PREMIER MINISTRE COMMISSARIAT A L'ÉNERGIE ATOMIQUE

SUR QUELQUES UTILISATIONS DE L'ENREGISTREMENT DES FRAGMENTS DE FISSION DANS LES ISOLANTS

par

Jean MORY

Rapport CEA - R 2846

CENTRE D'ÉTUDES NUCLÉAIRES DE FONTENAY-AUX-ROSES

Fa

1965

CEA-R 2846 - MORY Jean

SUR QUELQUES UTILISATIONS DE L'ENREGISTREMENT DES FRAGMENTS DE FISSION DANS LES ISOLANTS

Sommaire. - Le passage des fragments de fission se matérialise dans les isolants par des lignes de dommages que l'on peut facilement observer par transparence au microscope optique après une attaque chimique appropriée. L'efficacité d'enregistrement étant de 100 pour cent dans le mica et les plastiques, ce phénomène peut avoir un certain nombre d'applications.

Après un bref rappel des processus d'interaction entre particules chargées et matière, et une étude quantitative des relations unissant les différents paramètres, on étudie ici quelques-unes de ces applications : - dosimétrie de neutrons thermiques : on peut mesurer des flux intégrés slétondant de 103 à 1021 n/cm² enjurant le méthode utilisée :

intégrés s'étendant de 10³ à 10²¹ n/cm², suivant la méthode utilisée ; - dosimétrie de neutrons rapides : en utilisant des sources de fragments de fission à seuil, on peut facilement mesurer des doses d'intérêt biologique de l'ordre du rem ;

- dosage d'impuretés fissiles en très faible concentration : on peut déterminer des concentrations atomiques de l'ordre de 10^{-9} , limite jamais atteinte par les procédés usuels ;

CEA-R 2846 - MORY Jean

ON SOME USES OF THE RECORDING OF FISSION FRAGMENTS OCCURING

IN INSULATORS

<u>Summary</u>.- The passage of fission fragments is manifested in insulators by the formation of damage lines which can easily be observed by transparence using the electron microscope after a suitable chemical attack. Since the recording efficiency is 100 per cent for mica and plastics this phenomenon has a certain number of applications.

After briefly recalling the interaction processes between charged particles and matter, and giving a quantitative study of the relationships connecting the various parameters, the author considers here some of these applications:

thermal neutron dosimetry : it is possible to measure integrated fluxes of between 10³ and 10²¹ n/cm², according to the method used;
 fast neutron dosimetry : by using fission fragment threshold sources it is easy to measure biological type doses of about 1 rem :

- dosage of very low fissile impurity concentrations : atomic concentrations of about 10^{-9} can be measured; this limit has never been attained by conventional methods;

- étude des éléments fissiles contenus dans les poussières atmosphériques.

On donne ensuite brièvement les résultats d'un essai d'automatisation du comptage des traces par mesure de la résistivité électrique de la membrane irradiée.

On expose enfin les avantages et les inconvénients de ces détecteurs solides, notamment par rapport aux émulsions nucléaires dont les utilisations sont à peu près identiques.

1965

54 ^p

64P

Commissariat à l'Energie Atomique - France

- study of fissile elements occurring in atmospheric dusts. Results are then briefly given of an automated counting test for traces effected by measuring the electrical resistivity of the irradiated membrane. Finally are given the advantages and disadvantages of these solid detectors, especially with respect to nuclear emulsions whose uses are approximately identical.

1965

Commissariat à l'Energie Atomique - France

Les rapports du COMMISSARIAT A L'ENERGIE ATOMIQUE sont, à partir du nº 2200, en vente à la Documentation Française, Secrétariat Général du Couvernement, Direction de la Documentation, 16, rue Lord Byron, PARIS VIIIème.

The C.E.A. reports starting with nº 2200 are available at the Documentation Française, Secrétariat Général du Gouvernement, Direction de la Documentation, 16, rue Lord Byron, PARIS VIIIème.

- Rapport CEA-R 2846 -

Services des Eléments Combustibles au

Plutonium et d'Etudes Radiométallurgiques

SUR QUELQUES UTILISATIONS DE L'ENREGISTREMENT

DES FRAGMENTS DE FISSION DANS LES ISOLANTS

par

Jean MORY

(Mémoire présenté au Conservatoire National des Arts et Métiers)

- Septembre 1965 -

SOMMAIRE

INTRODUCTION PREMIERE PARTIE : ETUDE THEORIQUE Ia - MECANISMES DE FORMATION DES TRACES Ib - ETUDES QUANTITATIVES DEUXIEME PARTIE : UTILISATIONS II - DOSIMETRIE DE NEUTRONS THERMIQUES III - DOSIMETRIE DE NEUTRONS RAPIDES III - DOSAGE DES IMPURETES FISSILES V - ETUDE DES POUSSIERES DE L'ATMOSPHERE VI - ESSAI D'AUTOMATISATION

CONCLUSION

SUR QUELQUES UTILISATIONS DE L'ENREGISTREMENT DES FRAGMENTS DE FISSION DANS LES ISOLANTS

INTRODUCTION

Dès 1959, Silk & Barnes [1], dans le but d'étudier les dommages provoqués par les particules lourdes énergiques dans les réseaux cristallins, irradièrent par des neutrons du mica en présence d'uranium. Ils observèrent au microscope électronique la formation de lignes de dommages dont la densité était sensiblement égale au nombre de fragments de fission émis par la source.

Le même travail fut repris, dans le même but, par Bonfiglioli et al en 1961 [2].

Walker et al entreprirent alors, en 1962, une étude systématique de l'enregistrement des particules accélérées dans le mica [3] qui leur permit en particulier de déterminer l'efficacité d'enregistrement de ces particules en fonction de leur masse et de leur énergie. Ces mêmes auteurs, après avoir remarqué qu'une attaque chimique appropriée transformait ces lignes de dommages en traces facilement visibles, par transparence, au microscope optique (figure 1), [4], ont ensuite déterminé l'efficacité d'enregistrement des fragments de fission. Enfin, ils ont étudié quelques applications pratiques de leurs résultats, comme la dosimétrie des neutrons [5], la mesure des âges de différents minéraux [6], [7], l'obtention de filtres à porosité ultrafine utilisés dans la recherche médicale, etc...

Nous avons essayé dans ce travail d'étendre le champ d'application de l'enregistrement des traces de fragments de fission dans les isolants. Nous donnons d'abord un court aperçu des connaissances actuelles concernant les mécanismes d'interaction entre particules chargées et réseaux cristallins en général, entre fragments de fission et isolants en particulier. Puis, nous établissons les relations existant entre les différents paramètres intervenant lors des différentes utilisations : densités de traces, flux de neutrons, concentration en éléments fissiles, parcours des fragments de fission. Nous étu-

dions ensuite ces applications : dosimétrie des neutrons, dosage de très faibles quantités d'impuretés fissiles, comptage de poussières atmosphériques. Enfin, après un bref exposé des résultats obtenus lors d'un essai d'automatisation du comptage des traces, nous exposons les avantages et les inconvénients du détecteur de mica.

PREMIERE PARTIE

I. ETUDE THEORIQUE

Ia - MECANISMES DE FORMATION DES TRACES

De toutes les particules susceptibles de créer des dommages dans la matière, les fragments de fission sont parmi les plus efficaces, par suite de leur masse, de leur charge initiale et de leur énergie extrêmement élevées.

Dans le cas de la fission de l'uranium 235 par des neutrons lents, la masse atomique d'un fragment de fission varie pratiquement de 72 à 165, son numéro atomique de 30 à 65. L'énergie initiale d'un fragment léger moyen $(Z \stackrel{\sim}{=} 38, M \stackrel{\sim}{=} 95)$ est environ de 95 MeV, celle d'un fragment lourd moyen $(Z \stackrel{\sim}{=} 54, M \stackrel{\sim}{=} 139)$ de 67 MeV. Leur charge effective est approximativement comprise entre 20 e et 22 e : pratiquement, seuls les électrons les plus liés peuvent suivre le fragment de fission lors de son émission, et, en gros, les électrons dont la vitesse orbitale est inférieure à la vitesse du fragment ne peuvent suivre celui-ci.

Si les théories proposées pour expliquer les interactions entre particules simples et atomes d'un réseau cristallin représentent assez bien les phénomènes observés, il n'en est plus de même pour les fragments de fission. Nous venons de voir que ceux-ci sont des ions très lourds, très énergiques, très chargés, très divers, et leur comportement dans la matière est le résultat de la superposition d'un certain nombre de phénomènes (en particulier, le fragment de fission se décharge progressivement en récupérant des électrons), et, jusqu'à présent, *le problème n'est absolument pas résolu*. Nous allons néanmoins exposer brièvement les différents modes d'interaction entre une particule et un réseau cristallin, en rappelant que les relations données ne le sont qu'à titre indicatif pour des particules élémentaires, et que les résultats qualitatifs ne sont à conserver qu'avec un maximum de prudence dans le cas de fragments de fission.

Lorsqu'une particule chargée pénètre dans la matière, on convient, pour simplifier, de considérer qu'elle perd son énergie selon deux modes principaux d'interaction : - 4 -

- chocs coulombiens contre les électrons et les noyaux du milieu,

- chocs de "sphères dures" contre les noyaux.

1°) Chocs coulombiens : (figure 2)

Si ρ est la distance séparant la particule en mouvement d'un électron ou d'un noyau, l'interaction coulombienne est caractérisée par une loi de la forme $|\mathbf{F}| - \frac{\mathbf{Z} \ \mathbf{z} \mathbf{e}^2}{\rho^2}$, où \mathbf{F} est la force s'exerçant entre les deux particules, Ze et ze leurs charges : la force varie comme l'inverse du carré de la distance. Elle est pratiquement nulle à grande distance, croît progressivement jusqu'à un maximum lorsque cette distance (\mathbf{r}_m) est minimale, puis décroît lorsque la particule s'éloigne. Il n'y a pas à proprement parler choc, mais diffusion de la particule incidente : la particule incidente est déviée progressivement de sa trajectoire en cédant une partie de son énergie à la particule-cible; celle-ci si elle était fixe, voit son énergie cinétique augmenter et quitte son emplacement.

a) Chocs coulombiens contre les électrons : ce sont les plus nombreux du fait que les électrons sont plus nombreux que les noyaux. Lorsqu'un électron quitte un atome à la suite d'un choc, cet atome se charge positivement : il y a ionisation. Pour ce faire, la particule incidente perd de l'énergie, et cette perte d'énergie est caractérisée par un taux de perte d'énergie, c'est-à-dire la perte d'énergie par unité de longueur. Ce taux de perte d'énergie est donné par la formule de Béthe [8] :

$$\left(\frac{dE}{dx}\right)_{e} = 4 \pi N \frac{z^{2} e^{4}}{m_{e} v_{o}^{2}} Z \log \frac{2 m_{e} v_{o}^{2}}{\overline{J}}$$

où N est le nombre d'atomes par unité de volume et Z le numéro atomique du matériau traversé, ze la charge de la particule incidente, m_e la masse de l'électron, \overline{J} un potentiel d'ionisation moyen déterminé expérimentalement pour chaque numéro atomique, v_o la vitesse instantanée de la particule. On voit, d'après cette formule, que, lorsque la particule se ralentit, $\left(\frac{de}{dx}\right)_e$ part de O, augmente, passe par un maximum puis diminue. Cette diminution est encore accentuée par le fait que la particule récupère des électrons, donc que ze diminue le long du parcours.

b) Chocs coulombiens contre les noyaux : le même raisonnement peut s'appliquer aux chocs contre les noyaux. Mais leur influence sur l'énergie de la particule sera beaucoup plus faible que dans le cas des chocs électroniques, parce que les noyaux sont beaucoup moins nombreux que les électrons. c) Effet des chocs coulombiens : la majeure partie de l'énergie perdue lors des chocs coulombiens se retrouve sous forme de chaleur, le reste servant à créer des défauts dans le réseau. Dans le cas des métaux, les électrons sont libres et l'ionisation reste un défaut éminemment transitoire. Par contre, dans le cas des isolants, dans les cristaux ioniques en particulier, des liaisons chimiques peuvent être rompues : un ion négatif peut être remplacé par un ion positif; entouré d'ions positifs, il est en équilibre instable et peut être éjecté, créant ainsi un défaut permanent dans le réseau : c'est le mécanisme de Varley. Dans le cas de chocs contre les noyaux, l'énergie cédée peut être suffisante pour permettre à ceux-ci de quitter leur site, ce qui crée également des défauts de réseau. L'atome déplacé se retrouve en équilibre métastable, en position interstitielle où son énergie est supérieure à son énergie avant choc. La différence entre l'énergie qui lui a été cédée et cette énergie finale est encore transformée en chaleur.

