

Emploi des plaques photographiques pour la détection des réactions de fission de l'uranium

Autor(en): **Rochat, Olivier**

Objektyp: **Article**

Zeitschrift: **Mémoires de la Société Vaudoise des Sciences Naturelles**

Band (Jahr): **9 (1948-1950)**

Heft 3

PDF erstellt am: **16.08.2024**

Persistenter Link: <https://doi.org/10.5169/seals-287477>

Nutzungsbedingungen

Die ETH-Bibliothek ist Anbieterin der digitalisierten Zeitschriften. Sie besitzt keine Urheberrechte an den Inhalten der Zeitschriften. Die Rechte liegen in der Regel bei den Herausgebern.

Die auf der Plattform e-periodica veröffentlichten Dokumente stehen für nicht-kommerzielle Zwecke in Lehre und Forschung sowie für die private Nutzung frei zur Verfügung. Einzelne Dateien oder Ausdrucke aus diesem Angebot können zusammen mit diesen Nutzungsbedingungen und den korrekten Herkunftsbezeichnungen weitergegeben werden.

Das Veröffentlichen von Bildern in Print- und Online-Publikationen ist nur mit vorheriger Genehmigung der Rechteinhaber erlaubt. Die systematische Speicherung von Teilen des elektronischen Angebots auf anderen Servern bedarf ebenfalls des schriftlichen Einverständnisses der Rechteinhaber.

Haftungsausschluss

Alle Angaben erfolgen ohne Gewähr für Vollständigkeit oder Richtigkeit. Es wird keine Haftung übernommen für Schäden durch die Verwendung von Informationen aus diesem Online-Angebot oder durch das Fehlen von Informationen. Dies gilt auch für Inhalte Dritter, die über dieses Angebot zugänglich sind.

**Emploi des plaques photographiques
pour la détection des réactions de fission
de l'uranium**

PAR

Olivier ROCHAT

546.791

(Présenté à la séance du 6 février 1949)

CHAPITRE 1. — INTRODUCTION

1. GÉNÉRALITÉS.

Le présent travail est une contribution à l'emploi des émulsions photographiques pour la détection des particules chargées. Il est consacré à l'observation des traces de fission obtenues en irradiant une plaque photographique contenant un sel d'uranium par un flux de neutrons lents, à l'étude des conditions expérimentales dans lesquelles ces traces peuvent être clairement distinguées des traces des particules α de la radioactivité naturelle de l'uranium, et à une détermination de la section efficace de fission.

Mentionné par BRODA (B⁵) parmi les nombreuses applications possibles de la méthode photographique, le principe de cette détermination a été récemment exposé par HAENNY et KLEMENT (H¹) à propos de la mesure du rapport des sections efficaces de capture du ¹⁰B et du ⁶Li.

2. PRINCIPE DE LA MÉTHODE PHOTOGRAPHIQUE : EFFET PHOTOGRAPHIQUE DES PARTICULES IONISANTES.

MOTT et GURNEY (M²), CUER (C¹).

Le passage d'une particule ionisante à travers les microcristaux (diamètre 0,2 μ) d'AgBr qui composent la couche sensible donne lieu à une transformation irréversible complexe. Le processus primaire est la production d'électrons de conductibilité, par choc ionisant. La production d'un électron demande 3 à 5 eV, une particule ionisante en li-

bère au minimum 50 à 100 dans la traversée d'un seul grain. La durée de passage est de l'ordre de 10^{-14} sec. Une partie des électrons libérés se recombinaient instantanément avec les ions Ag^+ et Br^- dont ils proviennent. La présence, dans le cristal, d'impuretés de sulfure d'Ag qui jouent un rôle déterminant pour la sensibilité, empêche toutefois que cette recombinaison soit totale. Ces centres se chargent négativement en captant les électrons qui parviennent à leur niveau. Il se crée ainsi des différences de potentiel électrostatique locales et momentanées en certains points du réseau, qui sont suffisantes pour déclencher une deuxième phase dite phase électrolytique. Les ions Ag^+ se déplacent par conductibilité ionique jusqu'à la surface de ces centres, où ils sont réduits à l'état d'Ag métallique.

