

PRÉSIDENTE DU CONSEIL
COMMISSARIAT A
L'ÉNERGIE ATOMIQUE

**Probabilités comparées de fission avec
émission de particules de long parcours
pour divers matériaux sous l'action
des neutrons lents et rapides**

par

F. NETTER, M^{mes} H. FARAGGI et A. GARIN-BONNET, J. JULIEN, C. CORGE
Commissariat à l'Énergie Atomique
et
J. TURKIEWICZ
Institut de Recherches Nucléaire de Varsovie (Pologne)

Rapport CEA n° **965**

1958

CENTRE D'ÉTUDES
NUCLÉAIRES DE SACLAY
SERVICE DE DOCUMENTATION
Boite postale n° 2 - Gif-sur-Yvette (S.-et-O.)

Probabilités comparées de fission avec émission de particules de long parcours pour divers matériaux sous l'action des neutrons lents et rapides.

Sommaire. — Les auteurs décrivent des mesures relatives à la section efficace de fission des isotopes de l'uranium et du plutonium (notamment ^{235}U , ^{238}U , ^{239}Pu) avec émission de particules de long parcours, sous l'action de neutrons de diverses énergies : neutrons-thermiques, neutrons de pile, neutrons produits avec l'accélérateur Van de Graaff par la réaction des protons sur le tritium.

Les mesures sont effectuées :

1) à l'aide de plaques photographiques, en soumettant à l'action des neutrons une couche de matière fissile, accolée contre une émulsion nucléaire Ilford de 100 microns ; une feuille d'étain appliquée entre la plaque et la couche arrête les α et les fragments de fission. On distingue dans l'émulsion par un développement approprié les trajectoires de particules de long parcours des trajectoires de protons de recul provenant soit des neutrons de fission, soit des neutrons primaires rapides.

La fréquence comparée des trajectoires des particules de long parcours et des reculs dus aux neutrons de fission fournit une mesure de la section efficace de fission avec émission de particules de long parcours relativement au produit de la section efficace de fission par le nombre moyen de neutrons émis par fission.

Des précautions sont prises pour éliminer le rôle des neutrons thermiques dans les mesures par neutrons rapides.

Comparison of fission probabilities with emission of long range particles under the action of slow and fast neutrons on various materials.

Summary. — The authors describe relative cross-section measurements of fission of the isotopes of uranium and plutonium (more particularly ^{235}U , ^{238}U , ^{239}Pu), with emission of long range particles, under the action of neutrons of various energies : thermal neutrons, pile neutrons, neutrons produced with the Van de Graaff accelerator by reaction of protons on tritium.

The measurements are carried out :

1) with the aid of photographic plates, by submitting to the action of the neutrons a layer of fissile material coupled with an Ilford nuclear emulsion of 200 microns ; a tin sheet laying between the plate and the layer stops the α particles and the fission fragments. By an appropriate development the tracks of the long range particles can be distinguished in the emulsion from the tracks of the recoil protons resulting of fission neutrons, or of the fast primary neutrons.

For neutrons of energy under 1 MeV, the compared frequency of the tracks of long range particles and of the recoils caused by the fission neutrons gives a measurement of the fission cross-section with emission of long range particles relative to the product of the fission cross-section by the mean number of neutrons emitted by fission.

For neutrons of higher energy, one measures only the frequency of the tracks of long range particles, comparatively with the flux of primary neutrons.

Some precautions are taken to eliminate the action of thermal neutrons in the measurements with fast neutrons.

2) à l'aide d'un système de **chambre d'ionisation et compteur proportionnel**, on mesure le taux de coïncidence entre les impulsions produites par la particule de long parcours et celles produites par un des fragments de fission, relativement au taux de comptage des fragments de fission.

1958

7 pages

2) with the aid of a system of ionization chamber and proportional counter, the rate of coincidence between the impulsions caused by the long range particles and the impulsions provided by one of the fission fragments is measured comparatively with the counting rate of fission fragments.