Nous voyons donc que si, dans les métaux, seuls les défauts créés par chocs contre les noyaux seront observables, par contre, dans les isolants, on observe également l'effet indirect de l'ionisation.

2°) Chocs de sphères dures :

Jusqu'à présent, nous avons supposé que la trajectoire de la particule passait assez loin de la particule cible.

Mais le problème devient un peu différent lorsque le paramètre d'impact devient très faible. En effet, dans ce cas, le potentiel d'interaction devient très grand, et une approximation commode, sinon exacte, revient à estimer qu'à partir d'une distance r_m ce potentiel devient infini.

Lorsqu'une particule très énergique arrive à cette distance r_m , elle se trouve brutalement, non plus devant "une pente" de potentiel plus ou moins accentuée, mais devant un véritable mur infranchissable. C'est le potentiel dit "des sphères dures" pour lequel les calculs, au moins en mécanique classique, sont simples (figure 3).

Si on adopte cette hypothèse, la distance r d'impact est alors solution de la relation :

 $V(r_m) = \frac{M v_0^2}{2} (1 - \frac{p^2}{r_m^2})$ (1) où $V(r_m)$ est le potentiel d'interaction à la distance r_m , M la masse réduite et v_0 la vitesse de la particule.

On voit d'après cette relation que, lorsque l'énergie $\frac{M v_0^2}{2}$ de la particule diminue, la distance minimale d'approche r augmente. Il en est de même

- 5 -

- 6 -

pour la section efficace de choc πr_m^2 , et pour le nombre d'interactions par unité de longueur, inversement proportionnelle au libre parcours moyen

$$\lambda - \frac{1}{N \pi r_m^2}.$$

Pour des énergies très fortes, r est toujours relativement faible, et le libre parcours moyen est donc très grand.

C'est bien ce que confirme l'observation au microscope électronique des traces laissées par le passage des fragments de fission dans un réseau cristallin. On constate que ces traces sont sensiblement rectilignes. L'énergie cédée lors de chaque choc est donc faible par rapport à celle du fragment. D'autre part, ces traces ne sont pas uniformes : elles sont formées de "boules de dommages" reliées entre elles par des lignes claires ou sombres suivant le mode d'observation. Si ces lignes sont assez explicables par la création quasi continue de défauts par chocs coulombiens, pour rendre compte de la présence discontinue de ces boules, on utilise généralement le concept de "pointe de " déplacement" dû à Brinkman [9]. Cette théorie repose sur le libre parcours moyen λ des atomes heurtés par le fragment de fission. Ces atomes, appelés primaires, sont éjectés dans le réseau avec des énergies évidemment variables, dépendant de leur interaction avec le fragment. Ces atomes primaires heurtent d'autres atomes, alors appelés secondaires, etc... donnant lieu à un processus en cascade. A chaque choc correspond, si l'énergie échangée est suffisante, la formation d'une lacune et d'un interstitiel. Il est commode de calculer ce libre parcours λ en se fondant sur l'approximation des "sphères dures" et sur la relation (1). Le point important est que l'on trouve, pour des énergies de primaires inférieures à 50 keV environ, des libres parcours de l'ordre des distances interatomiques. Ceci revient à dire que les lacunes formées restent concentrées dans un petit volume autour duquel les interstitiels, en nombre évidemment égal, sont éjectés. Cette configuration d'une zone lacunaire entourée d'une sorte de coquille d'interstitiels est probablement parfaitement instable et s'effondre, avec recombinaison au moins partielle des lacunes et des interstitiels. Dans le cas d'un corps pur, il ne subsistera presque aucun défaut dans la région de la pointe : seul un dégagement de chaleur la manifestera. Par contre, dans le cas des alliages, et a fortiori des composés comme le mica, les atomes reprennent mal leur place et il subsiste une région très endommagée, caractérisée par un fort désordre atomique, qui correspond sans doute à ces "boules" observées en microscopie. Des expériences récentes [10] prouvent qu'un mica très fortement irradié aux fragments de fission devient complètement amorphe.

Cette théorie est loin d'être complètement satisfaisante, du moins dans le cas des fragments de fission. Nous avons vu en effet, que le libre parcours moyen de chocs de "sphères dures" devait, théoriquement, diminuer le long de la trajectoire. Ceci est loin d'être prouvé expérimentalement, car si, en effet, les boules de dommages ne sont pas équidistantes, on n'a encore pu déterminer si leur espacement augmentait ou diminuait au fur et à mesure du ralentissement de la particule. De nouvelles expériences sont à effectuer pour éclaircir ce point.

Rappelons, pour terminer, que ce concept de "pointe de déplacement" a été introduit pour expliquer pourquoi le nombre de défauts créés croît moins vite que linéairement avec le flux des particules. Il s'oppose au concept de "pointe thermique", dans lequel on suppose qu'après choc, le cristal est chauffé dans un certain volume et que, par conséquent, dans ce volume, une forte diffusion des atomes peut avoir lieu, facilitant la recombinaison des défauts.

En résumé, le passage d'un fragment de fission dans un réseau cristallin peut se traduire du moins qualitativement :

- a) par une forte ionisation, qui peut donner lieu à des défauts permanents dans les isolants;
- b) par des déplacements individuels d'atomes par chocs coulombiens;
- c) par des déplacements collectifs d'atomes par collisions de sphères dures.

Tous ces phénomènes s'accompagnent de dégagement de chaleur et l'observation d'une trace matérialise, sans doute, un canal fortement chauffé puis refroidi, avec de loin en loin, des zones de structure cristalline intensément perturbée.

La formation de pointes de déplacement peut expliquer l'observation des boules de dommage au microscope électronique.

La création continue de défauts de réseau le long de la trace peut, elle, expliquer l'attaque de ces traces par un agent chimique approprié. En effet, un échantillon de mica non irradié recuit 2 heures à 800°C se dissout complètement en quelques minutes dans l'acide fluorhydrique. Il en est sans doute de même pour la région endommagée par ionisation, où cette attaque est très rapide [4] et [11]. La vitesse d'attaque étant nulle perpendiculairement aux plans de clivage, mais non parallèlement à ceux-ci, la trace, une fois débouchée, ne s'allonge pas, mais croît régulièrement en diamètre.

Nous avons résumé dans le tableau I les procédés d'attaque utilisés pour révéler les traces dans quelques isolants usuels (d'après [12]).

- 7 -

Détecteur utilisé	Ag	gent d∮a	ttaque	Temp	s d'attaque
Mica muscovite	HFO	oncentr	é 20°C	30	minutes
Mica biotite	n	Π	n	10	secondes
Mica phlogopite	Π	11	Π	1	minute
Mica synthétique	n	11	11	2	minutes
Talc	π	n	11	15	minutes
Silice fondue	"	11	17	30	secondes
Verre au phosphate	11	11	TT	30	minutes
Verre ordinaire	11	- 11 .	tt (3	secondes
Polycarbonates*	Na C)H 300 g	/1 60°C	30	minutes
Polytéréphtalates **	K OF	I 300 g	/1 60°C	30	minutes
d'éthylène					

TABLEAU I

* par exemple : le Makrofol (fabriqué par BAYER A.G., distribué en France par la Société SOGEP)

** par exemple : le Mylar ou Terphane.

ID - ETUDES QUANTITATIVES

Ib.1 - Efficacité d'enregistrement des fragments de fission

Les premières utilisations pratiques de l'enregistrement des traces dans le mica ont surtout été orientées vers l'étude des particules accélérées, et ces travaux sont exposés dans [3] et [13].

On peut notamment retenir de ces travaux que, dans le mica, seuls les ions de masse supérieure à 35 (chlore) peuvent être enregistrés avec un rendement égal à l'unité, à conuition que leur énergie soit inférieure à une certaine limite (80 MeV pour les ions chlore). Lorsque la masse de l'ion augmente, cette limite supérieure s'élève et tous les fragments de fission entrent dans la catégorie des ions pouvant être enregistrés (figure 4).

Dans les hauts polymères, comme le Lexan et le Makrofol (qui sont des polycarbonates), ou le Mylar (polytéréphtalate d'éthylène), la limite inférieure des masses est plus basse et on peut enregistrer des ions oxygène d'énergie inférieure à 40 MeV.

Enfin, dans le nitrate de cellulose, on peut enregistrer des particules \checkmark de 3 MeV.

Pour vérifier l'efficacité d'enregistrement des fragments de fission dans le mica, les hauts polymères et le verre, nous avons irradié par des neutrons ces matériaux appliqués contre des sources minces en uranium naturel [14]. Sur les mêmes sources, nous avons posé des émulsions nucléaires du type Ilford K2, pour pouvoir établir le rapport entre le nombre de traces dans tous les échantillons utilisés. Cette émulsion a été choisie pour plusieurs raisons :

- son efficacité d'enregistrement des fragments de fission est bien connue et égale à l'unité;
- les traces laissées par les particules
 ✓ et celles laissées par les
 fragments de fission y sont parfaitement différentiables;
- elle est très peu sensible au rayonnement V de la pile, qui noircit d'autres émulsions, comme l'Ilford KO qui a été également essayée.

L'épaisseur des sources en uranium a été choisie très faible (moins de 1000 Å), c'est-à-dire très inférieure au parcours moyen des fragments de fission dans l'uranium (qui est de l'ordre de 7 μ), ceci pour éviter leur absorption dans la source.

Dans le cas du mica muscovite et des hauts polymères, l'efficacité d'enregistrement des fragments de fission a été trouvée égale à l'unité, aux fluctuations statistiques près.

Les principaux résultats sont résumés dans le tableau 2.