Le résultat final de la transformation est la constitution d'un certain nombre d'amas d'Ag métallique à la surface et à l'intérieur du grain. Cette structure est stable en regard des temps indiqués ci-dessus, et ne se modifie qu'extrêmement lentement par la suite (oxydation lente des amas superficiels par les agents extérieurs, O_2 , H_2O_2). Le grain d'AgBr ainsi modifié constitue l'image latente. Sa réactivité chimique aux solutions réductrices (révélateur) est considérablement accrue par rapport aux grains non touchés. C'est ce qui permet l'opération du développement, qui consiste à transformer en Ag la totalité des cristaux pourvus d'une image latente suffisante, sans atteindre les autres.

Après le développement, la trajectoire de la particule est jalonnée par les grains d'argent réduits. Si la particule est rapide, seule une faible proportion des grains sont pourvus d'une image latente suffisante pour être développés. A mesure que l'intensité de l'ionisation augmente, le nombre de grains varie dans le même sens jusqu'à une limite supérieure atteinte lorsque tous les grains situés sur le parcours sont rendus développables. (Cette limite n'a pas un caractère absolument strict. Des traces de fragments lourds très fortement ionisant seront plus épaisses à cause d'un effet de «contagion» dû aux électrons δ).

3. DÉNOMBREMENT DES ÉVÉNEMENTS NUCLÉAIRES.

On peut sélectionner les phénomènes étudiés par l'examen visuel de la couche au microscope. Les différentes espèces de particules et leur mouvement sont identifiés grâce à la densité de grains, aux changements de direction et à la longueur du parcours. Ce pouvoir de sélection atteint un haut degré de

précision. Le champ d'activité le plus fructueux est ainsi la recherche d'événements rares à laquelle ce pouvoir de discrimination, joint à la possibilité d'intégration dans le temps et dans l'espace, donne une grande efficacité.

La discrimination des particules très rapides est soumise à la même limitation que dans la chambre de Wilson vu l'existence d'un minimum d'ionisation aux vitesses relativistes.

Des difficultés apparaissent également dans la discrimination des particules fortement ionisantes. Protons et particules α de court parcours sont confondus, les fragments lourds sont difficiles à identifier sur de courtes distances. Des méthodes de développement sélectif permettront d'améliorer cette discrimination. Leur étude s'ébauche actuellement. OCCHIALINI (O¹), PICCIOTTO (P²). Le présent travail apporte une contribution au problème de la discrimination des fragments de fission de l'uranium parmi une abondante population de traces α provenant de la radioactivité naturelle.

La précision des comptages est limitée par les fluctuations statistiques. La vitesse d'exploration peut varier de 0,1 à 0,5 cm² de plaque photographique par jour suivant le soin apporté. Des mesures précises exigent souvent des observations très longues.

La disparition de l'image latente (fading) impose une limite à la durée d'exposition. Dans les conditions de faible humidité, de température inférieure à 20° C, la réduction du nombre de grains est importante après plusieurs semaines (FARAGGI - F¹), la disparition totale des traces se manifeste après plusieurs mois (id).

Une forte humidité, une haute température ou une acidité élevée réduisent beaucoup ces durées.

Dans une plaque imbibée d'eau, la disparition des traces de protons est totale après 24 h. Nous avons constaté la disparition de traces de fission dans les plaques imprégnées de solution de nitrate d'uranyle en solution tampon de pH 5 après 72 h.

Il faut signaler encore les difficultés de développement que peuvent causer les rayons γ . Le voile dû aux rayons γ limite les durées d'exposition aux sources radioactives.

4. MESURES DE LONGUEURS.

(Détermination du parcours d'un groupe α , de l'énergie d'une réaction nucléaire, de l'énergie totale dissipée dans les étoiles, du bilan énergétique d'une collision).

