca					1,0387
	cathode nº 2					87
	ie .					· · · · · · · ·
	Ca					
	cathode nº 1					1,0382
	e					
				·		



1 1							7
	cat						
'	cathode n° 2						1, 0364
	ca					) 	1,0371
0 1	cathod n° 1		50	60 70	80	9	:
	10			. ,			
151	cat	and the second s	N°4				1,0358
	cathode m: 2						<del>06</del>
е, С	<u> </u>						
۵	C <sub>P</sub>	COMPANY OF THE CONTRACT OF THE					1, 0369
<u> </u>	cathod n° 1						63
0	<u></u>					and a second control of the second	
	6					]	1, 0387
	cathode						77
	Ř.						· · · · · · · · · · · · · · · · · · ·
	cat						1,0382
-	cathode ne 1						7
			,				-
	<b>.</b>						



intégration. Un déplacement de la fonction de transmission de l'un des F.P résolvants conduit à la variation du rapport  $\rho$ . C'est l'exemple de la 6ème colonne du tableau XIX. Pour palier cet inconvénient, on alterne les mesures entre les cathodes à échantillon inconnu et celle qui contient l'échantillon connu.

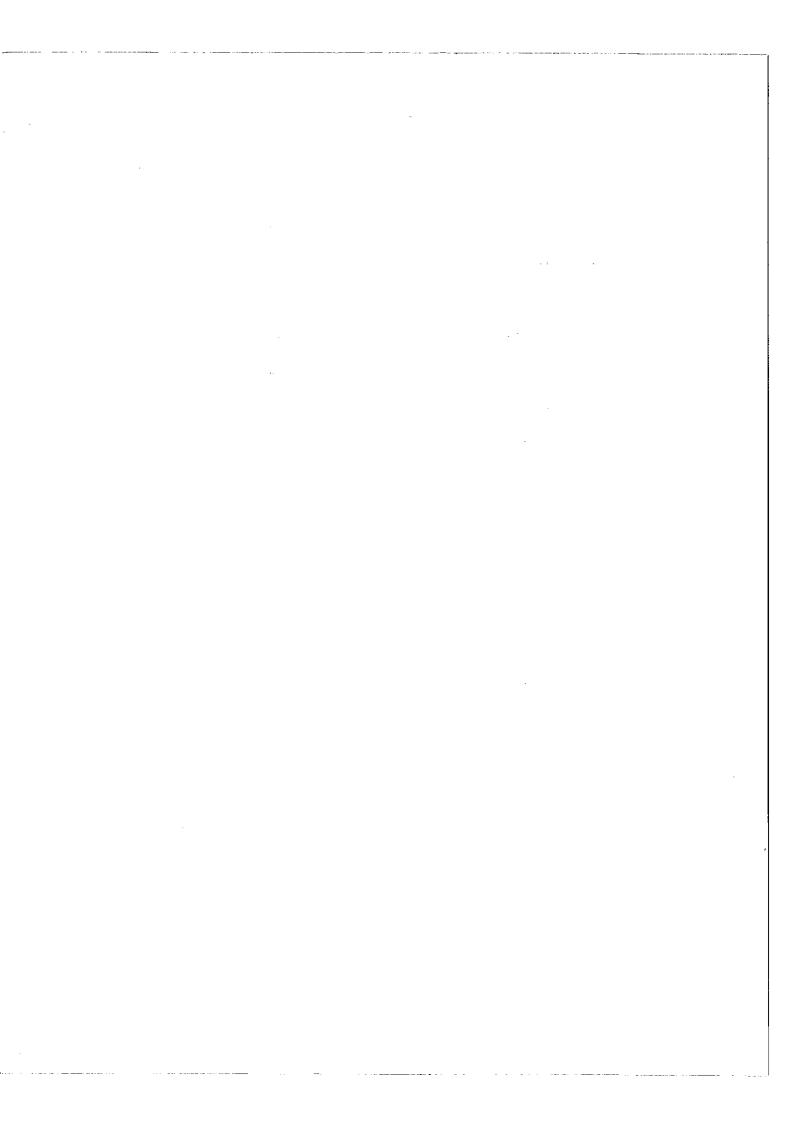
CONCLUSION: La comparaison des intensités émises par différentes sources soulève, lorsqu'on veut obtenir une précision de quelques millièmes, de nombreuses difficultés. Les difficultés sont dues, d'une part au fait qu'à ce degré de précision, deux sources lumineuses ne peuvent être identiques; d'autre part, l'analyse de deux sources (même théoriquement identiques) à l'aide d'une instrument forcément imparfait, entraîne des erreurs qu'il a fallu dépister, évaluer et corriger.