SOURCE	Densité dans le	Densité dans	Densité dans le
	mica (t/cm²)	l'émulsion (t/cm²)	plastique (t/cm²)
1 2 3 4 5	$(4 \pm 0, 1) \cdot 10^{4}$ $(6, 4 \pm 0, 2) \cdot 10^{4}$ $(11 \pm 0, 4) \cdot 10^{4}$ $(8, 5 \pm 0, 3) \cdot 10^{4}$ $(26, 4 \pm 1) \cdot 10^{4}$	$(3,9\pm0,1).10^{4}$ $(6,1\pm0,2).10^{4}$ $(11,3\pm0,4).10^{4}$ $(8\pm0,2).10^{4}$	$(27, 6 \pm 1).10^4$

TABLEAU 2

Par contre, dans le verre, cette efficacité n'est que de (40 ± 5) %.

Pour confirmer ces résultats, des mesures de longueurs de traces ont été effectuées. Pour obtenir la longueur exacte des traces, nous avons mesuré la projection de chaque trace sur un plan de clivage au moyen d'un micromètre oculaire et sa profondeur par mise au point sur chacune de ses extrémités. La répartition des longueurs portant sur 100 traces est donnée figure 5. L'inté-

- 9 -

- 10 -

rêt de cette répartition est qu'elle montre qu'aucune des traces mesurées n'a une longueur inférieure à 4 μ , et donc qu'aucune trace n'est suffisamment courte pour n'être pas visible et comptée.

De cette répartition, on peut également déduire un parcours moyen des fragments de fission dans le mica; soit Li la longueur d'une trace et Pi sa probabilité. La longueur moyenne de l'ensemble des traces sera, par définition :

$$R_0 = \frac{\sum Pi Li}{\sum i}$$

On trouve, tous calculs faits : R_0 = (9,5 ± 0,5) μ .

Ib.2 - Etude quantitative des traces de fission provoquées dans le mica Ib.2a - Traces induites dans le mica par les impurétés fissiles :

Le mica naturel contient de l'uranium en impuretés dont la concentration atomique peut varier considérablement, de quelque 10^{-8} à 10^{-11} pour les micas les plus purs. Lorsqu'on irradie le mica par des neutrons thermiques, l'uranium 235 contenu dans le mica subit la fission et les deux fragments produits sont enregistrés. Si on attaque chimiquement le mica, on peut compter le nombre de traces qui débouchent à sa surface et en déduire, après étalonnage, le flux auquel a été soumis l'échantillon. Mais il est préférable de cliver le mica juste avant attaque, et de compter ensuite les traces qui débouchent sur un plan fraîchement clivé, ceci pour éviter de compter les traces induites par l'emballage et les poussières atmosphériques qui contiennent des noyaux fissiles.

Soit un échantillon de mica d'épaisseur infinie, c'est-à-dire très supérieure au parcours moyen des fragments de fission, et considérons un plan de clivage pris dans la masse.

Soit: No

 N_O le nombre total d'atomes par cm³ de mica,

- C la concentration atomique en U,
- I l'abondance isotopique de ²³⁵U,

 σ_{f5} la section efficace de fission de ²³⁵U,

Li le parcours d'un fragment i quelconque dans le mica,

- Pi la probabilité que ce fragment i ait une longueur Li,
 - Øt le flux total auquel est soumis l'échantillon.



Plan de clivage A

1') Soit un noyau d'uranium 235 subissant la fission en K, à la distance e du plan de clivage A. Le fragment dirigé vers ce plan a une longueur Li. Il ne traversera le plan que s'il est compris dans l'angle solide Ω de $\frac{1}{2}$ angle au sommet θ . La probabilité qu'il traverse ce plan sera donc :

$$P_{t} = \frac{\Omega}{2 \pi} - \frac{1}{2 \pi} \cdot \frac{2 \pi \text{ Li } (\text{Li} - e)}{\text{Li}^{2}}$$
$$P_{t} = \frac{\text{Li} - e}{\text{Li}} (\text{Si} \text{ Li} \leq e, P_{t} - 0)$$

2°) Le nombre de fissions par cm³ de mica est, en posant N₅ = N₀C I : $N_f = N_5 \sigma_{f5}^2 \delta t$

Il est égal au nombre de fragments dirigés vers le plan A.

Le nombre de fragments prenant naissance dans une couche d'épaisseur <u>de</u> à une distance e du plan A sera (par cm²) :

$$dN_{f} = N_{f} de = N_{5}\sigma_{f5}$$
 Øt de .

Le nombre de ces fragments ayant une longueur Li sera :

Le nombre de fragments i traversant le plan A sera :

$$d(D_{fi}) - dN_{fi} \cdot P_t - N_5 \circ f_5 \ \delta t Pi \frac{Li - e}{Li} de$$

Le nombre total de traces correspondant aux fragments i de parcours Li traversant A sera :

$$(D f_{i}) - \int_{0}^{Li} d (Df_{i}) = N_{5} \sigma_{f5} \phi t Pi \int_{0}^{Li} \frac{Li - e}{Li} de$$
$$- \frac{1}{2} N_{5} \sigma_{f5} \phi t Pi Li$$

Il y a autant de fragments de fission venant du demi-espace inférieur à A, et, au total : $(D_{fi}) = N_5 \sigma f_5 \$ t Pi Li

Pour l'ensemble des traces obéissant à la répartition donnée (fig. 2) on a :

$$D_f = N_5 \sigma_{f5} \phi t \sum_{i} P_i L_i$$

 $\begin{array}{c} \sum Pi \ Li \\ 0r \ \underline{1} \\ \hline \Sigma \ Pi \\ i \end{array} = R_0 = 1 \text{ longueur moyenne de traces } (\sum Pi = 1) \\ \underline{1} \\ 1 \end{array}$

d'où
$$D_{f} = N_{5} \sigma_{f5} R_{0} \phi t$$

Application numérique : La formule chimique du mica est :

$$K_{2} \ 0. \ 3 \ Al_{2} \ 0_{3}. \ 6 \ SiO_{2}. \ 2 \ H_{2}O \ , \ d'où$$

$$N_{0} = \frac{6.02.10^{23} \times 2.85 \times 42}{796} = 0.9.10^{23} \ at/cm^{3}.$$
Puisque N₅ = N₀ IC , avec I = 1/140, on a :

$$N_{5} = 6.47.10^{20} \ C \ atomes/cm^{3}$$

$$\overline{O_{1}}_{5} = 500 \ barns = 5.10^{-22} \ cm^{2}$$

$$R_{0} = 9.5 \ \mu = 9.5.10^{-4} \ cm$$
d'où
$$D_{1} = 0.30_{7}.10^{-3} \ C \ \emptyset t \ traces \ /cm^{2}$$

En mesurant Df, on voit que l'on peut déterminer \emptyset t si l'on connaît C, et inversement. Pratiquement, cette relation servira surtout à calculer la concentration en uranium dans le mica, soit :

$$C = 3,25.10^3 \frac{D_f}{\phi t}$$
.

Nous verrons au chapitre II que pour mesurer un flux de neutrons, on partira d'une irradiation étalon qui, pour un flux $(\emptyset t)_e$ nous donnera une densité de traces $(D_f)_e$. Une irradiation quelconque produira une densité de traces D_f , et le flux correspondant aura pour valeur :

(Df)e

Ib.2b - Traces induites dans le mica par une source extérieure épaisse :

Ce cas se présente, soit pour mesurer un flux très faible à l'aide d'une source épaisse fissile (parag. II d. et III c.), soit pour doser un élément fissile à l'état de traces dans certains matériaux (parag. IV a).

Dans les 2 cas, on accole une source épaisse à une lame de mica et on irradie l'ensemble avec des neutrons thermiques. Le calcul est le même que dans le parag. I.b.2a, à un facteur $\frac{1}{2}$ près qui intervient du fait que les fragments de fission ne peuvent venir que d'un côté du plan de mesure. No est alors le nombre d'atomes par cm³ du corps étudié et R₀ le parcours des fragments de fission dans ce corps, on obtient :

$$Df = \frac{1}{2} N_0 C I \sigma_5 R_0 \not ot$$

Valeur de Ro : La principale source d'erreur de cette méthode vient de la valeur moyenne à utiliser pour le parcours des fragments de fission dans les substances étudiées. A part le mica et l'aluminium pour lesquels les différents auteurs sont à peu près d'accord, il existe de nombreuses divergences entre les mesures sur les parcours. Ces valeurs sont résumées dans le tableau 3 [15].

	Matières organiques	Al	Cu	Ag	Au	U
Parcours mg/cm ² (1)	2,6	3,7	5,2	6,1	11,1	12,6
Parcours mg/cm ² (2)	-	3,9	6,6	7,5	11,1	-
Parcours mg/cm ² (3)	-	3,7	-	-	-	-

TABLEAU 3

- Pour le mica, nous avons adopté : $\frac{R_0}{2,7} = 9,5 \ \mu;$ - Pour l'aluminium : $R_0 = \frac{3,7.10^{-3}}{2,7} = 1,4.10^{-3} \text{ cm soit } \frac{R_0 = 14 \mu.}{2}$

- Pour le magnésium, dont le numéro atomique ne diffère que d'une unité de celui de l'aluminium, le parcours massique sera le même, et :

 $R_{0} = \frac{3.7.10^{-3}}{1.74} = 2.1.10^{-3} \text{ cm soit } \frac{R_{0} = 21 \ \mu.}{1.74}$ - Pour l'uranium, on a $R_{0} = \frac{12.6.10^{-3}}{18.7} = 0.68.10^{-3} \text{ cm soit } R_{0} = 6.8 \ \mu.$

D'autres auteurs utilisent R_0 = 4 μ ou 5 μ . On voit donc qu'il existe une dispersion assez grande entre ces différentes valeurs, et que des mesures complémentaires seront nécessaires. Pour notre étude, nous adopterons : $R_0 = 6,8$ μ .

- Pour le thorium, le parcours massique est le même que pour l'uranium : 12 6 10-3

$$(Z_{\text{Th}} - Z_{\text{U}})$$
 et $R_{\text{O}} = \frac{12, 0.10^{-10}}{11, 5} = 1, 1.10^{-3}$
 $R_{\text{O}} = 11 \ \mu.$

Nous avons vu, dans le premier chapitre, que les phénomènes intervenant lors du ralentissement des fragments de fission sont assez nombreux et complexes, et

- 14 -

sont, pour l'instant, assez mal étudiés. Ceci explique peut-être la dispersion des résultats concernant la mesure du parcours. La structure même du matériau utilisé peut intervenir, selon qu'il est écroui ou recuit, et, dans ce dernier cas, la température à laquelle il a été recuit. Des phénomènes de focalisation ("focusing") ou de canalisation ("channeling") peuvent prendre une certaine importance, notamment dans le cas de l'uranium : dans certaines conditions, des axes vides d'atomes sont parcourus sans interaction par des fragments de fission, et ceux-ci pourront alors avoir un parcours beaucoup plus grand qu'un fragment suivant un trajet normal. La longueur de ces axes vides dépendant de la grosseur des grains, donc du traitement préalable de l'uranium, il en sera de même pour le nombre de fragments de fission profitant de l'effet de canalisation.

Ib.2c - Traces induites par une source extérieure mince :

Ce cas se présente lors de la mesure des flux de l'ordre de 10^{10} n/cm² (cf. parag. II c). Le nombre de fragments de fissions enregistré est alors égal au nombre de fissions induites dans la source, soit : $D_{f} = N_{0} I e \sigma_{fs} \emptyset t$, où e est l'épaisseur de la source.