1958

7 pages

PROBABILITES COMPAREES DE FISSION AVEC EMISSION DE
PARTICULES DE LONG PARCOURS POUR DIVERS MATERIAUX
SOUS L'ACTION DES NEUTRONS LENTS ET RAPIDES

par

M. F. NETTER, Mmes H. FARAGGI et A. GARIN-BONNET

M. J. JULIEN, C. CORGE et J. TURKIEWICZ

Commissariat à l'Energie Atomique

ERRATA

Page 2, au bas de la page,

Remplacer la référence (5) du texte par :

(5) AUCLAIR J.M. Etude de la variation avec l'énergie du neutron incident de la probabilité relative de fission ternaire avec émission d'une particule α de long parcours.
J. Phys. Radium, 19 : 68 (1958).

Page 5, paragraphe III - 3-1,

Remplacer le paragraphe par la nouvelle rédaction ci-jointe.

Page 7, Ajouter le paragraphe 3-3 : tableau provisoire de résultats ci-joint.

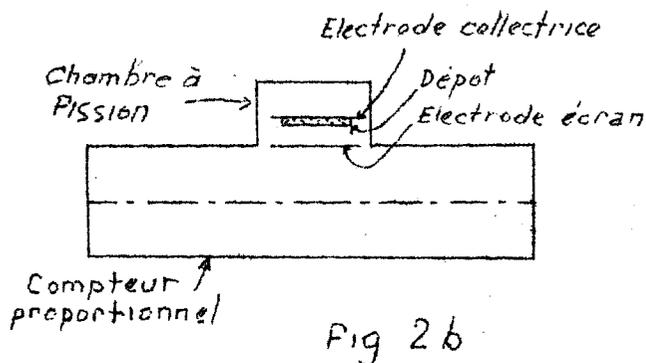
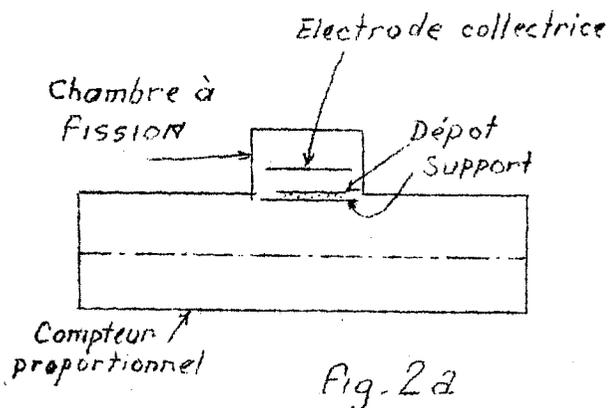
III - MESURE PAR UNE METHODE DE COINCIDENCES

3. 1 - Dispositif Expérimental

La deuxième méthode utilisée pour déterminer le rapport du nombre de fissions ternaires à celui des fissions binaires, met en oeuvre un dispositif à coïncidences qui permet de détecter simultanément la particule de long parcours et un des fragments de fission corrélatifs.

Les dispositifs expérimentaux représentés schématiquement sur les figures ci-contre comporte une chambre à fission ouverte sur un compteur proportionnel. La pression de remplissage de l'ensemble est de deux atmosphères d'argon additionné de 1 pour cent de CO². Cette pression, eu égard aux dimensions du compteur, assure

une perte d'énergie de la particule ternaire pratiquement totale tout en n'imposant pas une valeur inacceptable du rapprochement des électrodes de la chambre à fission nécessaire pour que le nombre des impulsions dues aux empilements alpha d'ordre élevé soit négligeable par rapport au nombre d'impulsions de fission. Un amplificateur de 10 mégacycles permet d'abaisser cet ordre au maximum. Le point de fonctionnement choisi dans les conditions décrites ci-dessus se situe, malgré la quantité de matière fissile utilisée, sur un palier pour une valeur de E/p d'un volt cm/mm de Hg. Le dépôt de matière fissile de forme circulaire est déposé sur un support d'aluminium dont l'épaisseur de 30 μ suffit dans le cas de la figure 2 a. à empêcher les particules alpha de radioactivité naturelle de pénétrer dans le volume sensible du compteur, tout en laissant passer les particules de longs parcours dont l'énergie est suffisamment grande.



