

FR 780 2368

CENBG 7922

I N 2 P 3
CENTRE D'ÉTUDES NUCLÉAIRES
DE BORDEAUX-GRADIGNAN
LE HAUT-VIGNEAU
33170 GRADIGNAN

10^e CONGRES INTERNATIONAL SUR LES DETECTEURS
SOLIDES DE TRACES NUCLEAIRES
LYON, 2-7 Juillet 1979

A. Sicre, F. Caitucoli, G. Barreau, T. Benfoughal,
B. Bruneau, T.P. Doan et B. Leroux

MESURE DES DISTRIBUTIONS ANGULAIRES DES FRAGMENTS DE
FISSION AU MOYEN DE DETECTEURS PLASTIQUES DE TRACES

MESURE DES DISTRIBUTIONS ANGULAIRES DES
FRAGMENTS DE FISSION AU MOYEN DE DETECTEURS
PLASTIQUES DE TRACES

A. Sicre, F. Callucoli, G. Barreau, T. Benfoughal
B. Bruneau, T. P. Doan et B. Leroux

Centre d'Etudes Nucléaires de Bordeaux-Gradignan
Le Haut Vigneau, 33170 Gradignan, France

ABSTRACT

We describe a method to obtain experimental angular distributions of fission fragments for (n, f) reactions. Fission fragments are detected in thin foils of polycarbonate plastic (Makrofol). The detectors are scanned by the spark method. Etching conditions and spark scanning conditions have been studied to obtain the best signal to noise ratio. We used this method for fission study of strong alpha-emitter actinides like ^{230}Th and ^{231}Pa .

KEYWORDS

Fission; angular distributions; thin polycarbonate foil detector; etching of polycarbonate film; spark scanning method.

INTRODUCTION

Dans la région du seuil des fonctions d'excitation des réactions (n, f) sur les actinides non fissiles, il apparaît des plateaux ou même des structures résonnantes. L'étude de ces résonances dans le cadre de la barrière de fission à 2 maxima présente un grand intérêt dans la mesure où il est possible d'en extraire des informations sur la forme de cette barrière et sur les caractéristiques spectroscopiques des états de vibration quasi-stationnaires du second puits de potentiel qui sont à l'origine de ces résonances. L'obtention de ces informations nécessite à la fois la mesure des fonctions d'excitation avec une très bonne résolution en énergie pour mettre en évidence les structures résonnantes et la mesure des distributions angulaires des fragments de fission pour les identifier. Nous avons effectué des mesures de ce type dans le cas des réactions $^{231}\text{Pa}(n, f)$, $^{234}\text{U}(n, f)$, $^{232}\text{Th}(n, f)$ et $^{230}\text{Th}(n, f)$ (Sicre, 1976; Barreau, 1977). Pour faire ces mesures, nous avons mis au point une méthode expérimentale dans laquelle nous employons les détecteurs plastiques de traces pour enregistrer les fragments de fission.

CONDITIONS EXPERIMENTALES

Les conditions expérimentales très particulières des mesures des distributions angulaires des fragments de fission conduisent à des critères très sélectifs pour

le choix du système de détection. Près du seuil de fission, la section efficace de fission est faible. De plus les différents isotopes étudiés sont tous émetteurs α , certains avec une très forte activité. Ainsi chaque dépôt utilisé émet $1.1 \times 10^7 \alpha/s$ pour ^{231}Pa , $4.5 \times 10^6 \alpha/s$ pour ^{230}Th et $1.4 \times 10^6 \alpha/s$ pour ^{234}U . Le flux de neutrons utilisé étant de l'ordre de $10^{15} \text{ n s}^{-1} \text{ cm}^{-2}$, et la section efficace étant de l'ordre de 100 mb, le rapport du taux de production des fragments de fission au taux de production des particules α est alors de l'ordre de 10^{-8} .

Compte tenu de ces conditions expérimentales, les facteurs de qualité que l'on recherche pour le détecteur sont :

- une efficacité de détection aussi grande que possible pour les fragments de fission;
- la possibilité d'avoir un angle solide de détection très grand;
- une sélectivité par rapport aux particules α ;
- une faible sensibilité aux neutrons et aux rayonnements γ .

Les détecteurs qui satisfont le mieux à l'ensemble de ces critères sont les détecteurs plastiques de traces et plus particulièrement le polycarbonate vendu sous le nom de Makrofol. En effet le seuil d'enregistrement critique de ce détecteur est : $(\frac{dE}{dx})_c = 8 \text{ MeV/mg/cm}^2$ (Flisacher, 1964). Or les particules α de radioactivité naturelle ayant une énergie de 5 MeV environ, leur taux de perte d'énergie dans le Makrofol est de $0.767 \text{ MeV/mg/cm}^2$ (Tripiet et collaborateurs, 1974). Seules les traces correspondant aux fragments de fission dont le taux de perte d'énergie est très supérieur au seuil d'enregistrement seront révélées par l'attaque chimique.