L'équipement habituel comporte soit une platine mobile à avancement micrométrique, soit un micromètre oculaire. La précision peut atteindre $0,3 \mu$ sur les lectures, au grossissement de 1500 fois.

La difficulté principale provient de la contraction verticale de la gélatine qui modifie la longueur des traces inclinées. La détermination du facteur de contraction est délicate. Pour effectuer une mesure exacte de parcours moyen il faut se limiter à la mesure de traces suffisamment horizontales, compte tenu de l'erreur de lecture dans le plan horizontal.

La correspondance entre parcours et énergie est connue par les courbes d'étalonnement publiées ces dernières années (LATTES, FOWLER, CUER - L¹) dont la précision est de 2 % dans le domaine de 2 à 12 MeV pour les particules α , et de 2 à 10 MeV pour les protons.

Les valeurs du parcours moyen de groupes α de la radioactivité naturelle, mesurées par différents auteurs dans des conditions identiques, s'accordent avec une précision de 1 à 2 %. Le bilan énergétique de réactions nucléaires provoquées par des particules incidentes d'énergie connue a pu, de même, être vérifié avec une précision de 5 % pour la réaction $^{10}\text{B} (n, 2\alpha) ^3\text{H}$ avec des neutrons de 13,4 MeV (LATTES, OCCHIALINI - L²) et de 2 % pour la réaction $^{12}\text{C} (\gamma, 2\alpha) ^4\text{He}$ (ZÜNTI, HÄNNI, TELEGDÍ - Z¹) usant de rayons γ de 17,0 MeV.

Il semble certain que la mesure du parcours dans l'émulsion donne la possibilité d'une mesure d'énergie en accord avec les autres méthodes de détermination.

5. MESURES D'ANGLES.

(Détermination de la balance des quantités de mouvement, des angles de diffusion).

Elles sont réalisables avec une précision de 1 % dans le plan horizontal. L'équipement habituel comporte l'emploi d'un oculaire à réticules croisés goniométrique.

En revanche l'imprécision est plus grande dans les plans verticaux du fait du coefficient de contraction.

La conservation des quantités de mouvement est vérifiée à 2 % près dans la réaction du bore $^{10}\text{B} (n, 2\alpha) ^3\text{H}$ dans le cas favorable où les 3 traces sont dans le plan horizontal LATTES (L²).

De même dans le cas de collisions élastiques, on vérifie la conservation de l'énergie et de la quantité de mouvement avec une précision de 2 à 5 % dans les cas favorables. POWELL (P⁴).

6. COMPTAGE DES GRAINS.

Le nombre de grains par unité de longueur¹ est une mesure de l'intensité de l'ionisation, partant de la perte d'énergie cinétique. Elle représente souvent le caractère le plus précis pour la discrimination de deux particules, et doit permettre théoriquement la détermination de la masse en conjonction avec la mesure du parcours, sur les traces de deux particules de masse différente et de même charge.

L'influence du développement sur le nombre de grains n'est pas encore connue avec précision. La plupart des efforts qui sont faits en vue d'améliorer la discrimination des particules fortement ionisantes reposent sur cette influence.

Nous montrerons qu'il est possible de comparer, au moins qualitativement, la variation du nombre de grains aux variations connues de la densité optique en fonction des conditions de développement.

CHAPITRE 2. — LA RÉACTION DE FISSION DANS LES PLAQUES PHOTOGRAPHIQUES

1. HISTORIQUE (DÉCOUVERTE).

MYSSOWSKI et IDANOV (M¹) ont signalé les premiers la possibilité de détecter, par les plaques photographiques, la réaction de fission provoquée par les neutrons sur les noyaux d'uranium et de thorium. En plaçant une plaque photographique au contact d'une couche d'uranium métallique, ils observent dans la plaque développée après irradiation, des traces très denses pénétrant dans la couche en surface, distinctes des traces α de la radioactivité naturelle et qui ne se retrouvaient pas sur les plaques non irradiées. Depuis cette première observation, un grand nombre d'auteurs ont perfectionné l'étude de Myssowski et Idanov (BORST et FLOYD, B⁴, DEMERS, D¹, PERFILOV, P¹).