Le compteur proportionnel équipé d'un fil de 3/100 de mm de diamètre fonctionne avec un coefficient de multiplication de 15 pour une tension appliquée de 1500 v. Dans ces conditions sa résolution pour un dépôt mince de ²³⁹Pu d'une intensité correspondant à 6000 coups par minute, est de 8 pour cent. D'autre part,

si on fait varier la tension appliquée dans les limites d'un intervalle de 300 volts autour du point d'opération choisi, toutes choses restant égales par ailleurs, on constate que le nombre de coïncidences reste pratiquement constant dans ce domaine.

Pour avoir une précision suffisante, il est indispensable, compte tenu du faible taux de comptage des coïncidences, de faire des mesures de longue durée et, par conséquent, d'éliminer toute cause d'erreur extérieure. Dans ce but l'alimentation en haute tension des appareils de détection est assurée par une batterie de piles et, parallèlement aux circuits électroniques classiques, on utilise des circuits électroniques à transistors. (9)

3-3 TABLEAU PROVISOIRE DE RESULTATS.

Nota. Les résultats sont normalisés à la valeur du rapport σ_t / σ_f pour les neutrons thermiques, sauf pour ^{238}U où la comparaison est faite à 2,5 MeV avec ^{235}U .

E_n KeV / σ_t / σ_f	^{233}U	^{235}U	^{238}U	^{239}Pu
thermique	1	1		1
pile	$0,97 \pm 0,08$			$0,975 \pm 0,07$
330	$1,23 \pm 0,12$	$1 \pm 0,13$		$1,05 \pm 0,10$
690	$0,93 \pm 0,10$			$0,90 \pm 0,10$
1165	$0,89 \pm 0,10$	$0,82 \pm 0,09$		
1990	$1,05 \pm 0,15$			$1,075 \pm 0,27$
2500		$1,29 \pm 0,18$	$0,22 \pm 0,05$	

(9) - Les dispositifs classiques à coïncidences furent conçus et réalisés par Monsieur MOISSET J., les dispositifs à transistors par MM. FIEHRER, NICHAU et NULLIE.

PROBABILITES COMPAREES DE FISSION AVEC EMISSION DE
PARTICULES DE LONG PARCOURS POUR DIVERS MATERIAUX
SOUS L'ACTION DES NEUTRONS LENTS ET RAPIDES

par

M. F.NETTER, Mmes H.FARAGGI et A.GARIN-BONNET
M. J.JULIEN, C.CORGE et J.TURKIEWICZ (*)

Commissariat à l'Energie Atomique

BUT DU TRAVAIL

0.1.- L'émission de particules de long parcours associées à la fission des isotopes de l'uranium et du plutonium a fait l'objet de nombreux travaux [1]. Récemment, la nature de ces particules a été précisée dans le cas de ^{235}U pour lequel il a été prouvé [2] qu'il s'agissait de particules alpha.

0.2.- Durant ces dernières années, des mesures ont été entreprises pour évaluer la variation, en fonction de l'énergie initiale, de la probabilité relative de fission avec émission de particules de long parcours. Déjà en 1950, K.W.ALLEN et J.T.DEWAN [3] avaient suggéré que les variations dans les taux de fréquence déterminés par divers auteurs s'expliqueraient par les différences dans le spectre d'énergie des neutrons provoquant la fission. Il a été signalé dans les discussions de la Première Conférence de Genève sur l'utilisation de l'énergie atomique à des fins pacifiques (août 1955) [4] que T.A.MOSTOVOI avait trouvé une probabilité de tripartition spontanée de ^{240}Pu supérieure à celle de la tripartition provoquée par l'action

(1) Bibliographie dans Progress in Nuclear Physics, O.R.FRISCH, Pergamon Press 1952, 5, 120 - W.J.WHITEHOUSE.