DISPOSITIF EXPERIMENTAL

Le dispositif expérimental que nous avons utilisé est schématisé sur la Fig. 1.

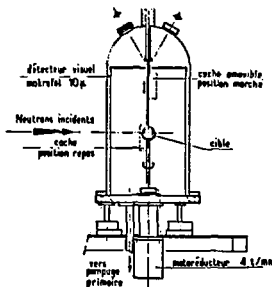


Fig. 1

Dans ce dispositif le détecteur a la forme d'un cylindre dont l'axe est perpendiculaire à la direction moyenne des neutrons incidents. Afin de permettre le dépouillement par la méthode des décharges électriques, le détecteur est une feuille de

Makrofol de 10 μm d'épaisseur. Cette feuille est fixée par effet électrostatique sur une feuille de plastique de 200 μm d'épaisseur formant un cylindre de 18 cm de diamètre et de 30 cm de hauteur. Au centre du cylindre, deux dépôts du corps à étudier sont placés dos à dos et animés d'un mouvement de rotation autour de l'axe vertical du cylindre. Cette rotation a pour but de moyenniser dans toutes les directions du plan horizontal les effets dus au ralentissement ou à l'absorption des fragments dans l'épaisseur des dépôts. Un cache métallique à commande extérieure permet l'escamotage des cibles de façon à définir avec précision les durées d'irradiation. L'ensemble se trouve dans une chambre cylindrique en acier inoxydable dont la paroi fait 1 mm d'épaisseur; une pompe maintient cette chambre sous un vide primaire. La chambre est placée sur un plateau orientable permettant le positionnement correct de l'ensemble cibles-détecteur par rapport à la direction des neutrons incidents. Avec ce dispositif, la résolution angulaire est de 10° environ et l'angle solide total de détection est de $3.43 \times \pi$ stéradian.

TRAITEMENT ET DEPOUILLEMENT DES DETECTEURS

Principe du dépeuillement par décharges électriques

Dans le cas des fragments de fission, le parcours dans le Makrofol est en moyenne de 20,9 μm pour le fragment lourd, et de 25,4 μm pour le fragment léger (Monnin, 1969). Un détecteur de 10 μm d'épaisseur sera donc traversé de part en part par les fragments de fission. Si on place un tel détecteur entre 2 électrodes entre lesquelles existe une haute tension, il se produit des claquages préférentiellement à l'endroit des traces qui constituent des défauts de diélectrique. Cette méthode de dépeuillement d'abord proposée par Tommasino et Cross (1968) et par Lark (1969) a ensuite été perfectionnée en remplaçant l'un des électrodes par un film de Mylar recouvert d'une couche d'aluminium de quelques μm d'épaisseur (Cross et Tommasino, 1970; Becker et collaborateurs, 1970; Johnson et Becker, 1970). Quand un claquage se produit à l'endroit d'une trace, la fine couche d'aluminium est vaporisée ce qui empêche un second claquage au même endroit. Lorsqu'un claquage a eu lieu pour chacun des trous du détecteur, la feuille de Mylar aluminisée visualise la distribution des impacts des fragments de fission sous la forme de petits points transparents qu'on peut observer à l'oeil nu en lumière transmise. L'efficacité de détection des fragments de fission dépend des conditions du traitement chimique utilisé pour révéler les traces (nature du bain, concentration, température, durée) et des conditions de dépeuillement (capacité du condensateur, tension de polarisation). Au cours de mesures préliminaires, nous avons déterminé ces paramètres pour obtenir les meilleures conditions de dépeuillement.

Conditions du dépeuillement électrique

Nous avons d'abord déterminé la tension de polarisation permettant de visualiser le plus grand nombre de traces de fragments sans pour autant introduire un bruit de fond important. Ce bruit de fond est dû aux claquages qui peuvent se produire au voisinage de défauts de structure du détecteur. Pour ce faire, nous avons irradié des feuilles de Makrofol de 10 μm d'épaisseur, sous une incidence normale, à l'aide d'une source de ^{252}Cf d'activité connue située à 30 cm du détecteur. Nous avons utilisé dans un premier temps les conditions d'attaque chimique suivantes : bain de soude NaOH 6 N à 60° pendant 40 mn. Avec les détecteurs irradiés,

nous avons formé un condensateur de 100 cm^2 de surface présentant une capacité de $6 \mu\text{F}$ environ. En utilisant le circuit présenté sur la Fig. 2, nous avons fait varier la haute tension de 1000 à 2000 V.