En introduisant l'uranium dans l'émulsion, Demers a mis en évidence l'ensemble de la trace dont les auteurs russes n'observaient qu'une moitié. Lorsque le noyau composé U²³⁶ formé par la capture d'un neutron par l'isotope U²³⁵ se partage en deux fragments, les deux parties chargées sont émises en direction opposée, et la trace qu'elles forment est rectiligne.

¹ appelé aussi densité de grains (« grain density »).

2. OBSERVATION DES TRACES DE FISSION.

La planche I représente une microphotographie d'une trace de fission. Elle a été obtenue par la méthode suivante :

Une plaque Ilford D1, d'épaisseur $50\ \mu$, de format $7,5 \times 2,5$ cm. est plongée pendant 2 heures (dans l'obscurité) dans une solution de nitrate d'uranyle à 6 %, de pH 4,89 (tampon réalisé au moyen d'une solution de citrate de Na 0,4 normale).

Retirée du bain, la plaque est égouttée, puis séchée horizontalement dans un dessiccateur à vide, sur CaCl_2 , pendant 2 heures. La plaque sèche est placée sur un porteur de carton et entourée de papier noir. L'irradiation aux neutrons lents est effectuée en plaçant la plaque dans un porteur de Pb de 0,5 cm. d'épaisseur introduit dans un logement à l'intérieur d'un ralentisseur de paraffine représenté par le schéma de la fig. 1. Au centre de la masse de paraffine se trouve un cylindre de Pb de 10 cm. de diamètre et 10 cm. de hauteur et une source de neutrons rapides de 50 millicuries (Ra - α - Be).

Après 24 h. d'irradiation, la plaque est révélée, par une méthode de développement sur laquelle nous reviendrons en détail dans le chapitre 4.

L'observation au microscope révèle la présence des traces figurées sur la photographie de la planche I. Leur abondance est de l'ordre de 400 par cm^2 , soit environ 1 pour 35 champs (surface du champ oculaire $12 \times$, objectif immersion $1/12$: $7,7 \cdot 10^{-5}\ \text{cm}^2$).

Dans les plaques imprégnées de la même façon, mais qui ne sont pas soumises aux neutrons, aucune de ces traces n'est visible. Durant les 24 h. d'exposition, la quantité d'uranium contenue dans la plaque produit environ $2 \cdot 10^6$ particules de radioactivité naturelle (UI, UII et AcU) par cm^2 . Ces particules laissent dans l'émulsion des traces légères, ponctuées, qui sont visibles sur les photographies des planches I à III. Le développement sélectif qui a été opéré permet d'affaiblir suffisamment ces traces pour qu'elles ne gênent pas l'observation des fissions. La reproduction microphotographique est obtenue par projection de l'image oculaire à l'aide d'une lampe à vapeur Hg (75 watts).

3. ASPECT DES TRACES DE FISSION.

La planche I montre l'aspect caractéristique des traces de fission. La trace est épaisse au centre et s'amincit aux deux extrémités. Longueur : $25,5\ \mu$. La planche II montre 4 exemples de collisions entre fragments de fission et noyaux ato-