Ib.3 - Influence des agents extérieurs

Ib.3a - Influence de la température

Des expériences de recuit ont été faites sur différents micas irradiés [3]. Elles ont montré que, dans le cas du mica muscovite, un traitement thermique de 1 h. à 800°C n'influait pas sur l'aspect des traces au microscope électronique. Par contre, une fois recuites, ces traces deviennent difficilement révélables par le traitement chimique usuel [6] et la figure 6 donne l'allure de l'efficacité d'enregistrement après attaque pour différents recuits. Ces courbes sont valables pour une attaque normale de 30 à 40 minutes dans l'acide fluorhydrique à la température ambiante.

<u>Expérience</u> : Pour déterminer cette efficacité après recuit, nous avons irradié pendant le même temps un certain nombre de lamelles de mica au moyen d'une source de 252_{Cf} donnant environ 1000 fissions cm⁻² mn⁻¹ à 2 mm; nous avons ensuite recuit les échantillons à des températures différentes (350°C, 450°C, 550°C) pendant des temps différents (1 h., 2 h., 4 h., pour les 3 températures, 16 h., 48 h., et 120 h., pour le recuit à 550°C), puis nous avons attaqué en même temps tous les échantillons, y compris 2 échantillons non recuits servant d'étalons. Une attaque normale de 30 minutes à 20°C dans FH à 50 % confirme les résultats de [6]. Au-delà d'un recuit de 4 h. à 450°C, ou 1 h. à 550°C, les traces deviennent très courtes et sont difficilement discernables des défauts du mica. Nous avons donc réattaqué fortement (1 h. à 40°C, FH à 50 %) l'ensemble des échantillons, puis fait un nouveau comptage. L'efficacité d'enregistrement reste alors la même jusqu'à un recuit ultime de 120 h. à 550°C, bien que l'allure des traces change considérablement, devenant alors de grandes figures de corrosion en forme de losange, sans profondeur, mais très caractéristiques (figure 7).

Ceci montre que l'on peut utiliser le mica en tant que détecteur de neutrons dans des réacteurs à température assez élevée.

Pour vérifier qu'une attaque prolongée ne révélait pas, sous forme de losange, d'autres défauts que les traces de fission, nous avons attaqué fortement un échantillon non irradié recuit 16 h. à 550°C. Le nombre de losanges ainsi compté représente environ 1 % du nombre de traces provoquées par irradiation et sont donc négligeables. Elles proviennent sans doute de traces de fond non détruites par le recuit.

1b.3b - Influence du temps d'attaque :

L'efficacité d'enregistrement étant égale à l'unité, le temps d'attaque ne devrait avoir aucune influence sur cette efficacité. Néanmoins, pour des attaques assez intenses, telles celles utilisées au chap. IC.4a, trois phénomènes parasites peuvent intervenir :

- tout d'abord, des traces de fond partiellement recuites, soit au cours de la vie du mica, soit artificiellement pour les supprimer avant utilisation, peuvent réapparaître et donner une densité supérieure à la densité réelle.

- dans le cas où on utilise une source épaisse, un certain nombre de traces sont très courtes, et ne donnent qu'un point lorsqu'on les observe au microscope optique après une attaque normale et on peut difficilement les identifier comme traces. Par contre, elles deviennent figures de corrosion en forme de losange lorsqu'on prolonge l'attaque et on peut alors les compter. On atteint à ce moment la véritable densité.

- la forme d'une trace fortement attaquée est prismatique, et sa section est uniforme tout au long de son parcours. Pour des densités très élevées $(> 10^6 t/cm^2)$ elles peuvent alors se chevaucher, et les plans de clivage superficiels peuvent disparaître. Il en est de même pour les traces les plus courtes qui sont éliminées, et l'on ne mesure plus à ce moment la véritable densité, mais une densité inférieure.

Il faut donc tenir compte de ces différents phénomènes avant de réaliser une attaque prolongée, suivant la densité des traces et la nature de la source de fragments de fission.

- 15 -

- 16 -

Ib.3c - Traces de fond :

Nous avons vu que le mica, naturel ou artificiel, contient de l'uranium en impureté en concentration variable. Cet uranium, présent à la forma-' tion du mica ou introduit ultérieurement par infiltration ou diffusion, subit la fission spontanée, notamment l'uranium 238 (dont la période de fission spontanée est de 10¹⁸ ans, contre environ 2.10¹⁷ ans pour l'uranium 235 et 1,4.10¹⁸ ans pour le thorium 232). Ces fissions laissent des traces aussi bien que les fissions provoquées par irradiation artificielle, et ces traces donnent un fond dont la densité dépend de la concentration en uranium et de l'âge du minéral. Cette propriété a été utilisée par Walker et al, pour une détermination de l'âge du mica [6]. Dans les utilisations que nous étudions, ces traces de fond constituent plutôt une gêne, car leur densité est très variable (de 10^2 à 10^4 t/cm^2) et est loin d'être négligeable. On peut, pour en tenir compte, faire un comptage de ces traces avant toute manipulation, et les déduire du comptage final. Mais la valeur absolue de leur densité nous étant inutile, il vaut mieux les éliminer a priori, soit en attaquant fortement l'échantillon avant utilisation, ce qui donne aux traces de fond des dimensions très supérieures à celles des traces nouvellement produites, soit en faisant un recuit préliminaire de 1 ou 2 h. à 600°C, qui les fait disparaître pratiquement entièrement et ne nuit pas à l'efficacité d'enregistrement du mica. Dans ce dernier procédé, il ne faudra pas, malgré tout, attaquer le mica trop fortement après irradiation, puisque nous avons vu (Ib.3a) qu'une attaque prolongée permettait de révéler les traces que l'on croyait recuites.

Ib.4 - Sensibilité

La sensibilité de ce détecteur de fragments de fission dépend des densités limites de traces que l'on peut déterminer. Au microscope optique, ces densités doivent être comprises entre 10^2 et 3.10^6 t/cm² : au-dessous de 10^2 t/cm², l'erreur statistique devient inadmissible; au-delà de 3.10^6 t/cm², les traces se chevauchent et sont alors difficiles à dénombrer. Entre 10^2 et 5.10^5 t/cm², le comptage s'effectue directement au microscope (à l'oculaire ou sur dépoli); au-delà de 5.10^5 t/cm², on peut le réaliser sur photographie.

Un nouveau procédé permet d'abaisser, du moins dans certains cas, la limite inférieure des densités de traces admissibles [17]. On utilise pour cela un film mince en matière plastique métallisée. Après irradiation aux fragments de fission, le plastique est attaqué normalement par la soude (cf. par. 1a), mais uniquement du côté non métallisé. La soude traverse les canaux qu'elle révèle et attaque très vite l'aluminium se trouvant de l'autre côté du film. La tache laissée dans l'aluminium est beaucoup plus grosse que la trace qui lui a donné naissance (fig. 8a et b) et, pour une attaque d'environ 20 minutes à 50°C, ces taches deviennent visibles à l'oeil nu. On peut ainsi mesurer des densités de traces extrêmement faibles, de l'ordre de 1 t/cm² ou même 1 t/m².

Pour montrer que, lorsqu'on choisissait correctement le film métallisé, seules les traces induites par irradiation donnaient naissance à des taches, nous avons irradié au moyen d'une source de californium 252 un échantillon de mylar métallisé de 6 μ . Entre la source de fragments de fission et le mylar, nous avons interposé un cache dans lequel nous avons découpé le mot "FIN". Après attaque, seules les parties de l'échantillon se trouvant en face du découpage présentent des taches, ainsi que le prouve la figure 8c. Si le film utilisé a une épaisseur bien homogène, le rapport entre le nombre de taches et le nombre de traces est constant et d'autant plus proche de l'unité que le film est plus mince.

- 17 -

DEUXIEME PARTIE : UTILISATIONS

II. DOSIMETRIE DE NEUTRONS THERMIQUES

IIa - FLUX INTENSES

Ainsi que nous l'avons vu dans le chapitre Ib.2a, on peut utiliser les impuretés d'uranium dans le mica pour doser le flux de neutrons auquel a été soumis l'échantillon. En étudiant la relation $D_f = K.C.$ Øt, on voit que pour C constant, D_f et Øt dépendent linéairement l'un de l'autre et la détermination, sur un plan interne, de la densité de traces D_f peut fournir directement le flux Øt.

Les densités de traces devant être comprises entre 10^2 et 3.10^8 t/cm², les limites entre lesquelles un flux total peut être mesuré par ce procédé sont donc : $\frac{3.10^5}{C} \leq \text{Øt} \leq \frac{9.10^9}{C} \text{ n/cm}^2$.

Pour une concentration $C = 10^{-11}$ (ordre de grandeur pour un mica muscovite, tel que celui que nous avons utilisé), on a donc :

 $3.10^{16} \leq \text{Øt} \leq 10^{21} \text{ n/cm}^2$

Expérience :

Nous avons procédé à une série d'irradiations avec le mica que nous possédions. Chaque irradiation a été dosée au moyen d'un moniteur au cobalt (alliage Al-Co à 1% de Co en poids) et le comptage a été effectué sur un ensemble de comptage à scintillation à cristal de Na I (Tl). L'étalonnage a été réalisé avant et après chaque comptage au moyen de 2 sources étalons (fournies par le Laboratoire de Mesure des Radioéléments de Saclay), les valeurs de ces sources encadrant la valeur présumée du moniteur.

Le flux était déduit de la valeur absolue de l'activité du moniteur d'après la relation $ilde{ extsf{dt}} = 2,56.10^{16} \frac{ extsf{A}}{ extsf{M}}$, (où $ilde{ extsf{dt}}$ est le flux moyen) où $extsf{A}$ = activité du moniteur en μ Ci, $extsf{M}$ = masse de cobalt en mg.

- 19 -

Pour l'établissement de cette relation, nous avons utilisé les valeurs de Beaugé [16], soit :

```
Période - 5,24 \pm 0,02 ans,
```

- Section efficace à 2200 m/s = $38 \pm 0,7$ barns.
- 1 Dans une première série de mesures, nous avons trouvé : (tableau 4a et figure 9)

Irradiation	Flux mesuré (n/cm²)	Densité de traces (t/cm²)	Erreur relative
· A	1,6 .10 ¹⁶ ± 5 %	50 + 8	- 5 %
В	$1,47.10^{17} \pm 5 \%$	472 ± 35	- 2 %
C	$1,04.10^{18} \pm 5 \%$	$(3,57 \pm 0,15)10^3$	+ 4,5 %
D	$1,51.10^{19} \pm 5 \%$	$(4,83 \pm 0,2)10^4$	- 2,5 %
Н	$4.10^{18} \pm 5\%$	$(1,40 \pm 0,04)10^4$	+ 6,5 %

TABLEAU 4a

L'équation de la droite traversant les barres d'erreurs est :

Df = 3,28. 10,
15
 øt,

et nous avons porté dans la 4ème colonne l'erreur relative entre la valeur expérimentale et cette valeur moyenne. La concentration atomique en uranium est $C = 1,0_7.10^{-11}$.