(2) FULMER C.B. et COHEN B.L. Magnetic analysis of the long-range particles from fission of U^{235} , Phys.Rev., U.S.A. 108 : 370 (1957)

(3) ALLEN K.W., DEWAN J.T. The emission of long-range charged particles in the slow neutron fission of heavy nuclei, Phys.Rev., U.S.A. 80 : 181 (1950)

(4) Actes de la Conférence Internationale de Genève. Compte rendu de la Séance 7A,2 : 263 (1955)

(*) Stagiaire de l'Institut de Recherches Nucléaires de Varsovie (Pologne)

des neutrons thermiques sur ^{239}Pu . Des études dans le domaine des neutrons thermiques ont été effectuées au C.E.N. de Saclay par MM. AUCLAIR, GENIN, JOLY et SIGNARBIEUX [5] pour le ^{235}U .

0.3.- Le but du présent travail est de déterminer la variation de la section efficace de la fission avec émission de particules de long parcours provoquée dans ^{233}U , ^{235}U , ^{238}U et ^{239}Pu par l'action de neutrons de diverses énergies, mesurée relativement à la section efficace de fission globale, en fonction de l'énergie des neutrons, de façon à raccorder les résultats actuellement connus dans la région des neutrons thermiques et dans celle des neutrons de quelques MeV.

I - ORIGINE DES NEUTRONS

1.1.- Les neutrons thermiques sont ceux d'une raie située à $1,5 \cdot 10^{-2}$ e produite par le spectromètre à cristal installé à la pile EL_2 utilisé grâce à la complaisance de MM. JOLY et GENIN.

1.2.- Les neutrons de pile sont ceux du faisceau sortant du réflecteur en graphite de la pile à eau lourde Zoé.

1.3.- Les neutrons rapides sont produits à l'aide de l'accélérateur Van de Graaff de Saclay par la réaction $\text{T}(p,n)$. Les énergies particulièrement utilisées sont 340, 700 et 2 000 keV de neutrons.

II - MESURES A L'AIDE D'EMULSIONS NUCLEAIRES

2.1.- Principe de la méthode

On cherche à enregistrer dans une émulsion nucléaire les traces des particules alpha de long parcours émises lors de la fission d'un matériau déposé au voisinage de l'émulsion, sans que pénètrent dans l'émulsion les trajectoires des fragments de fission ou des particules alpha de radioactivité naturelle. On interpose à cet effet entre la matière fissile et l'émulsion un écran d'épaisseur convenable.

On trouve dans l'émulsion non seulement les traces des particules alpha de long parcours, mais aussi celles des protons de recul provenant :

- des neutrons rapides primaires
- des neutrons rapides produits dans la fission

et le cas échéant, les traces des protons produits par la réaction $^{14}\text{N}(n,p)^{14}\text{C}$ des neutrons sur l'azote contenu dans la gélatine.

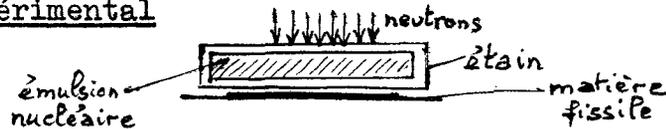
A l'aide d'un développement approprié, on distingue les traces des particules alpha de celles des protons. Parmi ces dernières, on choisit les traces de grande longueur provenant des neutrons rapides produits dans la fission, qui assurent, pourvu que l'on connaisse la variation avec l'énergie du nombre moyen de neutrons émis dans la fission [6], une mesure relative du taux de fission globale.

On obtient ainsi, par le rapport des fréquences des traces de particules alpha de long parcours et des traces sélectionnées de protons, une mesure relative du taux de fréquence des tripartitions.

(5) GENIN R., JOLY R. et SIGNARBIEUX C. Communication à la 2ème Conférence Internationale de Genève, septembre 1958

(6) TERRELL J. Distributions of fission neutrons numbers, Phys.Rev., U.S.A., 108 : 788 (1957)

2.2.- Dispositif expérimental



Les dépôts de matière fissile sont constitués d'environ 50 mg de matériau répartis sur 6 cm² d'une feuille d'acier inoxydable.