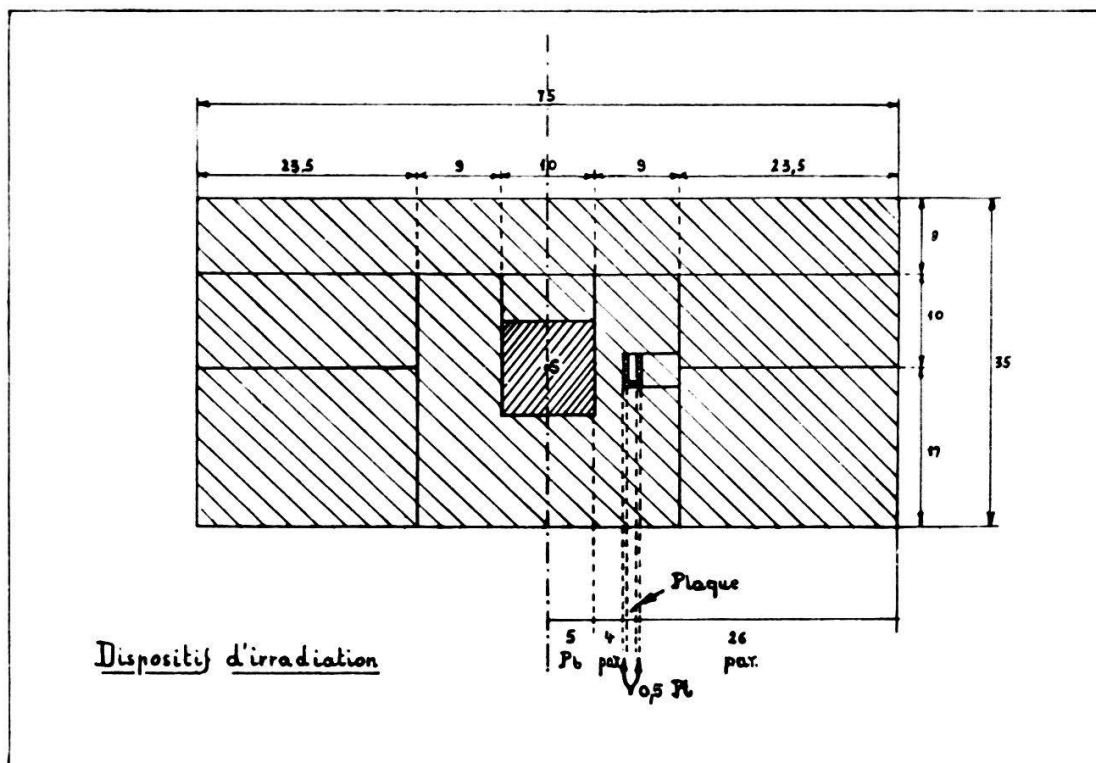


FIG. 1.

miques de l'émulsion. Le parcours du noyau de recul, que l'on distingue faiblement sur les 3 premières photos est très nettement marqué dans le quatrième.

La planche III donne 4 autres exemples de traces de fission, dans lesquelles on peut noter la diminution de la densité de grains aux deux extrémités de la trace.

Nous allons résumer les caractéristiques de la trace de fission, telles qu'elles ressortent de ces microphotographies, et en utilisant également les données de la littérature.

a) *Longueur.*

AUTEURS	Parcours du		Total
	fragment léger ¹	fragment lourd ¹	
DEMERS (D ¹)	14,4 μ	11,2 μ	25,5 μ
WOLLAN, MOAK, SAWYN (W ²)	—	—	23
Green et Livesey (S ²)	13	10	23-25
RICHARDS et SPECK (R ²)	14,5	10,5	25
TSIEN et coll. (T ¹)	—	—	23
YAGODA (Y ¹)	—	—	24

¹ La fission de ²³⁵U provoque 2 groupes de fragments de masses inégale, dont l'un de 96 (masse la plus fréquente) et l'autre de 139 unités de masses. Pour la mesure des parcours des fragments isolés, voir sous d.

b) *Variations de la densité de grains.*

L'ionisation courante diminue avec la vitesse, en contradiction avec la courbe de Bragg. Cette propriété des fragments de fission a été mise en évidence par BOEGGILD (B²) dans la chambre de Wilson. Elle est causée par la perte de charge survenant au cours du ralentissement. Elle se traduit par un amincissement de la trace aux deux extrémités, l'ensemble ayant une forme de «cigare».