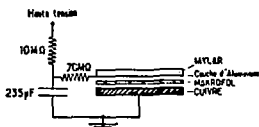


Fig. 2

Pour ces tensions, l'impact des fragments de fission est visualisé sous la forme de cercles de 2 à 4 mm de diamètre, ce qui rend difficile la discrimination des traces voisines. Aussi pour chaque tension, une seconde épreuve est faite avec une tension plus faible puisque les trous du détecteur ont été agrandis par les premiers claquages, les traces des fragments sont alors visualisées sous forme de cercles transparents de 1 mm de diamètre qu'il est facile de dénombrer si leur densité ne dépasse pas 25 traces/ cm^2 . Nous avons fait varier la tension de 300 à 900 V au cours de ce second claquage. Comme le montre la Fig. 3, sur laquelle nous avons porté le nombre de traces comptées en fonction de la tension V_2 du second claquage, l'efficacité de détection croît d'abord rapidement avec la tension V_2 et se sature à partir de 600 V; au-delà de 700 V, le diamètre des cercles augmente rapidement, ce qui rend plus difficile le décompte des traces. Nous avons donc retenu une tension $V_2 = 600 \text{ V}$.

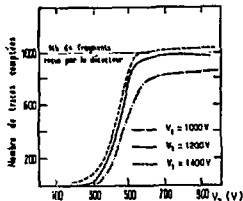
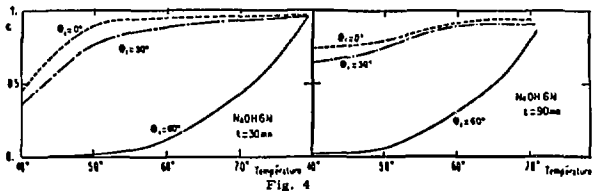


Fig. 3

L'efficacité de détection croît avec la tension V_1 utilisée au cours du premier claquage et se sature à partir de 1200 V; le bruit de fond que nous avons mesuré à l'aide de détecteurs non irradiés, mais soumis au même traitement chimique, varie entre 2 et 6 traces/ 100 cm^2 pour une tension V_1 comprise entre 1000 et 1200 V; au-delà de 1400 V le bruit de fond augmente considérablement. Afin d'obtenir une efficacité optimale, tout en conservant un très faible bruit de fond, nous avons utilisé une tension de 1200 V pour le premier claquage.

Conditions de l'attaque chimique

Les détecteurs sont traités par une solution de soude NaOH 6N. Le bain est thermostaté de telle sorte que les écarts de température soient de l'ordre de $0,5^\circ$. Dès la fin du traitement les détecteurs sont lavés à l'eau courante pendant 6 hr, puis séchés. Nous avons étudié la variation de l'efficacité de détection des fragments de fission pénétrant dans le détecteur avec différents angles d'incidence ainsi que l'évolution du bruit de fond, en fonction de la température du bain de soude et de la durée de séjour des détecteurs dans ce bain. D'après la Fig. 4, on constate que l'efficacité décroît rapidement pour des températures inférieures à 70°C et plus particulièrement pour un angle de pénétration de 60° , et ceci quelle que soit la durée du bain. On peut penser que la vitesse d'attaque superficielle est alors du même ordre de grandeur que la vitesse de pénétration dans les traces. En retenant une température de 70°C , nous avons ajusté le temps de traitement de façon à obtenir le rapport signal/bruit de fond le meilleur possible. Les conditions de dépouillement des détecteurs conduit-



étant à une efficacité optimale sont alors : température du bain de soude NaOH 6N : 70°C ; durée de l'attaque chimique : 20 mn ; tension des premiers claquages : $V_1 = 1200$ V ; tension des seconds claquages : $V_2 = 600$ V.

OBTENTION DES DISTRIBUTIONS ANGULAIRES EXPERIMENTALES

Nous pouvons calculer la position sur le cylindre détecteur de l'impact des fragments dont la détection fait un angle θ donné avec la direction des neutrons incidents. Ces courbes sont représentées sur la Fig. 5 pour des angles θ variant de

