PRÉSIDENCE DU CONSEIL

COMMISSARIAT A
L'ÉNERGIE ATOMIQUE

Mesure expérimentale des parcours des fragments de fission dans l'uranium, l'or, le molybdène, le zirconium et le silicium

par

Mmes H. FARAGGI et A. GARIN-BONNET

Rapport CEA n° **966**

1958

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

FARAGGI H., GARIN-BONNET A.

Rapport CEA n° 966

Mesure expérimentale des parcours des fragments de fission dans l'uranium, l'or, le molybdène, le zirconium et le silicium.

Sommaire. - La mesure du nombre total de fragments de fission sortant d'un alliage homogène épais d'uranium et d'un autre élément, pour lequel la concentration en uranium est donnée, permet la mesure du parcours des fragments dans cet alliage. En faisant varier la concentration, on peut déduire de ces mesures le parcours des fragments dans l'uranium et dans l'autre élément.

1958 7 pages

FARAGGI H., GARIN-BONNET A.

Report CEA n° 966

Experimental measurement of fission fragments paths in uranium gold, molybdenum, zirconium and silicon.

Summary. - The measurement of total number of fission fragments emerging from an homogeneous, thick alloy composed of uranium plus another element (the concentration of uranium being known) allows to obtain the range of the fragments in this alloy. By varying the concentration, the range of the fragments in uranium and in the other element can be deduced.

1958 7 pages

RAPPORT C.E.A. N° 966

(CONF.15/P/1189)

MESURE EXPERIMENTALE DES PARCOURS DES FRAGMENTS DE FISSION DANS L'URANIUM, L'OR, LE MOLYBDENE, LE ZIRCONIUM ET LE SILICIUM

Mmes Henriette FARAGGI et Arlette GARIN-BONNET

Commissariat à l'Energie Atomique

I - INTRODUCTION

I. 1 - Il existe un certain nombre de mesures de parcours des fragments de fission dans les gaz. Par contre les mesures dans les solides sont très peu nombreuses.

I.2 - E. SEGRE et C. WIEGAND (1) à l'aide d'une chambre d'ionisation ainsi que SUZOR (2), reprenant une méthode radiochimique proposée par JOLIOT (3), ont mesuré le parcours des fragments de fission de ^{235}U dans l'aluminium, ainsi que les pouvoirs d'arrêt du cuivre, de l'argent et de l'or par rapport à l'aluminium. R.B. LEACHMAN et H.W. SCHMITT (4), par une méthode de temps de vol, ont établi les relations vitesse-parcours, pour les fragments de vitesses supérieures à 5.10^8cm/seconde provenant de divers matériaux fissiles, dans l'aluminium, le nickel, le platine et l'or. Plus récemment, C.B. FULMER (5), utilisant un aimant spécialement construit pour l'étude des fragments de fission par B.L. COHEN (6), a établi les relations parcours-énergie, pour les fragments d'énergie supérieure à 20 MeV provenant de ^{235}U, dans le cas de l'aluminium, du nickel et de l'or.

I.3 - En fait, seul le parcours total dans l'aluminium a été mesuré directement (1,2). Pour les autres solides, on dispose seulement de pouvoirs d'arrêt relatifs à l'aluminium, ou d'extrapolations des relations énergies-parcours (4,5) rendues difficiles vers les faibles vitesses en raison de l'importance des chocs nucléaires. Il n'existe pas, à notre connaissance, de mesure directe du parcours des fragments de fission dans les solides autres que l'aluminium et, en particulier, le parcours dans l'uranium lui-même ne semble avoir fait l'objet d'aucune mesure expérimentale.

I.4 - La méthode que nous avons utilisée ici nous a permis de mesurer directement le parcours moyen des fragments de fission de ^{235}U dans l'uranium, l'or, le molybdène, le zirconium et le silicium.

II - PRINCIPE DE LA METHODE UTILISEE

II.1 - On sait que, si un échantillon solide épais contenant de l'uranium peut émettre N_0 fragments de fission par cm^3, le nombre N des fragments sortant effectivement par cm^2 de surface de l'échantillon est donné par :

$$N = \frac{N_0}{4} R \qquad (1)$$

R étant le parcours des fragments dans le solide considéré. Par suite, R sera connu si l'on sait déterminer séparément N et N_0.