c) *Collisions avec les noyaux du milieu ambiant.*

Ce phénomène, signalé également par les observations de Boeggild dans la chambre de Wilson, se retrouve dans les plaques. On distingue une déviation de la direction de parcours du fragment et une trace secondaire provenant du noyau de recul. Le nombre et l'importance de ces embranchements dépend de la sensibilité de l'émulsion. Dans notre cas la désensibilisation a été poussée pour prévenir la formation des traces α ; les cas de traces secondaires visibles sont peu nombreux (fréquence inférieure à 1 %) et les secondaires sont courts. Les collisions se manifestent plus fréquemment par des changements de direction sur la trace de fission, sans secondaires visibles.

d) *Fission en trois fragments (tripartition).*

Ce phénomène, qui se traduit par la présence d'un troisième fragment beaucoup plus léger (particule α ?¹) prenant son origine au centre de la trace de fission et partant à 90°, a été découvert par GREEN et LIVESY (G³) par la méthode des émulsions photographiques. La fréquence des cas où la trace α a un parcours suffisamment long pour être détecté sans ambiguïté n'est que de 3 ‰. Du fait de l'affaiblissement considérable des traces α dans notre étude (imposé par la nécessité de la discrimination) aucun cas de long parcours n'a pu être observé.

Le phénomène de tripartition, qui permet de situer le point où se produit la fission, a rendu possible la mesure séparée du parcours des deux groupes de fragments (Green et Livesey, Demers).

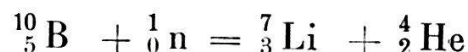
CHAPITRE 3. — PRINCIPE DE LA DETERMINATION DE LA SECTION EFFICACE

1. DÉFINITION.

On peut réaliser, à l'aide des plaques photographiques, une mesure relative de la section efficace de fission par la méthode suivante : Irradier par un même flux de neutrons lents une

¹ Dans certains cas, la particule émise est plus lourde que ${}^4_2\text{He}$ (TSIANG, WEI, CHATEL, VIGNERON, T¹).

plaque contenant une quantité connue de bore et une plaque contenant une quantité connue d'uranium. L'isotope ^{10}B réagit avec les neutrons lents selon le schéma



Le ${}^7\text{Li}$ et la particule α produisent dans l'émulsion une trace unique qui permet de déceler la réaction. L'isotope ^{235}U réagit avec les neutrons lents selon le schéma



la trace de fission étudiée ci-dessus permet de même de connaître le nombre de noyaux qui ont réagi.

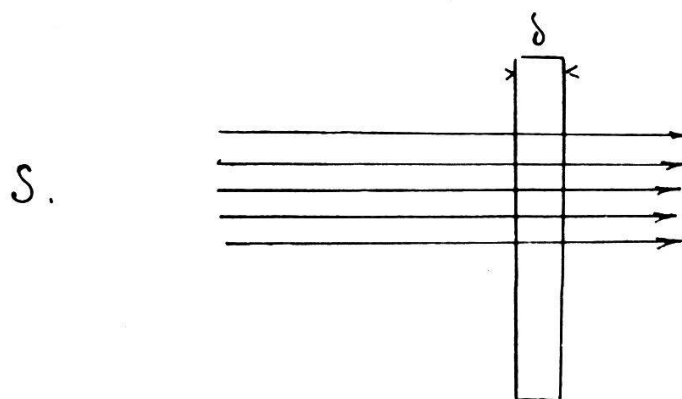


FIG. 2 a.

Moyennant une supposition essentielle sur la loi de variation des sections efficaces des deux corps avec l'énergie des neutrons, le rapport des sections efficaces pour l'énergie thermique moyenne est égal au rapport du nombre des traces des deux espèces de réactions ramené à un même nombre de noyaux réagissant, même si le flux incident n'est pas monocinétique.

Dans le § suivant, nous montrerons que la condition qui doit être réalisée s'exprime par la loi $\sigma \propto \frac{1}{v}$.