La solution de quelques uns des problèmes ainsi posés a exigé la mise au point de nouveaux dispositifs instrumentaux parmi lesquels nous citerons :

- le balayage synchrone
- la multisource
- le quantomètre Fabry-Perot

A l'heure actuelle, il est possible de comparer deux raies émises par deux sources différentes avec une précision de 1 pour mille. Appliquée problème de l'analyse isotopique de l'uranium à faible teneur en uranium 235, notre méthode permet d'obtenir une précision de quelques pour mille; la précision étant un peu moins bonne cette fois, par suite de la faible intensité de la composante due à l'uranium 235. Cette performance est comparable à celle fournie par la spectroscopie de masse. Toutefois, nos expériences ont été effectuées avec de l'uranium sous forme métallique, il reste donc à entreprendre les mesures avec des sources contenant l'uranium sous forme d'oxyde : notre but premier était de mettre au point et de tester la partie instrumentale de la méthode.

D'un point de vue plus général, l'utilisation de plusieurs sources en spectroscopie à haute résolution est maintenant d'un usage courant; la mesure précise des distances entre composantes isotopiques inférieures à la limite de résolution à l'aide d'isotopes enrichis en est un exemple : il importait donc de dégager les principales causes d'erreurs et de déterminer les précautions à prendre pour exploiter, au mieux, cette nouvelle possibilité de mesure des déplacements extrêmement faibles de l'ordre de 0,1 mK.



# TABLE DES MATIERES

#### PREMIERE PARTIE

# MESURES ABSOLUES D'ABONDANCE PAR SPECTROSCOPIE OPTIQUE

CHAPITRE I - Exposé de la méthode		
Introdu	action	
1 - 1.	Principe de la méthode	4
1 - 2.	Déplacements isotopiques	5
1 - 3.	Difficultés rencontrées dans la mesure des intensités des composantes isotopiques	6
CHAPI	TRE II - Méthodes expérimentales utilisées	
2 - 1.	Sources	8
2 - 2.	Principe du spectromètre F.P	9
2 - 3.	Description du spectromètre	
	2 - 3 - 1. Monochromateur	
	2 - 3 - 2. Interféromètre	
	2 - 3 - 3. Circuit de référence	
	2 - 3 - 4. Récepteur	
CHAPI	TRE III - Mesures effectives des intensités	
3 - 1.	Choix de la raie d'analyse	11
3 - 2.	Mesure du rapport d'abondance	11
3 - 3.	Causes d'erreur	12

1		
3 - 4.	Erreurs dues à la source	12
	3 - 4 - 1. Erreurs introduites par la nature même du spectre	
	3 - 4 - 2. Erreurs introduites par le mécanisme et la nature de la décharge	
3 - 5.	Erreurs dues à l'instrument	15
	3 - 5 - 1. Monochromateur	
	3 - 5 - 2. Interféromètre	
	3 - 5 - 3. Récepteur	
3 - 6.	Conclusion	
	DEUXIEME PARTIE	
	MESURES RELATIVES D'ABONDANCE	
CHAP	TRE IV : Utilisation de deux sources	
Introdu	ection	
	Dispositif de montage de deux sources	19
4 - 2:	Etude de la reproductibilité des mesures avec deux sources	20
СПУБІ	TRE V - Erreurs dues aux défauts instrumentaux	
CHAF	TRE V - Effetts dues aux delauts instrumentaux	
5 - 1.	Stabilité	23
	5 - 1 - 1. Monochromateur	
	50 - 2. Interféromètre	
5 - 2.	Erreurs dues aux défauts d'alignement	26
СНАРІ	TRE VI : Effets dus à la combinaison des défauts des sources et des imperfections de l'instrument	
6 - 1.	Effet de non uniformité de la luminance de deux sources	29
	6 - 1 - 1. Sur la fonction d'appareil du monochromateur	
	6 - 1 - 2. Sur la fonction d'appareil du F.P	
	6 - 1 - 3 Profil enregistré	