L'écran chargé d'arrêter les particules alpha de radioactivité naturelle et les fragments de fission est, à l'image de ce qui est fait pour certaines mesures à la chambre d'ionisation [7], une feuille d'étain de 30 microns d'épaisseur (épaisseur choisie compte tenu de la présence dans des échantillons anciens d'alphas très énergiques)

L'émulsion nucléaire, du type Ilford C2, de 100 microns d'épaisseur est enveloppée dans l'étain qui la protège en même temps de la lumière.

Le faisceau de neutrons pénètre dans l'émulsion par le verre et la traverse avant d'atteindre la matière fissile. Cette disposition empêche la production de fissions sous l'action de neutrons rétrodiffusés.

Dans le cas des mesures par neutrons rapides, avec l'accélérateur Van de Graaff, l'ensemble de l'émulsion et du dépôt de matière fissile accolés est placé dans un étui en cadmium dont le rôle est d'exclure les fissions induites par des neutrons thermiques parasites mais qui se trouve en même temps réduire le voile dû aux rayons X ambiants.

2.3.- Etude de traces enregistrées dans l'émulsion

Le développement des émulsions est celui utilisé de façon générale pour les émulsions irradiées à la pile par Mmes H.FARAGGI et A.GARIN-BONNET [8].

On trouve dans les émulsions :

a) des traces de particules alpha de long parcours dirigées de la surface vers le fond.

b) des traces de protons de recul provenant de la traversée des neutrons rapides primaires produits avec l'accélérateur Van de Graaff. Ces protons ont une énergie maximum égale à l'énergie E_n des neutrons rapides et les traces les plus longues sont dirigées dans la plaque du fond vers la surface. D'une façon générale, il n'y a pas de traces de protons de cette espèce dirigées de la surface vers le fond.

c) des traces de proton de recul provenant de la traversée dans l'émulsion de neutrons rapides secondaires issus des fissions dans le dépôt.

La probabilité de trouver de telles traces est faible pour toutes les trajectoires de neutrons de fission sauf celles dont la direction est presque contenue dans le plan de l'émulsion ; les plus longues des traces seront d'ailleurs dirigées vers l'avant de ces trajectoires.

(7) MOSTOVOI V.I. Communication privée

(8) FARAGGI H. BONNET A. et COHEN J. Irradiation et développement des émulsions nucléaires exposées à des flux intenses de neutrons thermiques accompagnés de rayons gamma, J.Phys.Radium, 13 : 105 A (1952)

BONNET A. Le rôle du pyrogallol dans le développement des émulsions nucléaires, J.Phys.Radium, 15 : 587 (1954)

Au total les traces les plus longues de de type seront presque toutes quasi parallèles à la surface de l'émulsion. Notons qu'il est possible d'avoir là des traces dirigées aussi bien vers le fond que vers la surface. Mais si on sélectionne les traces les plus longues et faisant un angle petit avec le plan de l'émulsion, on peut assez facilement les distinguer, même en présence d'un fond intense de traces de protons provenant des neutrons primaires. La sélection devra de préférence retenir les traces de longueur supérieure à celles des protons d'énergie E_n , ce qui laisse encore un nombre suffisant d'évènements tant que E_n est inférieure à 3 ou 4 MeV. Elle est facilitée par le fait que les trajectoires situées dans le plan de l'émulsion sont à 90° de la direction d'incidence des neutrons primaires et sont donc relativement courtes si elles proviennent des neutrons primaires.

d) des traces des protons produits par la réaction (n,p) sur l'azote, dont l'importance n'est notable que pour les neutrons thermiques, et qui sont au demeurant assez courtes pour ne pas être plus gênantes que les traces des protons provenant des neutrons primaires dans les mesures à 700 keV par exemple.