II.2 - Si les fissions sont provoquées par un flux ϕ connu de neutrons thermiques dans un échantillon contenant C grammes d'uranium par gramme d'échantillon, on a sensiblement, en tenant compte de l'émission de 2 fragments par fission provoquée :

$$N_0 = 2 \frac{\mathcal{N}}{A} \sigma C d \phi \qquad (2)$$

($\mathcal{N}$ nombre d'Avogadro, A masse atomique moyenne de l'uranium naturel, σ densité de l'alliage).

La mesure de ϕ ainsi que l'utilisation d'alliages homogènes d'uranium et d'un autre élément dans lequel la concentration C est connue, permet le calcul de N_0.

II.3 - La mesure de N pose un problème un peu plus délicat. En effet, il suffit en principe de dénombrer tous les fragments de fission émergeant d'une surface connue de l'échantillon. Or, les détecteurs généralement utilisés, chambre d'ionisation ou plaques photographiques présentent toujours un seuil de sensibilité qui ne permet de dénombrer que les fragments d'énergie supérieure au seuil. L'évaluation de ce seuil de sensibilité présente un certain arbitraire et influence fortement la valeur obtenue pour le parcours, car les fragments de très faible énergie constitue une fraction importante du nombre total des fragments sortant d'une couche épaisse.

II.4 - Dans la méthode que nous avons mise au point, cette difficulté est levée de la manière suivante. Les fragments de fission sortant de la surface plane et polie de l'échantillon sont recueillis dans une émulsion nucléaire Ilford C2,50μ, maintenue en contact étroit avec l'échantillon, l'ensemble étant exposé au faisceau de neutrons thermiques fourni par un canal de la pile de Chatillon.

II.5 - Après développement, une surface connue de l'émulsion est examinée au microscope et on mesure la longueur de la projection de chaque fragment sur le plan de visée de l'objectif microscopique. Le calcul montre que le nombre N_ℓ de

fragments dont la longueur est supérieure à est donné par

$$N_{\varrho} = \frac{2\mathcal{N}}{A} \phi \sigma Cd \frac{R}{4} \left(1 - \frac{K\varrho}{R}\right)^2 \qquad (3)$$

en assimilant les deux parcours des fragments légers et lourds à leur valeur moyenne R, et en désignant par K le rapport parcours dans le solide-parcours dans l'émulsion, c'est-à-dire le pouvoir d'arrêt relatif du solide et de l'émulsion. Si K est constant, on voit que $\sqrt{N_{\varrho}}$ sera une fonction linéaire de ϱ qui pourra facilement être extrapolée à 0. De la valeur de N_0 R/4 ainsi obtenue, il sera facile de déduire soit le parcours linéaire R, soit le parcours massique Rd.

II.6 - Nous avons donc la possibilité de déterminer expérimentalement le parcours moyen des fragments de fission dans un alliage homogène contenant de l'uranium, aussi bien que dans l'uranium lui-même. Par suite, si nous disposons d'une série d'alliages d'uranium et d'un autre élément de concentrations différentes et connues, il sera possible de mesurer le parcours pour chaque concentration en uranium. Si la règle d'additivité des pouvoirs d'arrêt est valable pour les fragments de fission, le parcours massique Rd dans chaque alliage est lié aux parcours massiques R_1d_1 et R_2d_2 dans chaque constituant par la relation :

$$\frac{1}{Rd} = \frac{1}{R_1d_1} C + \frac{1}{R_2d_2} (1-C) \qquad (4)$$

Même si la règle d'additivité n'était pas strictement valable, la fonction $1/Rd = f(C)$ extrapolée à C = 0 et à C = 1 permettrait de déterminer R_1d_1 et R_2d_2. Si la relation linéaire (4) est vérifiée, l'extrapolation sera naturellement plus rigoureuse.

III - LIMITES DE LA METHODE, APPROXIMATIONS. ERREURS EXPERIMENTALES

III.1 - La précision de la méthode envisagée est limitée, d'une part, par les approximations qu'elle suppose, d'autre part, par les erreurs liées aux conditions expérimentales.

III.2 - Les approximations inhérentes à la méthode elle-même sont les suivantes :

III.2.a - les parcours des deux fragments sont assimilés à un parcours unique et rectiligne,

III.2.b - le pouvoir d'arrêt relatif solide/émulsion est supposé constant,

III.2.c - la loi d'additivité des pouvoirs d'arrêt est supposée valable.

III.3 - Si les deux premières approximations ne sont pas justifiées, la courbe $\sqrt{N_\ell} = f(\ell)$ ne sera pas droite. L'écart des points expérimentaux par rapport à cette droite permettra d'évaluer la validité des approximations faites. En toute rigueur, le résultat de la mesure sera une mesure de la portée moyenne des fragments plutôt qu'une mesure exacte du parcours total. Il convient de noter que cette remarque s'applique également aux mesures faites par ailleurs (1) (2).