 2 - Une deuxième série d'irradiations a été effectuée avec des échantillons prélevés dans une autre partie de la même plaque de mica. Les résultats en sont résumés dans le tableau 4b et la fig. 9

TABLEA	U	4 b
--------	---	------------

Irradiation	Øt mesuré n/cm²	Df t/cm ²	Erreur relative
N	6,81.10 ¹⁶	363 <u>+</u> 24	+ 6,75 %
0	4,22.10 ¹⁷	$2,03.10^3 \pm 80$	- 4 %
Р	6,73.10 ¹⁷	$(3,37 \pm 0,1).10^3$	+ 0,4 %
Q	3,39.10 ¹⁸	$(1,39 \pm 0,04).10^4$	- 21 %
R	9,17.10 ¹⁸	$(4,58 \pm 0,11).10^4$	0 %

- 20 -

On voit donc qu'à l'intérieur d'une même plaque de mica, la concentration en impuretés d'uranium peut varier considérablement. Si l'on veut se servir couramment du mica comme dosimètre de neutrons, il faudra donc sélectionner des feuilles dans lesquelles la concentration est uniforme, ce qui pourra se faire par irradiation préalable d'échantillons prélevés au hasard dans chaque feuille.

On peut pallier à cet inconvénient en fabriquant un verre dans lequel on a introduit artificiellement une quantité connue d'uranium. Une fois débité en lamelles, ce verre est utilisé comme le mica. Les inconvénients d'un tel procédé sont :

 - nécessité d'utiliser des échantillons parfaitement propres avant irradiation pour éviter la formation d'étoiles à partir de poussières atmosphériques (par. V) (impossibilité de cliver l'échantillon avant attaque);

- efficacité d'enregistrement faible et à déterminer (=40 %) [14].

Le verre brunit très vite par irradiation aux \checkmark . On peut remédier au au premier inconvénient en attaquant le verre assez longtemps : l'acide fluorhydrique attaque très vite le verre et en supprime la surface contaminée, ne laissant plus apparaître qu'un plan interne.

L'avantage de l'utilisation d'un tel verre est que, si l'élaboration en a été très soignée, on peut obtenir une grande quantité ayant une concentration en uranium très homogène.

Appauvrissement en uranium 235 :

a) Lorsque l'on irradie de l'uranium, les noyaux d'uranium 235 disparaissent par capture (suivie ou non de fission) selon la loi :

$$N_5 = N_{05} e^{-\sigma_5 \phi t}$$

Le nombre de fissions correspondant est:

$$N_{f \mathfrak{S}} = N_{05} \frac{\sigma_{f_5}}{\sigma_5} (1 - e^{-\sigma_5 \mathfrak{G} t}) \quad (1)$$

Pour les flux intégrés faibles ($\emptyset t \le 10^{19} \text{ n/cm}^2$), cette relation se réduit à N_{\$5} $\tilde{_}$ N₀₅ $\sigma_{$5} \emptyset t$ (2). Par contre, on fait une erreur de:

$$4 \% a Øt = 10^{20} n/cm^2$$

en conservant la relation (2) au-delà de 10^{19} n/cm².

b) En contrebalance de cet appauvrissement en uranium 235, il faut tenir compte de la formation de plutonium 239 à partir de l'uranium 238. L'évolution du nombre d'atomes de plutonium en fonction du flux intégré est donnée par :

- 21 -

- 22 -

$$N_{\theta} = N_{0\theta} \frac{\sigma_{\theta}}{\sigma_{\theta} - \sigma_{\theta}} \left[e^{-\sigma_{\theta}} \not \theta t - e^{-\sigma_{\theta}} \not \theta t \right]$$
(3)

et le nombre correspondant de fissions par :

$$N_{f^{9}} = N_{08} \frac{\sigma_{8} \sigma_{f9}}{\sigma_{9} - \sigma_{8}} \left[\frac{1}{\sigma_{8}} \left(1 - e^{-\sigma_{8}} \overset{\emptyset t}{} t \right) - \frac{1}{\sigma_{9}} \left(1 - e^{-\sigma_{9}} \overset{\emptyset t}{} t \right) \right]$$
(4)

Le nombre réel de fissions est donc : $N = N_{f^5} + N_{f^9}$, et l'erreur commise par application de (2) au lieu de (4) est de : 2 % pour Øt = $10^{20} n/cm^2$,

et 6 % pour
$$\emptyset$$
t = 10²¹ n/cm².

Mesure de taux de combustion :

Par définition, le taux de combustion d'un combustible irradié est :

Pour l'uranium naturel, on obtient : $\tau = \frac{N_5 \sigma_{f^5} \not gt}{NV} = 0,36.10^{-23} \not gt.$

En utilisant les traces laissées par fission dans le mica, on aura

 $\tau = \frac{Df}{N_0 C R_0}$, où Df = nombre de traces/cm², (qui est alors égal au nombre d'atomes ayant subi la fission dans une épaisseur de R_0 cm sur une surface de 1 cm²).

Pour le mica muscovite, $N_0 = 0,90_6$. 10^{23} at/cm³, et $R_0 = 9,5.10^{-4}$ cm

1'où
$$\tau = 1,16 \cdot 10^{-20} \frac{\text{Df}}{\text{C}}$$

Application numérique :

Considérons l'irradiation D, nous avons :

Une fois le mica bien étalonné, ce procédé semble plus simple que le premier, qui oblige à calculer à chaque fois le flux intégré. D'autre part, lorsqu'on cherche à déterminer un taux de combustion, on doit tenir compte de la totalité des atomes brûlés : les mesures de flux par activation ne donnent en général que le flux thermique, donc le nombre d'atomes brûlés dans le domaine thermique.

La mesure du taux de combustion par le mica donne donc le nombre d'atomes brûlés sur tout le domaine du spectre, thermique, intermédiaire et rapide.

Effet des neutrons rapides et épithermiques :

Dans un spectre bien thermalisé, environ 0,5 % des fissions provoquées dans un échantillon d'uranium naturel sont dues à la fission par les neutrons rapides dans l'uranium 238, et 2,5 % à la fission par les neutrons épithermiques et rapides dans l'uranium 235. En comptant toutes les traces provoquées par irradiation dans le mica, on fait donc une erreur d'environ 3 %, mais l'étalonnage du mica se faisant à partir d'un moniteur autre que l'uranium, ce problème est sans importance, du moins tant qu'on ne change pas de spectre.

Lorsque l'on utilise un spectre moins bien thermalisé (pile piscine, par exemple), le flux en ralentissement est sensiblement le même que pour un flux bien thermalisé. Par contre, le flux rapide est plus important (on admet \emptyset rap/ \emptyset th de l'ordre de 1/10 à E L 2, de l'ordre de 1/5 de Triton). Donc, environ 1 % des fissions enregistrées dans le mica seront dues aux fissions rapides dans l'uranium 238, et 3,5 % des traces seront alors dues aux fissions rapides et épithermiques. Nous avons obtenu, à Triton, dans un flux de 9.10¹⁸ n/cm² :

échantillon nu: Df= $4,20.10^4$ t/cm²échantillon sous cadmium: D'f= $1,4.10^3$ t/cm²

soit un rapport de 3,5 %.

IIb - FLUX MOYENS

En utilisant, pour emballer nos échantillons, de l'aluminium du commerce, nous avons constaté qu'il contenait de l'uranium dans ces proportions, et de façon reproductible le long du rouleau.

Par exemple, nous avons obtenu : (en utilisant les relations du paragraphe Ib.3) $ilde{ extsf{pt}} = 1,6 \cdot 10^{16} \text{ n/cm}^2$, Df = 2,4 $\cdot 10^5 \text{ t/cm}^2$: C = 1,02.10⁻⁷ $ilde{ extsf{pt}} = 3,325 \cdot 10^{16} \text{ n/cm}^2$, Df = 4,65.10⁵ t/cm² : C = 0,95.10⁻⁷ On peut adopter la valeur moyenne C = 10⁻⁷ at.

En prenant comme limites $10^2 \leq Df \leq 3.10^6 t/cm^2$, on peut mesurer des flux compris entre $7.10^{12} n/cm^2$ et $2.10^{17} n/cm^2$.

- 24 -

IIC - FLUX FAIBLES

Pour des flux totaux inférieurs à 10^{13} n/cm², on utilise une source mince d'uranium naturel. Ce procédé a été utilisé pour vérifier l'efficacité d'enregistrement des fragments de fission dans le mica et les matières plastiques [14], et l'intérêt de ce système réside en ce que l'épaisseur de la source ($\tilde{-}$ 100 Å) étant beaucoup plus faible que le parcours des fragments de fission dans l'uranium ($\tilde{-}$ 7µ), il n'y a pas d'absorption de cos fragments dans la source Les traces sont alors toutes parfaitement visibles et plus faciles à compter avec un temps d'attaque normal.

Par contre, apparaît un nouvel inconvénient : la connaissance exacte de l'épaisseur de la source. Le moyen le plus classique pour déterminer ce paramètre est le comptage α , en sachant que 1 µg d'uranium naturel émet 1,5 particule α par minute. Ce comptage peut se faire, soit au moyen d'une émulsion nucléaire, soit au moyen d'un compteur à scintillation. De l'activité mesurée, on déduit la masse d'uranium déposée sur la source, donc le nombre d'atomes par cm², le seul paramètre intéressant. Si N₀ est ce nombre, le nombre de fissions

produites par un flux
$$\emptyset$$
t sera Nf = $\frac{N_0}{140}$ Of₅. \emptyset t.

L'efficacité d'enregistrement étant égale à l'unité et le nombre de fragments de fissions absorbés dans la source nul, ce nombre Nf de fissions est égal à la densité Df de traces dans le mica.

En mesurant Df, on en déduit Øt par la relation :

ce qui donne, pour les densités de traces admises : $6.10^8 < 0t < 2.10^{13} n/cm^{-2}$.

IId - FLUX TRES FAIBLES

Avec les flux intégrés inférieurs à 10^9 n/cm^2 , nous arrivons aux doses d'intérêt biologique. On peut encore mesurer de tels flux en utilisant une source épaisse ($\gg 7 \mu$) d'uranium naturel ou enrichi. Au-delà de quelques dizaines de microns d'épaisseur, la connaissance exacte de cette épaisseur n'est plus nécessaire et seul intervient le parcours moyen des fragments de fission dans l'uranium (cf. parag. Ib-2b). Dans ce cas, le nombre de traces produites dans le détecteur soumis à un flux \emptyset t est :

$$Df = \frac{1}{2} N_0 \cdot I \cdot \sigma f_5 \ \text{ } \theta t \cdot R_0$$

Pour l'uranium naturel : I = $\frac{1}{140}$ et R₀ = 6,8µ = 6,8.10⁻⁴ cm

d'où	·	Df	**	$5, 8.10^{-5}$	Øt,
et		Øt	3	1,73.10	[‡] Df

ce qui donne, pour les densités de traces admises : $2.10^6 \le 0$ t ≤ 10 " n/cm².

On peut encore améliorer cette sensibilité en agissant sur deux paramèmètres indépendants :

- enrichissement de l'uranium,

- densité limite de traces.

On peut tout d'abord utiliser de l'uranium enrichi, par exemple à 20 %, ce qui nous fait gagner un facteur 30. Puis abaisser la limite inférieure de la densité mesurable des traces à 1 t/cm², soit un facteur 100, en utilisant le plastique métallisé (cf. parag. Ib-4).