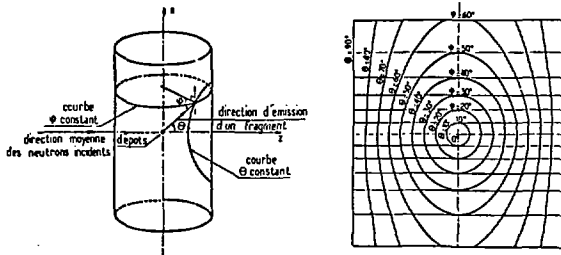


Fig. 5

0° à 90° par intervalle de 10°. L'efficacité des détecteurs varie avec l'angle que fait la direction du fragment avec la normale au détecteur, nous avons donc également tracé sur cette figure les courbes correspondant aux différents angles de pénétration φ variant par pas de 10°. Nous obtenons alors une grille correspondant à une moitié de détecteur, et le comptage des traces se fait dans chacune des zones élémentaires ainsi déterminées. Après avoir corrigé le nombre de traces $N_1(\theta, \varphi)$ dans chaque zone de l'efficacité correspondante $\xi(\varphi)$, on peut calculer le taux de comptage par unité d'angle solida pour un angle θ donné :

$$\frac{dn}{d\omega}(\theta) = \frac{\sum_{\varphi} N_1(\theta, \varphi) / \xi(\varphi)}{\Omega(\theta)}$$

APPLICATION DE LA METHODE

La méthode de mesure que nous venons de décrire est actuellement la plus compétitive pour l'étude des distributions angulaires des fragments de fission dans les réactions (n, f) . Nous l'avons employée pour obtenir des informations sur le mécanisme de fission de plusieurs noyaux : $^{232}\text{Pa}^{\#}$, $^{235}\text{U}^{\#}$, $^{231}\text{Th}^{\#}$ et $^{233}\text{Th}^{\#}$. Par exemple dans le cas de la réaction $^{231}\text{Pa}(n, f)$ nous avons mis en évidence une résonance très étroite dans la section efficace de fission pour une énergie de neutrons $E_n = 160$ keV. Comme le montre

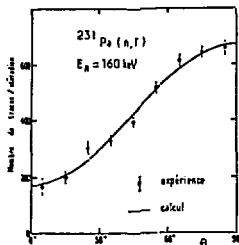


Fig. 6

la résonance très étroite dans la section efficace de fission pour une énergie de neutrons $E_n = 160$ keV. Comme le montre la Fig. 6, la comparaison de la distribution angulaire mesurée à cette énergie avec les distributions angulaires calculées nous a conduit à identifier la résonance observée comme correspondant à un état $K^{\pi} = 3^+$ (Sicre et collaborateurs, 1979). Les calculs actuels concernant la forme de la barrière de fission semblent montrer qu'elle est plus complexe que la simple barrière à 2 maxima utilisée jusqu'à maintenant. En particulier, les calculs prévoient pour la région du Thorium un 3ème puits de potentiel correspondant à une asymétrie en masse (Möller et Nix, 1973). Des mesures récentes de la section efficace de fission du $^{231}\text{Th}^{\#}$ (Blons et collaborateurs, 1978) montrent l'existence de structures qui pourraient confirmer ces hypothèses. Nous avons entrepris, pour ce noyau, une mesure des distributions angulaires des fragments de fission qui sont le complément indispensable des mesures de section efficace; l'ensemble de ces informations expérimentales devrait permettre de clarifier la situation.

BIBLIOGRAPHIE

- Barreau, G. (1977). Thèse d'Etat. Université de Bordeaux I.
- Becker, K., R.H. Boyer, N. Chantananom, J.S. Cheke, K.W. Crase, D.R. Johnson, M. Oberhofer, E.M. Robinson, and J.F. Wilson (1970). Rapport ORNL-4445, 251.
- Blons, J., C. Mazur, D. Pays, M. Ribrag, and H. Weigmann (1978). Phys. Rev. Lett. **41**, 1282.
- Cross, W.G., and L. Tommasino (1970). Radiat. Eff., **5**, 85.
- Fleischer, R.L., P.B. Price, R.M. Walker, and E.L. Hubbard (1964). Phys. Rev. **133**, A 1443.
- Johnson, D.R., and K. Becker (1970). Rapport ORNL-TM-2826.
- LARK, M.L. (1969). Nucl. Inst. and Meth. **67**, 137.
- Möller, P., and J.R. Nix (1973). Proc. "Phys. and Chem. of Fission, Rochester 1973", Vol. 1, I. A. E. A. Vienne, p. 103.
- Monnin, M. (1969). Thèse d'Etat. Université de Clermont-Ferrand.
- Sicre, A. (1976). Thèse d'Etat. Université de Bordeaux I.
- Sicre, A., F. Caftucoli, G. Barreau, T. P. Doan, T. Benfoughal et B. Leroux (1979). Proc. "Phys. and Chem. of Fission, Jülich 1979", à paraître.
- Tommasino, L., and W.G. Cross (1968). Health Physics **15**, 196.
- Tripiet, J., G. Remy, J. Ralarosy, M. Debeauvais, R. Stein, et D. Huss (1974). Nucl. Inst. and Meth. **115**, 29.