III.4 - La troisième approximation sera levée par les résultats expérimentaux, et constituera, en outre, un test de la règle d'additivité.

III.5 - Un certain nombre d'erreurs expérimentales doivent être envisasagées, et sont examinées ci-après :

III.5.a - erreurs de mesure proprement dites, liées à l'observation microscopique des trajectoires; influence de l'observateur,

III.5.b - homogénéité des alliages d'uranium utilisés,

III.5.c - mesure du flux de neutrons thermiques,

III.5.d - enregistrement dans l'émulsion, outre les trajectoires dues aux fragments de fission dus à ^{235}U et aux neutrons thermiques, de trajectoires parasites dues, soit aux fissions provoquées par les neutrons rapides contaminant le faisceau de neutrons thermiques, soit aux protons de la réaction $^{14}N(n,p)\,^{14}C$ sur l'azote de l'émulsion, soit aux rayons α dus à la radioactivité naturelle de l'échantillon.

III.6 - Les erreurs liées au microscope sont purement statistiques. Celle liée à l'observateur, qui porte essentiellement sur le seuil de visibilité des trajectoires, est éliminée par la méthode graphique utilisée pour l'extrapolation à 0, et les équations personnelles de chacun minimisées par l'utilisation d'observateurs différents.

III.7 - Les alliages d'uranium nous ont été fournis par le Département de Métallurgie du C.E.A. ; ils ont été préparés par recuit sous vide à haute température, leur surface à été polie à la poudre de diamant. L'homogénéité a été contrôlée par autoradiographie de la radioactivité α naturelle. Le flux de neutrons thermiques de l'ordre de 10^{10} n/cm^2 est mesuré à l'aide d'étalons de manganèse irradiés en même temps et au même endroit que les émulsions nucléaires elle-mêmes.

III.8 - Nous avons contrôlé expérimentalement que les trajectoires parasites dues aux fissions rapides sont pratiquement négligeables [pour les intenses flux de neutrons généralement utilisés, et grâce à la discrimination obtenue par le développement (7), les trajectoires dues aux protons de l'azote sont trop nombreuses pour être individualisées et contribuent seulement au voile de fond.] Par contre, il y a lieu de tenir compte des α de radioactivité naturelle.

III.9 - L'élimination des α peut être faite par différence ou par un traitement approprié des émulsions, entraînant soit le non développement des trajectoires α, soit une discrimination efficace α - fission. La discrimination par sous

développement ou par traitement des émulsions à l'eau oxygénée, donne des résultats satisfaisants. Toutefois, nous avons constaté qu'un développement entraînant une disparition totale des trajectoires α entraîne un raccourcissement notable et assez peu reproductible des trajectoires de fission par disparition des fins de parcours, et rend les mesures trop peu précises. Si le sous-développement est limité à la conservation totale des trajectoires de fission, la discrimination α - fission est loin d'être absolue. C'est pourquoi nous avons adopté la procédure suivante ;

III.10 -- un dispositif mécanique approprié permet de ne mettre l'échantillon en contact avec l'émulsion que pendant le temps minimum nécessaire à l'irradiation, ce temps étant chaque fois mesuré. Les plaques sont développées complètement suivant la méthode mise au point au laboratoire qui assure une bonne visibilité des trajectoires en dépit du voile dû aux neutrons et aux gamma du faisceau incident (7) et toutes les trajectoires sont mesurées sans discrimination. Les mesures faites sur les α suivant la même méthode, sans exposition aux neutrons, nous permettent de soustraire la contribution des α et d'obtenir par différence celle due aux seuls fragments de fission. Il a d'ailleurs été possible de soustraire par un procédé analogue les trajectoires dues aux protons de $^{14}N(n,p,)^{14}C$ dans les quelques cas où cela s'est avéré nécessaire.

IV - RESULTATS

IV.1.1 - Les premières mesures ont porté sur un échantillon d'uranium naturel, afin de déterminer la précision que l'on peut espérer de la méthode utilisée et de mesurer le parcours des fragments de fission dans l'uranium lui-même. On a fait varier au maximum les conditions expérimentales et les conditions d'observation et de mesure, de manière à évaluer la reproductibilité des résultats.