IIe - RESUME

On voit qu'en utilisant le mica et les matières plastiques, soit en profitant des impuretés d'uranium qui s'y trouvent incluses, soit en leur adjoignant une source extérieure de fragment de fission, on peut mesurer des flux intégrés entre 10^3 n/cm et 10^{21} n/cm². Les différents procédés sont résumés dans le tableau suivant :

Øt n/cm² mesurables	Composition du détecteur
10 ³ - 10 ⁹	U enrichi d'épaisseur infinie + plastique méŧal lisé (1)
$6.10^8 - 2.10^{13}$	U naturel d'épaisseur 100 Å + plastique ou mica
$7.10^{12} - 2.10^{17}$	Alliage (aluminium + 10 ⁻⁷ U) + mica
$10^{16} - 10^{21}$	Mica + ses impuretés en uranium (C = 10 ⁻¹¹ at.)

(1) dans ce cas, si la densité des traces dépasse 100 t/cm^2 , on fait en comptage normal au microscope optique.

- 25 -

111 - DOSIMETRIE DE NEUTRONS RAPIDES

En utilisant le mica ou les matières plastiques comme détecteurs, on peut mesurer des flux de neutrons rapides, soit en utilisant les impuretés du mica, soit en adjoignant au détecteur une source extérieure fissile.

IIIa - FLUX INTENSES

On devrait pouvoir utiliser, comme pour les neutrons thermiques, les impuretés du mica, en enveloppant celui-ci dans du cadmium. Mais le problème est ici très compliqué, car, en plus des fissions rapides de l'uranium 238, vont intervenir les fissions épithermiques et rapides de l'uranium 235. De plus, on peut supposer que le mica contient du thorium 232, assez abondant sur terre. En première approximation, seules les fissions épithermiques de l'uranium 235 seront vraiment gênantes, puisque leur nombre est comparable à celles qui nous intéressent.

Pour pouvoir réaliser un dosimètre valable, il faudrait donc connaître exactement les spectres épithermiques et rapide du réacteur utilisé, en déduire les sections efficaces moyennes de fission de l'uranium 235 et de l'uranium 238 et, de là, calculer le rapport entre le nombre de fissions rapides et le nombre de fissions épithermiques. Du comptage des traces dans un échantillon de mica, on pourrait en déduire le nombre de fissions dues uniquement au flux rapide, d'où ce flux. Nous n'avons pas effectué ce calcul.

IIIb - FLUX FAIBLES

Pour des flux rapides moins intenses que ceux étudiés dans le chapitre précédent, le problème de la dosimétric est plus facile à résoudre. On peut, en effet employer des sources auxiliaires de matériau fissile à seuil. Les principaux sont : le neptunium 237, le thorium 232, l'uranium 238, dont les caractéristiques sont les suivantes :

_	237 _{Np}	:	seuil	à	0,2	MeV,	secti	efficace moyenne sur un spectre	de	fis-
					• •		sion	- 1,45 barn;		
-	238 _U	:	seuil	à	1	MeV,		- 312 mb ;		
-	232 _{Th}	:	seuil	à	1,2	MeV,		- 72 mb.		i.

- 26 -

Le plus intéressant serait évidemment ²³⁷Np, puisqu'il couvre l'ensemble du spectre de fission. Mais il est difficile à obtenir, de même d'ailleurs que 238₁₁

Il reste donc 232 Th, pour lequel la question d'approvisionnement ne se pose pas.

IIIb.1 - Flux moyens - Principe

On peut utiliser tout d'abord une source mince de thorium (100 A); on aura, en reprenant le calcul du paragraphe IIc : Df = $N_0 \cdot \overline{Of}$. Th. $(\emptyset t)_r$, où N_0 est le nombre d'atomes de 232 Th par cm² de source, $\overline{\sigma}_{fTh}$ la section efficace moyennée sur un spectre déformé comme celui de Triton est prise égale à 78 mb [18]. Pour e = 100 Å, $N_0 = 0, 3.10^{17} \text{ at/cm}^2$,

d'où Df = 2,34.10⁻⁹ (
$$\emptyset$$
t)_r, et (\emptyset t)_r = 4,3.10⁸ Df

Pour Df compris entre 10^2 et 3.10^6 on peut mesurer des flux rapides compris entre 4,3.10¹⁰ et 1,2.10¹⁵ n_/cm².

IIIb.2 - Flux très faibles

Pour des flux très faibles, inférieurs à 10^{11} n/cm², on utilise une source épaisse de thorium. Le principe est le même que pour la dosimétrie des neutrons thermiques avec une source épaisse d'uranium (par. IId). Le rapport entre le flux et le nombre de traces est encore donné par :

$$D_{f} = \frac{1}{2} N_{Th} \overline{\sigma_{fTh}} R_{0} (\emptyset t) \quad ou$$

$$(N_{Th} = 0, 3.10^{23} \text{ at/cm}$$

$$(R_{0} = 11.10^{-4} \text{ cm}$$

$$(\overline{\sigma_{fTh}} = 78.10^{-27} \text{ cm}^{2}$$

Pour D $_{\rm f}$ compris entre $10^{\,2}$ et $10^{\,6}$ t/cm , on mesure des flux compris entre 10^{8} et 10^{12} n/cm². La limite inférieure peut être abaissée à 10^{6} n/cm² en utilisant un plastique métallisé. Cette limite pourrait même atteindre 10^5 n/cm² en utilisant le neptunium 237, dont la section efficace est 20 fois celle du thorium.

Expérience : Nous avons réalisé une série d'irradiations aux neutrons rapides dans une source Pu-Be*. Les doses étaient comprises entre 5 et 50 rems (soit

Ces irradiations ont été effectuées au Service de Contrôle des Radiations et de Génie Radioactif (C.E.N. Fontenay-aux-Roses), grâce à l'obligeance de M. PORTAL.

- 28 -

environ 10^8 et 10^9 n/cm²). Le spectre neutronique d'une telle source n'est pas celui d'un spectre de fission (fig. 10.1) et la section efficace du thorium n'y est plus de 78 mb, mais plutôt d'environ 100 mb, valeur que l'on peut déterminer assez grossièrement par cette expérience. La variation du nombre de traces en fonction de la dose est représentée fig. 11.

L'équation de la droite est Df = 1,9.10⁻⁶ (Øt) et on en déduit $\overline{\sigma_{fTh}} \stackrel{\sim}{\sim} 115 \text{ mb.}$

IIIC - RESUME

Nous voyons que l'utilisation du mica pour doser les flux importants de neutrons rapides est pour l'instant très peu précise. On pourrait tout au plus effectuer un dosage précis de ces flux avec un moniteur annexe (par exemple le phosphore, le nickel ou le cuivre) et établir une relation empirique entre le nombre de traces et le flux rapide mesuré. Mais il faudrait alors refaire la même mesure dans toutes les positions d'irradiation de toutes les piles, le spectre de neutrons variant dans chaque cas.

Par contre, lorsqu'on n'utilise plus les impuretés dans le mica, mais une source de fragments de fission à seuil (232 Th, 237 Np, 238 U), les résultats obtenus semblent meilleurs, à condition de connaître la répartition spectrale du flux rapide étudié.

IV - DOSAGE DES IMPURETES FISSILES

Nous avons vu au paragraphe Ib.2b que la densité des traces induites par irradiation dans le mica par une source extérieure épaisse est de la forme: Df - K.C.Øt

où C est la concentration atomique en éléments fissiles dans le corps étudié, Øt le flux auquel a été soumis l'échantillon et K un coefficient qui dépend des caractéristiques physiques du corps. On peut donc, après irradiation à un flux connu, mesurer le nombre de traces induites dans le mica et en déduire la concentration atomique des éléments fissiles dans le corps étudié. Ceci peut trouver deux applications principales intéressantes :

IVa - ALLIAGES A TRES FAIBLE TENEUR EN ELEMENTS FISSILES

On connaît l'utilisation de la méthode autoradiographique pour l'étude de certains alliages : elle consiste à utiliser les atomes radioactifs de l'un des constituants et à poser l'alliage poli sur une plaque sensible. On met ainsi en évidence les hétérogénéités éventuelles de composition, en particulier les ségrégations, les précipités, etc...

Eventuellement, on peut obtenir des dosages approximatifs dans le cas d'alliages à faible teneur. La méthode est particulièrement intéressante à utiliser lorsque l'un des constituants est le plutonium, qui est un émetteur à période relativement courte. Dans le cas de l'uranium, il est assez difficile et surtout très long de déterminer une teneur par radiographie α à cause de la faible activité α de ce métal. D'autre part, les analyses chimiques semblent limitées à des concentrations atomiques de 10⁻⁷. Par contre, en utilisant l'enregistrement des fragments de fission dans le mica, on peut étudier des concentrations beaucoup plus faibles, la seule limite étant imposée par l'apparition des traces induites par l'uranium du mica lui-même. Si on ne veut pas avoir à recompter ces traces pour les déduire du nombre total de traces mesuré, on peut déterminer des concentrations telles que :

Df (corps étudié) ≥ 100 Df (mica) pour une erreur admise de 1 %.

D'où Cu (corps)
$$\geq 100$$
 Cu (mica) $\frac{R_0$ (corps)}{R_0 (mica)

Avec le mica que nous avons utilisé, où $C \stackrel{\sim}{\rightarrow} 10^{-11}$ nous aurons donc, par exemple :

- 29 -

- 30 -

- Pour l'aluminium : $C_{A1} \ge 100 \times \frac{14}{9,5} 10^{-11} \sim 1,5.10^{-9};$
- Pour le magnésium : $C_{Mg} \ge 100 \times \frac{21}{9,5} 10^{-11} \stackrel{\sim}{-} 2.10^{-9}$,

limites inférieures nettement plus basses que les limites obtenues par les méthodes classiques.

Enfin, l'utilisation de l'enregistrement des fragments de fission permet de réduire considérablement la durée des manipulations. Par rapport à une autoradiographie α , on gagne un facteur 7500 dans le cas de l'uranium naturel et un facteur 400 dans celui du plutonium, en utilisant un flux de neutrons thermiques de 10¹² n/cm²/s.

Manipulation :

Nous avons étudié deux alliages Mg-U, dont les concentrations mesurées par dosage chimique nous étaient fournies^{*}. Nous avons effectué une irradiation à $ilde{ extsf{d}t}$ = 9.10¹³ n/cm² et les résultats sont donnés dans le tableau n°5 :

Echantillon	Dosage chimique (C en poids)	Posage chimique (C en atomes)	Dosage par irradia- tion (C en atomes)
A	(118 ± 20).10 ⁻⁶	$(13,4 \pm 2,3).10^{-8}$	$(8,2 \pm 1,6).10^{-6}$
В	≤ 10 ⁻⁶	$\leq 10^{-7}$	$(1,5 \pm 0,3).10^{-7}$

TABLEAU 5

Nous avons admis pour notre dosage une erreur de 20 %, les erreurs provenant de $ilde{ extsf{b}}$, Df (5%) et R₀ (10%).