6 - 2.	Effets dus aux largeurs de raies	33
	6 - 2 - 1. Détermination des largeurs des raies.	
	6 - 2 - 2. Influence de la largeur sur le rapport r	
	6 - 2 - 3. Facteurs influençant la largeur des raies	
	6 - 2 - 4. Température de décharge	
6 - 3.	Raies parasites	49
CHAPI	TRE VII : Identification des raies parasites	
8 - 1.	Méthode des différentes épaisseurs du F.P	51
7 - 2.	Méthode photographique	52
7 - 3.	Méthode photoélectrique pas à pas	52
7 - 4.	Méthode dite du balayage synchrone	54
7 - 5.	Détermination de l'épaisseur optimum du F.P	55
CHAP:	ITRE VIII: Réalisation expérimentale d'un balayage synchrone	
Introd	uction	
8 - 1.	Principe du balayage synchrone	56
8 - 2.	Réalisation du déplacement de la bande passante	57
8 - 3.	Description du dispositif de rotation de la lame	59
8 - 4.	Vérification du synchronisme	61
CHAP	ITRE IX : Effets propuess aux sources	
9 - 1	. Variation globale de luminance	. 62
9 - 2.	Erreurs introduites par la raie B	64
9 - 3.	Autoabsorption des deux sources	65
9 - 4.	La multicathode	67
9 - 5	Résultats et conclusion	68

## TROISIEME PARTIE

## QUANTOMETRE F.P

# CHAPITRE X: Quantomètre à deux canaux

Introdu	ction	
10 - 1.	Principe du quantomètre F.P	70
10 - 2.	Description du quantomètre	70
	10 - 2 - 1. La source	
	10 - 2 - 2. Monochromateur	
	10 - 2 - 3. Circuit de positionnement de la bande passante	
	10 - 2 - 4. (Spectromètres résolvants	
	10 - 2 - 5. Système optique de conjugaison	
10 - 3.	Détermination de l'épaisseur du F.P monochromateur	75
CHAPIT	TRE XI : Quantomètre à plusieurs canaux	
11 - 1.	Cas d'une séparation spatiale	77
	11 - 1 - 1. Effets sur l'échelle des fréquence	
	11 - 1 - 2. Effets sur les flux lumineux	
11 - 2.	Cas d'une division par brillance	80
11 - 3.	Réalisation d'un quantomètre à plusieurs canaux	81
11 - 4.	Conséquences de l'inhomogénéité de la luminance dans le cas du quantomètre à quatre canaux ou plus	81
	11 - 4 - 1. Influence du produit d'inhomogénéité sur la réponse	
	11 - 4 - 2. Influence d'une grande inhomogénéité sur les mesures	
CHAPIT	RE XII : Analyse isotopique de l'uranium avec le quantomètre	
12 - 1.	Ajustement des bandes passantes	86
12 - 2.	Résultats	88
12 - 3.	Conclusions	90

#### - BIBLIOGRAPHIE -

- (1) P. JACQUINOT et C. DUFOUR J. Recherches C.N.R.S. 1948 26 91 -
- (2) R. CHABBAL et P. JACQUINOT Rev. opt. 1961 40 157 -
- (3) S. GERSTENKORN Spectroch. Acta 1962 18 353 -
- (4) M.P. BROIDA et J.W. MOYER J. Opt. Soc. Amer 1952 42 37 -
- (5) P. BRIX et H. KOPFERMANN Zeits. Physik 1949 126 344 -
- (6) D.W. STEINHAUSS J. BLAISE et M. DIRINGER Los Alamos Scient. Lab. fas. 3475 1966 -
- (7) K. T. BAINDBRIDGE et A. ONIER Nat. Research Concil (U.S.) Prelim. Rept. 9
  1950
- (8) C. BERTHELOT et K.F. LAUER Euratom Rapport 307.e 1963 -
- (9) T. LEE et S.A MAC INTYRE Appl. Spectr. 1961 15 106 -
- (10) H. SCHULER et J.E. KEYSTON Zeits Physik 1931 70 1 -
- (11) T. LEE et L.M ROGERS Appl. Spect. 1961 <u>15</u> 3 J.L. SANDERSON Talanta 1960 - <u>6</u> - 63 -
- (12) R.D. COWAN et G.H. DIEKE Rev. of. Mod. Phys. 1948 20 418 -
- (13) E.E.BOGGS et H. W. WEBB Phys. Rev. 1935 48 226 -
- (14) H. SCHULER et J. E.KEYSTON Zeits Physik 1931 71 413 -
- (15) Yu.I.TURKIN et MP CHAIKA Optika, i Spektr. 1962 695 -
- (16) P. JACQUINOT J. Opt. Soc. Amer 1954 44 761 -
- (17) R. CHABBAL thèse PARIS 1957 -
- (18) S. GERSTENKORN Rapports C.E.A. nº 845 1958 C.E.A. n° 2301 - 1963

- (19) P. CONNES J. de Phy. et le Rad. 1958 19 262 -
- (20) K.W. MEISSNER J. Opt. Soc. Amer 1953 43 673 -
- (21) J. PIETRI et C. ARVIN J. de Phy. et Rad. 1958 19 159 A -
- (22) H. FONTAINE et J. BROCHARD J. de Phy. et Rad. 1961 22 43 A -