2.4.- Mesures de contrôle

Pour s'assurer de l'origine des traces, on effectue les contrôles suivants :

- le dispositif est laissé accolé une journée, sans irradiation par neutrons,

- le dispositif dans lequel on a remplacé le dépôt épais de matière fissile par un support sans dépôt (ou avec très faible dépôt) est irradié par les neutrons.

On doit noter que si l'on prolongeait trop longtemps le premier contrôle, on obtiendrait en fait une estimation de la proportion des émissions de particules de long parcours dans la fission spontanée, rapportée au taux global d'émission de neutrons lors de la fission spontanée.

2.5.- Perturbation par les neutrons thermiques

Dans les mesures effectuées à l'accélérateur Van de Graaff, le cadmium ne protège que des neutrons thermiques venus de l'extérieur. Le risque subsiste d'obtenir des fissions induites par les neutrons rendus thermiques par chocs dans l'émulsion, et pour lesquels la section efficace de fission globale est plusieurs centaines de fois supérieure à celle relative aux neutrons primaires.

Mais la situation relative de l'émulsion et de la matière fissile par rapport à la direction des neutrons primaires incidents interdit que ces neutrons thermiques puissent provenir d'un seul choc sur l'hydrogène. L'effet qui peut subsister serait celui de neutrons ayant subi plusieurs chocs de diffusion ; on voit, compte tenu de l'épaisseur de l'émulsion, qu'il est négligeable.

2.6.- Mesures relatives.

On compte suivant les critères de sélection convenables

- N_α traces de particules de long parcours
- N_p traces de protons de recul projetés par les neutrons de fission

Si σ_t est la section efficace de fission avec émission de particules de long parcours,

σ_b est la section efficace de fission sans émission de particules de long parcours,

$\sigma_f = \sigma_t + \sigma_b$ la section efficace de fission globale

ν_t le nombre moyen de neutrons émis dans la fission avec émission de particules de long parcours,

ν_b le nombre moyen de neutrons émis dans la fission sans émission de particules de long parcours,

ν le nombre moyen de neutrons émis dans la fission globale.

$$\nu \sigma_f = \nu_t \sigma_t + \nu_b \sigma_b$$

On a :

$$\frac{N_\alpha}{N_p} = K \frac{\sigma_t}{\nu \sigma_f} \approx K \frac{\sigma_t}{\nu_t \sigma_t} \qquad \frac{\sigma_t}{\sigma_f} = \frac{N_\alpha}{N_p} \frac{\nu}{K}$$

La constante K ne varie pas en première approximation avec l'énergie des neutrons. Cela revient à dire que l'on néglige, lorsque l'énergie des neutrons change :

- la variation du spectre d'énergie des neutrons émis lors de la fission

- la variation de la corrélation angulaire entre les neutrons émis lors de la fission et les particules de long parcours.

De la mesure de N_α et de N_p et de la connaissance d'une loi grossièrement linéaire de variation^p de ν avec l'énergie des neutrons provoquant la fission, on tire la valeur relative de σ_t/σ_f en fonction de E_n .

2.7.- Cas particulier de ^{238}U

On utilise un dépôt en uranium naturel, et on se sert, pour éliminer la constante K, des résultats obtenus avec des neutrons de pile, grâce à la teneur en ^{235}U de l'uranium naturel, résultats comparés à ceux obtenus avec un dépôt d'uranium enrichi à 44,7 % de ^{235}U et normalisés à la valeur de 1/310 [2] .

On peut ainsi, en supposant que la constante K soit sensiblement la même pour ^{235}U que pour ^{238}U dans le dépôt, obtenir une évaluation de σ_t/σ_f pour ^{238}U à 2 MeV.

2.8.- Résultats pour ^{233}U , ^{235}U , ^{239}Pu

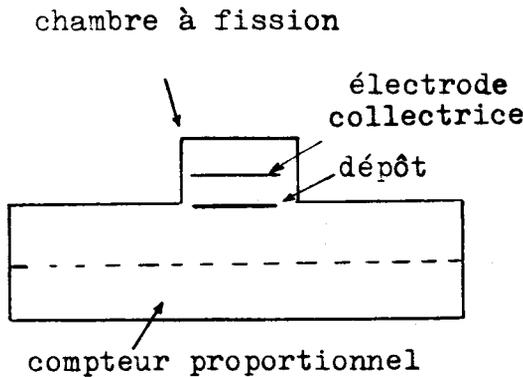
Les résultats sont en cours de dépouillement.