IV.1.2 -- Les courbes de la figure 1 donnent un exemple de la méthode de mesure utilisée. En abscisse sont portées les longueurs projetées ϱ et en ordonnées les racines carrées du nombre de traces dont la longueur projetée est supérieure à ϱ . On a porté les points représentant les mesures brutes α et fission, la courbe donnant la distribution des α seuls et la courbe obtenue par différence donnant la distribution des fragments de fission. Il est visible que la correction due à la soustraction des α n'entraîne pas d'imprécision notable, et que la courbe finale peut être assimilée à une droite, conformément à l'équation (3). Ceci justifie donc les approximations utilisées, dans la limite des erreurs expérimentales.

IV.2 -- <u>Alliages U-Zr, U-Au, U-Mo, U-Si</u>

Le même procédé a été appliqué à la mesure des parcours des fragments dans plusieurs séries d'alliages U-Zr, U-Au, U-Mo, U-Si, de concentrations variées. Les résultats sont présentés sur la figure 2 où l'on a porté l'inverse des parcours massiques en fonction de la concentration en uranium. On peut constater que la

relation $\frac{1}{Rd} = f(c)$ est bien linéaire et que les parcours dans chaque constituant peuvent être établis sans ambiguïté. Etant donné les masses très voisines de Zr et Mo, les points représentatifs de ces deux éléments constituent une courbe unique.

IV.3 - Dans le tableau I sont donnés, pour chaque élément, les parcours massiques, en mg/cm^2, et les pouvoirs d'arrêt massiques S_m par rapport au silicium. Les parcours dans l'aluminium (A=27) et dans le silicium (A=28) étant pratiquement identiques, S_m représente également les pouvoirs d'arrêt massiques par rapport à l'aluminium.

IV.4 - Suivant la règle empirique de BRAGG-KLEEMAN, les pouvoirs d'arrêt atomiques sont proportionnels à $\sqrt{A}$, et, par suite, les pouvoirs d'arrêt massiques à $1/\sqrt{A}$. On peut voir sur la figure 3 que les résultats obtenus dans nos mesures confirment assez bien cette règle. Les mesures de SEGRE (1) et de SUZOR (2) y ont été également portées. L'ensemble des mesures est relativement cohérent bien que nos résultats semblent indiquer des parcours généralement plus longs que ceux des auteurs précédents. En outre, ils sont compatibles avec les extrapolations que l'on peut faire des mesures énergie-parcours (4) (5).

V - DISCUSSION

V. 1 - Bien que les résultats obtenus par des mesures globales de ce genre ne puissent prétendre à des précisions remarquables, la méthode que nous avons utilisée présente, à notre avis, les avantages suivants :

V.1.a - Les parcours mesurés dans chaque élément sont indépendants les uns des autres, et, par suite, la précision est meilleure que celle obtenue à partir des mesures de pouvoirs d'arrêt.

V.1.b - Dans les mesures précédentes (1) (2) l'élément ralentisseur était utilisé sous forme de feuilles minces dont l'homogénéité était difficile à établir. Ici, l'utilisation d'alliages homogènes dont la teneur en uranium est connue avec une bonne précision permet d'éviter cet inconvénient.

V.2 - Il semble que la règle BRAGG-KLEEMAN soit mieux vérifiée quand la précision des mesures s'améliore.

TABLEAU I

élément	Si	Zr	Mo	Au	U
Rd	3,6 ± 0,15	7,3 ± 0,3	7,3 ± 0,3	10,9 ± 0,4	12,8 ± 0,4
Sm	1	0,495 ± 0,020	0,495 ± 0,020	0,33 ± 0,01	0,28 ± 0,01

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

(1) SEGRE E. et WIEGAND C. Stopping power of various substances for fission fragments, Phys. Rev. 1946, 70, 808.

(2) SUZOR F. Parcours dans divers matériaux de fragments déterminés de fission de l'uranium, annales de Phys. 1949, 4, 269.