Nous avons effectué ces 2 irradiations au même flux pour plus de commodité et nous avons compté respectivement 1400 et 300 traces sur les échantillons. Nous aurions donc pu améliorer notre précision pour le 2ème échantillon en l'irradiant 10 fois plus. Notre précision est du même ordre de grandeur que le dosage chimique pour le premier échantillon. La comparaison avec le second est impossible, la concentration étant de l'ordre de grandeur de l'incertitude en dosage chimique. Nous avons trouvé dans le premier échantillon une concentration nettement plus faible que celle prédite, mais dans le deuxième, cette concentration est nettement plus forte. Ceci s'explique fort bien par le fait que les échantillons dosés chimiquement et par irradiation, tout en provenant d'un même alliage, ne sont pas forcément identiques, l'alliage pouvant ne pas

être homogène.

* Echantillons et dosages chimiques nous ont été fournis par M. BEYELER (Département de Métallurgie, SRMP, Saclay) que nous remercions ici.

IVb - ETUDE DES COUPLES DE DIFFUSION

Un cas particulier extrêmement important du paragraphe précédent tient dans l'étude de la diffusion à l'état solide. Ici encore, si l'un des éléments diffusants est fissile, on peut mesurer par la méthode des traces des concentrations en uranium sensiblement plus faibles que celles mesurées chimiquement, par microsonde ou par autoradiographie. La méthode est ici intéressante pour étudier la diffusion à très faible concentration, pratiquement à dilution infinie. Nous avon , à ce titre, examiné le cas de la diffusion de l'uranium et du plutonium dans le magnésium.

L'expérience la plus générale consiste à accoler fortement une pastille du métal fissile à une pastille du métal étudié (Al ou Mg), puis à chauffer l'ensemble à la température convenable pendant un temps donné; on analyse alors le métal pour y suivre la progression du combustible, soit par méthode chimique, soit par comptage α , soit à la sonde électronique. Ces méthodes ont les mêmes inconvénients que ceux exposés au chapitre précédent : leur sensibilité est relativement faible (10^{-6} en poids) et la durée de la manipulation assez longue. On peut pallier à ces inconvénients en utilisant l'enregistrement des fragments de fission qui abaisse la limite inférieure à une concentration d'environ 10^{-8} en poids (soit 10^{-9} en atomes), et réduit considérablement la durée de l'expérience (cf. parag. IVa).

Si, après traitement thermique, on mesure la concentration de l'un des éléments le long du couple de diffusion, on sait que la variation de cette concentration perpendiculairement à l'interface est solution de l'équation de Fick : $\frac{\partial C}{\partial x} = D \frac{\partial^2 C}{\partial t^2}$ où C est la concentration à la distance x de l'interface, t la durée du traitement thermique. Le coefficient D, qui caractérise la vitesse à laquelle l'un des éléments diffuse dans l'autre est appelé coefficient de diffusion. Dans le cas où les deux éléments du couple sont infiniment longs (c'est-à-dire lorsque les concentrations sont constantes aux extrémités du couple), cette solution est donnée par C = C₀ (1 - erf u), où C₀ est la concentration à l'interface, erf u = $\frac{2}{\sqrt{\pi}} \int_{0}^{u} \exp - v^{2} dv$ (fonction d'erreur de Gauss), et u = $\frac{x}{2\sqrt{Dt}}$.

Pour vérifier la validité de notre méthode, nous avons notamment étudié la diffusion du plutonium dans le magnésium. L'un des éléments du couple était du magnésium, l'autre était constitué d'un alliage magnésium-plutonium*. Après un traitement de 500 heures à 450°C, les éléments ont été séparés, et le magné-

- 31 -

^{*} Cet échantillon et son dosage nous ont été fournis par M. MOUCHNINO, (SECPER, CENFAR), que nous remercions ici.

sium irradié en présence d'une feuille de mica placée perpendiculairement à

- 32 -

l'interface, le flux de neutrons étant de l'ordre de 10¹⁴ n/cm².

La figure 12 donne l'aspect du mica irradié et attaqué, aspect semblable à celui d'une autoradiographie α . Nous en avons déduit la concentration en plutonium en fonction de la distance à l'interface (fig. 13), puis le coefficient de diffusion du plutonium dans le magnésium. Ce coefficient est de <u>D = 1,5.10⁻¹⁰ cm² s⁻¹</u>, en bon accord avec la valeur trouvée par la méthode aut toradiographique : D = 1,9.10⁻¹⁰ cm² s⁻¹.

A l'avenir, pour éliminer deux sources d'erreur : la valeur du flux et la valeur du parcours moyen des fragments de fission, nous utiliserons un alliage étalon des deux constituants du couple étudié. Sa composition étant parfaitement connue, il sera irradié en même temps que le couple, et le rapport entre les densités de traces nous donnera le rapport entre les concentrations, donc la concentration du corps étudié :

 $C_{\acute{e}ch.} = C_{\acute{e}t.} - \frac{D_{f\acute{e}ch.}}{D_{f\acute{e}t.}}$

V - ETUDE DES POUSSIERES DE L'ATMOSPHERE

Nous avons vu que lorsqu'on étudie les traces de fission sur une face extérieure d'un mica irradié, il faut travailler dans un état de propreté assez poussé, pour éviter le dépôt de poussières atmosphériques. En effet, ces poussières, de même que les traces laissées par des doigts par exemple, contiennent un nombre d'atomes fissiles non négligeable, notamment des atomes d'uranium. Après irradiation, ces atomes ayant subi la fission laissent des étoiles caractéristiques (fig. 14) qui sont très génantes lors du comptage, surtout lorsqu'elles deviennent assez nombreuses.

Nous avons pensé étudier l'abondance de ces poussières en exposant des lames de mica fraîchement clivées dans notre laboratoire pendant des temps croissants. Pour éviter les poussières qui pourraient être introduites par l'emballage, nous avons exposé les 2 faces clivées, puis rassemblé les 2 échantillons, ces 2 faces l'une contre l'autre, avant irradiation, ce qui double la densité d'étoiles.

Nous donnons fig. 15 la densité des étoiles en fonction du temps d'exposition. La droite ne passe pas par l'origine, peut-être à cause de la charge électrostatique du mica fraîchement clivé qui attire rapidement un certain nombre de poussières.

33 -

VI - ESSAI D'AUTOMATISATION

Le principal inconvénient de l'utilisation du mica et des matières plastiques pour l'enregistrement des traces de fission réside dans le comptage des traces au microscope optique. Ce travail est assez long et surtout fastidieux. Pour éliminer ce dénombrement, nous avons pensé utiliser le fait que les traces enregistrées sont, après attaque, des canaux creux, vides de matière.

VIa - METHODE EXPERIMENTALE

Dans le mica le diamètre des traces augmente linéairement avec le temps d'attaque, leur section variant donc comme le carré du temps [4]. Si, pour une irradiation donnée, on mesure, en fonction du temps t, la résistance R d'une cellule électrolytique remplie de part et d'autre de l'échantillon par la solution d'attaque (fig. 16), on doit obtenir une loi de variation du type R - α t⁻² où α est une constante qui, à température constante, ne dépend que du nombre de canaux. En coordonnées logarithmiques, on obtiendra donc une droite de pente (-2). D'autre part, au bout d'un certain temps, le diamètre des traces ayant une valeur bien déterminée, la résistance doit être proportionnelle au nombre de canaux, donc au flux. Il devrait donc être possible d'enregistrer la résistance de la cellule en fonction du temps et d'en déduire, à partir d'un réseau de courbes tracé a priori, le flux auquel a été soumis l'échantillon.

Des essais effectués avec du mica, en utilisant de l'acide fluorhydrique à 40 % comme agent d'attaque et électrolyte, ont montré qu'effectivement la pente était d'environ -2 (en général -2,2). Malheureusement les résultats ne sont pas reproductibles en valeur absolue, car l'épaisseur du mica a une grande importance à la fois sur le nombre de traces traversant entièrement le mica et sur la longueur des canaux. Mais il est très difficile d'obtenir des lames de mica d'épaisseur déterminée et surtout uniforme.

Nous avons essayé la même méthode avec des membranes de matière plastique (Makrofol KG de 2μ d'épaisseur), en utilisant de la soude concentrée à 300 g/l comme agent d'attaque et électrolyte. Contrairement à ce qui se produit pour le mica, la vitesse d'attaque perpendiculairement à la surface de l'échantillon n'est pas nulle. L'épaisseur de la membrane varie donc constamment et le nombre de canaux ainsi que leur longueur varient en fonction du temps. On ne peut alors s'attendre à une pente de (-2). D'autre part, des mesures complémentaires ont montré que cette vitesse d'attaque dépendait du nombre de traces, ce qui complique encore le problème.

Les mesures effectuées sur des membranes irradiées ont montré que la pente de la courbe log R = f (log t) varie avec le temps d'irradiation (fig. 17). Mais, comme pour le mica, les resultats sont assez dispersés et seule une représentation en coordonnées logarithmiques de l'expression empirique

 $(t_2 - t_1) \log \frac{t_2}{t_1} = f(\tau)$ (fig. 18) donne une valeur approximative du temps d'irradiation. Dans cette expression, t_1 et t_2 représentent les temps de passage à 2 valeurs R₁ et R₂ de la résistance de la cellule arbitrairement fixées à 10⁴ et 5.10³ Ω, et τ le temps d'exposition à l'irradiation; nous avons ainsi tenu compte de la variation de la pente d'un échantillon à l'autre, proportionnelle à log (t_2/t_1) .

Etant donnée la dispersion des résultats, on ne peut estimer par cette méthode un flux de neutrons à mieux que 50 % près.

Cette précision doit pouvoir être nettement améliorée en essayant d'éliminer les différentes causes d'erreurs, qui sont sans doute actuellement :

- des défauts d'homogénéité des membranes plastiques,
- la formation éventuelle d'un film de produits de réaction le long de la membrane,
- la présence d'un champ électrique dans la membrane.

Les deux premières causes d'erreurs devraient pouvoir être éliminées en sélectionnant plus rigoureusement les membranes et en agitant la solution pendant l'attaque.

Le champ électrique n'est pas intense dans les parties de membranes non irradiées (500 volts/cm); par contre, il doit pouvoir provoquer des claquages au fond des traces qui ne traversent pas entièrement la membrane, ce qui risque de modifier, au cours du temps, le nombre de canaux conducteurs.

La même méthode a été utilisée par Bean et al [11] dans le but d'étudier la cinétique d'attaque des traces de fission dans le mica. Leur expérience a abouti, grâce à un appareillage électronique perfectionné (utilisation d'un détecteur de phase), et a confirmé les résultats déjà acquis par Walker [4] par observation directe au microscope électronique. La complication du dispositif de mesure provient de ce que. au début de l'attaque, la cellule électrolytique se comporte comme une capacitance pure et cela jusqu'à ce que la valeur de la résistance de la membrane devienne comparable à cette capacitance. Les mesures effectuées par Bean ont porté sur la première partie de l'attaque, les nôtres sur la seconde et il est probable que les variations réelles de la résistance se rapprochent plus de la théorie dans le premier cas que dans le second.

- 35 -

CONCLUSION

Nous avons vu que l'enregistrement des fragments de fission dans les isolants peut avoir un grand nombre d'applications : étude des dommages créés dans un réseau cristallin, dosimétrie des neutrons thermiques et rapides, dosage de faibles concentrations d'éléments fissiles, étude des poussières atmosphériques.... Ce moyen d'étude est donc un peu comparable à l'utilisation des émulsions nucléaires, et on peut essayer d'établir un parallèle entre ces deux détecteurs.