III - MESURE PAR UNE METHODE DE COINCIDENCES

3.1.- Dispositif expérimental

La deuxième méthode utilisée pour déterminer le rapport du nombre de fissions ternaires à celui des fissions binaires, met en oeuvre un dispositif à coïncidences qui permet de détecter simultanément la particule de long parcours et un des fragments de fission corrélatifs.

Le dispositif expérimental représenté schématiquement sur la figure ci-contre comporte une



chambre à fission ouverte sur un compteur proportionnel. La pression de remplissage de l'ensemble est de 3 atmosphères d'argon additionné de 5 % de CO₂. Cette pression, eu égard aux dimensions du compteur, d'une part assure une perte d'énergie de la particule ternaire pratiquement totale, et d'autre part, n'impose pas une valeur inacceptable du rapprochement des électrodes de la chambre à fission nécessaire pour que le nombre des impulsions dues aux empilements alpha d'ordre élevé soit négligeable par rapport au nombre d'impulsions de fission. Un amplificateur de 10 mégacycles permettra dans un proche avenir d'abaisser encore cet ordre. Quoi qu'il en soit, le point de fonctionnement choisi dans les conditions décrites ci-dessus se situe sur un palier pour un E/p de 0,8 volt cm/mm de Hg.

Le dépôt de matière fissile de forme circulaire est déposé sur un support d'aluminium dont l'épaisseur de 30 μ suffit à empêcher les particules alpha de radioactivité naturelle de pénétrer dans le volume sensible du compteur, tout en laissant passer les particules de long parcours dont l'énergie est suffisamment grande.

Le compteur proportionnel équipé d'un fil de 2/100 de mm de diamètre fonctionnait avec un coefficient de multiplication de 15 pour une tension appliquée de 1 800 volts. Dans ces conditions, sa résolution pour un dépôt mince de ²³⁹Pu d'une intensité correspondant à 6 000 coups par minute, était de 8 %.

Pour avoir une précision statistique suffisante, il est indispensable, compte tenu du faible taux de comptage des coïncidences, de faire des mesures de longue durée et, par conséquent, d'éliminer toute cause d'erreur extérieure. Dans ce but, l'alimentation en haute tension des appareils de détection est assurée par une batterie de piles et les différents circuits électroniques réalisés à l'aide de transistors [9].

3.2.- Résultats

Pour des neutrons d'énergie de 300 keV et pour le ²³⁹Pu on enregistre en moyenne une coïncidence par 3 000 fissions. Il faut tenir compte de l'angle solide sous lequel le dépôt fissile voit le volume sensible du compteur susceptible de permettre un parcours suffisant. Dans les conditions expérimentales utilisées on peut estimer avoir en moyenne une particule de long parcours toutes les 1 500 fissions.

Pour l'uranium ²³³ et pour des neutrons de même énergie, cette proportion est légèrement inférieure.

(9) Le dispositif fut conçu et réalisé par MM. FIEHRER, MICHAU et MULLIE C.E.N. Saclay.

On peut s'attendre [3] à un glissement vers les énergies plus faibles pour les impulsions dues aux fragments de fission produits au cours d'une fission ternaire par rapport à celles des fragments produits au cours d'une fission binaire. Ceci entraîne une efficacité de la chambre différente pour les premiers. Cependant, lorsque la chaîne de détection ternaire est propre, on peut avoir une limite supérieure, peut-être exagérée, de l'erreur introduite par cette différence. Elle n'excède pas 2 à 3 %. Pour la réduire au minimum, il est souhaitable de se placer dans des conditions de discrimination telles que le point de fonctionnement de la chambre se situe bien sur un plateau.