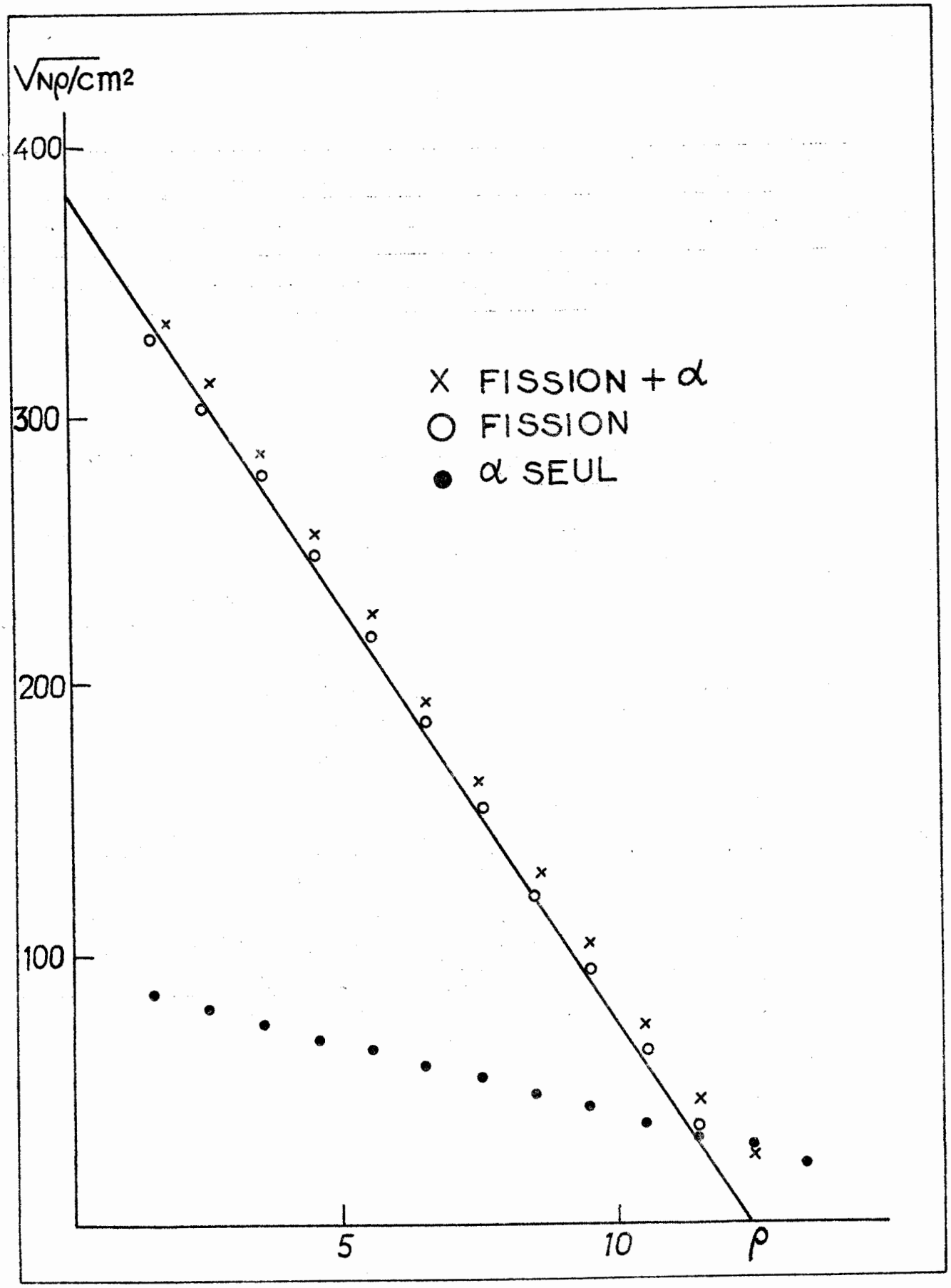
(3) JOLIOT F., Sur une méthode de mesure des parcours des radio-éléments de nature chimique déterminée, projetée lors de la bipartition de l'uranium, C.R., 1944, 218, 248.

(4) LEACHMAN R.B., SCHMITT H.W., Fine structure in the velocity distributions of slowed fission fragments, Phys. Rev., 1954, 96, 1366.

(5) FULMER C.B., Scintillation reponse of CsI (Tl) crystals to fission fragments and energy vs range in various materials for light and heavy fission fragments, Phys. Rev., 1957, 108, 113.

(6) COHEN B.L., COHEN F. et COLEY D., Energy distribution of mass-97 fission fragments, from thermal-neutron fission of uranium-235, Phys.Rev., 1956, 104, 1046.

(7) FARAGGI H., BONNET A., COHEN L., Irradiation et développement des émulsions nucléaires exposées à des flux intenses de neutrons thermiques accompagnés de rayon gamma, J. Phys. Radium, 1952, 13, 105 A-11A
BONNET A., le rôle du pyrogallol dans le développement des émulsions nucléaires, J. Phys. Radium, 1954, 15, 87-8.


√Nρ/cm²
400
300
200
100
5
10
ρ
X FISSION + α
O FISSION
● α SEUL