Un des principaux avantages du mica est son insensibilité aux particules légères, quelle que soit leur énergie (protons, particules α , neutrons, particules de masse inférieure à 35) et aux rayonnements γ de moins de 5 MeV.

Le mica est également plus simple à préparer et à manipuler : prix de revient minime, préparation réduite au minimum (un recuit ou une attaque éventuels suffisent), exploitation dans des conditions normales (inutilité de travailler dans l'obscurité).

Il ne contient pas ou peu d'éléments lourds, comme le brome et l'argent qui se trouvent dans les émulsions nucléaires. Ce fait est surtout intéressant lorsqu'on étudie les noyaux de recul ou la fission provoquée par le bombardement d'une cible par des particules très accélérées (par exemple des protons [19]). Si la concentration en éléments lourds dans le détecteur est élevée, on enregistre aussi bien les noyaux de recul ou les fragments de fission de ces constituants que ceux de la cible, et il est à peu près impossible de les différencier. Les seuls éléments lourds dans le mica sont à l'état de traces, et on peut même en utiliser quelques-unes, comme l'uranium, pour doser des flux intenses de neutrons.

Les traces sont parfaitement stables dans le temps (plusieurs centaines de millions d'années à température ambiante), et à température assez élevée (on peut encor faire un comptage correct après un recuit de 120 h. à 550°C).

D'autre part, par une attaque chimique correctement menée, on peut obtenir des traces du diamètre désiré, ce qui peut être utile aussi bien lors de leur dénombrement que lors de leur utilisation comme "tamis" ultra-fins. - 38 -

Enfin, nous avons vu que l'utilisation de l'enregistrement des fragments de fission dans les isolants pour doser les faibles teneurs en éléments fissiles permettait d'atteindre une sensibilité 10 à 100 fois supérieure à celle des méthodes conventionnelles, tout en réduisant considérablement les durées des expériences.

Le principal inconvénient du mica comme détecteur de traces, est l'obligation de compter les traces une à une au microscope optique. Pour les fortes densités (> 5.10^5 t/cm²) on peut faire un comptage rapide sur une photographie, mais cela est impossible pour les densités plus faibles. Un comptage par transmission de la lumière semble assez difficile, car il existe beaucoup de taches et de traces parasites. L'inconvénient du comptage trace par trace reste le même avec les émulsions nucléaires lorsque l'on veut une bonne précision.

Les autres inconvénients du mica sont plus spécifiques à chaque usage particulier. Lorsqu'on utilise les traces induites sur des plans de clivage internes, l'état de propreté extérieure de l'échantillon n'a que peu d'importance (si ce n'est la contamination), mais il est nécessaire de posséder un grand nombre d'échantillons ayant la même concentration d'impuretés fissiles. Par contre, lorsqu'on utilise les traces induites par une source extérieure de fragments de fission, la densité interne en éléments fissiles est peu importante, car les flux utilisés sont en général assez faibles; mais il faut alors conserver un état de surface parfaitement propre pour éviter la formation d'étoiles lors de l'irradiation. On pallie facilement cet inconvénient en se servant d'échantillons fraîchement clivés et d'instruments propres.

Le problème des traces de fond se résoud, soit en attaquant, soit en recuisant le mica avant de l'irradier.

Enfin, la radioactivité du mica irradié est assez faible : pour un échantillon irradié dans un flux de 10^{19} n/cm², elle est comparable à celle d'un échantillon de C₀ de 0,05 mg ayant subi le même flux, soit 0,2 mrem/h.

REMERCIEMENTS

J'exprime ma profonde reconnaissance à Monsieur le Professeur MARTELLY qui a bien voulu s'intéresser à ce travail et m'a procuré la possibilité de publier ce mémoire.

Que Monsieur SEBILLEAU soit assuré de ma sincère gratitude pour les facilités dont j'ai bénéficié à l'intérieur du Service.

Je tiens à remercier particulièrement Monsieur WALKER qui, lors de son séjour en France, m'a largement initié à cette nouvelle technique, et Monsieur QUERE qui a eu l'idée de ce travail et dont les précieux conseils m'ont permis de le mener à bien.

BIBLIOGRAPHIE

•

[1]	E.C.H. SILK, R.S. BARNES : Phil. Mag. 4, 970 (1959)
[2]	G. BONFIGLIONI, A. FERRO, A. MOJONI : J. appl. Phys. 32, 2499 (1961)
[3]	P.B. PRICE, R.M. WALKER : J. appl. Phys. 33, 3400 (1962)
[4]	P.B. PRICE, R.M. WALKER : J. appl. Phys. 33, 3407 (1962)
[5]	R.M. WALKER, P.B. PRICE, R.L. FLEISHER : Appl. Phys. Letters, 3, 28 (1963)
[6]	M. MAURETTE, P. PELLAS, R.M. WALKER : Bull. Soc. Franç. Minér. crist., 87, 6 (1964)
[7]	R.L. FLEISHER, P.B. PRICE : J. Geophys. Res., 69, 331 (1964)
[8]	M.S. LIVINGSTONE, H.A. BETHE : Revs. Mod. Phys., 9, 263 (1937)
[9]	J.A. BRINKMAN : Am. Journ. Phys., 24, 246 (1956)
[10]	M. ROMIEU, J. BLOCH : C.R. Acad. Sci., 260, 4194 (1965)
[11]	C.P. BEAN, MV. DOYLE, G. ENTINE : Notes on the etching of submicron pores in irradiated mica (rapport interne G.E.R.L., Schenectady, N.Y., non publié)
[12]	R.M. WALKER : Characteristics and applications of solid track detectors, Proceedings of the Strasbourg Conference on new methods of track detec- tion - Centre d'Etudes Nucléaires, Strasbourg (1963)
[13]	R.L. FLEISHER, P.B. PRICE, R.M. WALKER, E.L. HUBBARD : Phys. Rev. 133 A. 1443 (1964)

[14] M. DEBEAUVAIS, M. MAURETTE, J. MORY, R.M. WALKER : Inter. J. Appl. Rad. Isotopes 15, 289 (1964)

- 41 -

- 42 -

[15] D'après :
(1) : E. SEGRE, C. WIEGANG : Phys. Rev. 70, 808 (1946)
(2) : SUZOR : Ann. Phys. 4, 269 (1949)
(3) : N.K. ARAS : Rap. M.I.T. N^{*} 905, page 64 (1964)

[16] R. BEAUGE : Sections efficaces pour les détecteurs de neutrons par activation recommandées par le groupe de dosimétrie d'Euratom (1963)

[17] R.M. WALKER : Communication personnelle

- [18] J. COMERA, S. MAY : B.I.S.T. 81, 107 (1964)
- [19] R. BRANDT, Ch. GFELLER, J. ZAKRZEWSKI : Rapport C.E.R.N. N[•] 64, 49 (1964)

Manușcrit reçu le 21.6.1965



Fig. 1 : Traces dues aux fragments de fission dans le mica muscovite : Le mica est irradié par des neutrons thermiques en présence d'un alliage magnésium-plutonium à faible concentration plutonium (détail de l'échantillon représenté fig. 12). Après irradiation, l'échantillon de mica est attaqué pendant 20 minutes dans l'acide fluorhydrique à 50 % à température ambiante.













théorique;
 dans l'app

.

2) dans l'approximation des "sphères dures".

.

:



Fig. 4 : Probabilité de formation des traces dans le mica en fonction de l'énergie et de la masse des particules incidentes. Les courbes en trait plein représentent le taux de perte d'énergie en fonction de l'énergie de la particule. Pour des taux de perte d'énergie situés au-dessous du trait interrompu inférieur, aucune trace n'est observée. Entre les deux traits interrompus, on observe à la fois des traces et des points Pour les forts taux de perte d'énergie, au-dessus du trait interrompu supérieur, les particules forment des traces longues avec une efficacité de 100 % (d'après [13]).

·.



Fig. 5 : Distribution des longueurs des traces de fragments de fission dans le mica, normalisée à 1 trace. Les fragments sont issus d'une source mince extérieure d'uranium naturel (d'après [14]).



Fig. 6 : Densité des traces en fonction de la température de recuit, pour 3 températures de chauffage, dans une phtologie de Mahatsinjo (d'après [6]).

- Fig. 7 : Aspect des traces suivant le recuit auquel est soumis, avant attaque l'échantillon de mica irradié :
 - a échantillon non recuit, attaqué 60 minutes dans l'acide fluorhydrique à 50 % à 40°C;



b - échantillon recuit 4 h. à 550°C, même attaque;

c - échantillon recuit 120 h. à 550°C, même attaque pendant 80 minutes. Compte-tenu des temps d'attaque, la section des traces est la même dans les 3 cas; par contre, la profondeur des traces diminue considérablement lorsque l'intensité du recuit augmente.





Fig. 8 : Taches provoquées par attaque dans du mylar métallisé 6 µ irradié aux fragments de fission issus d'une source de 252_{Cf} : L'agent d'attaque (soude concentrée à 300 g/l., température 60°C) est déposé du côté non métallisé du plastique, pénètre dans les traces qu'il révèle et dissout l'aluminium se trouvant autour de la sortie du canal.

a - ensemble de traces à faible grossissement;



b - détail d'une tache à fort grossissement;

Le trou central fait environ 3 μ de diamètre, la zone sans aluminium environ 120 μ .

c - un cache dans lequel on a découpé le mc⁺ "FIN" a été interposé entre la source de fragments de fission et le mylar : "FIN" est reproduit après attaque dans le plastique et est facilement visible à l'oeil nu.



Fig. 9 : Densité des traces induites dans le mica sur un plan de clivage interne en fonction du flux de neutrons thermiques.





Fig. 10 : 1°) Spectre en énergie d'une source de neutrons Pu-Be (d'après N.B.S. Handbook 72, Page 64).

2') Section efficace de fission du thorium 232 en fonction de l'énergie (d'après BNL 325, éd. 1958 et supp. N° 1 de 1960).

,



Fig. 11 : Densité des traces induites dans le mica par une source épaisse de thorium 232 en fonction de la dose de neutrons rapides.



Fig. 12 : Autoradiographie par irradiation aux neutrons thermiques d'un couple de diffusion Mg - Pu :

Après suppression de l'élément plutonium du couple, l'échantillon de magnésium est irradié par des neutrons thermiques (Øt = 1, 3.10¹⁴ n/cm² en présence d'une lame de mica. L'aspect est semblable à celui d'une autoradiographie∝:







Fig. 14 : "Etoile" :

Etoile provoquée lors de l'irradiation d'un échantillon de mica sur lequel s'étaient déposées des poussières atmosphériques contenant des éléments fissiles (de l'uranium en particulier).



• ••



Fig. 15 : Densité des "étoiles" en fonction du temps d'exposition aux poussières atmosphériques.



Fig. 16 : Schéma de la cellule électrolytique servant à la mesure de la résistivité des membranes irradiées.







Fig. 18 : Représentation en coordonnées logarithmiques de la variation de l'expression Y = $(t_2 - t_1) \log \frac{t_2}{t_1}$ en fonction du temps d'irradiation T. $(t_2 \text{ et } t_1 \text{ sont explicités dans le texte, page 35}).$