2. THÉORIE.

Considérons d'abord (fig. 2 a), un faisceau parallèle de neutrons monocinétiques. Son intensité I décroît exponentiellement dans la couche absorbante

$$I = I_0 e^{-\mu z}$$

(nous envisageons seulement le coefficient d'absorption par fission ou réaction (n, α)).

$$(2) \quad \mu = N\sigma_c$$

où σ = section efficace de capture
 N = nombre d'atomes par cm^3 .

Soit δ l'épaisseur de la cible dans la direction du faisceau, on a, pour $\mu \delta \leq 1$

$$(3) \quad n_c = I_0 N \delta \sigma_c$$

n_c = nombre de réactions de capture par cm^2 .

Soit maintenant (fig. 2 b) la plaque photographique telle qu'elle est irradiée, c'est-à-dire placée dans une «atmosphère» de neutrons ralentis à l'intérieur d'une cavité creusée dans le bloc de paraffine.

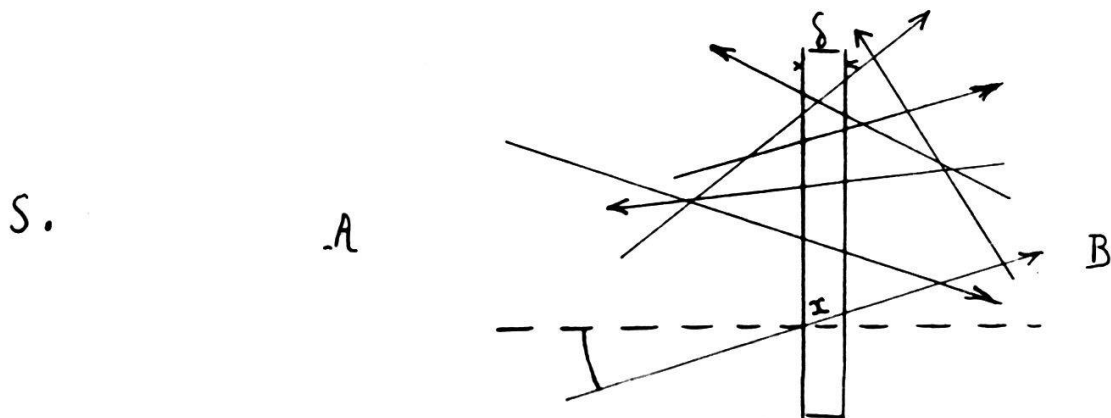


FIG. 2 b.

Soit ρ la densité de neutrons aux environs de la plaque. Nous savons que les neutrons thermiques possèdent en première approximation une loi de distribution de vitesse maxwellienne

$$(4) \quad M(v) dv = \rho v^2 e^{-\frac{v}{2kT}} dv$$

et une répartition isotropique des vitesses.

$$(5) \quad \rho(\theta) d\theta = \rho \frac{1}{2} \sin \theta d\theta$$

Le flux tombant sous l'angle θ en provenance du milieu A est alors

$$(6) \quad \frac{1}{2} \rho \sin \theta v \cos \theta d\theta$$

La distance parcourue dans la couche par cette catégorie de neutrons est

$$x = \frac{\delta}{\cos \theta}$$

Enfin la probabilité de capture sur le parcours x est $x N \sigma(v)$ en analogie avec (3) en négligeant les termes en $(\delta N \sigma)^2$.

Le nombre total de neutrons captés dans la couche en provenance du milieu A et du milieu B est ainsi

$$(7) \quad n_c = 2 \int_{v=0}^{\infty} \int_{\theta=0}^{\pi/2} \frac{1}{2} \rho \sin \theta \cos \theta v \sigma(v) \frac{N\delta}{\cos \theta} d\theta M(v) dv$$

Si la section efficace $\sigma(v)$ est inversement proportionnelle à la vitesse, le produit $\sigma(v)v = k$ est constant et l'intégrale (7) devient

$$(8) \quad n_c = \rho N \delta k \int \int \sin \theta d\theta M(v) dv = \rho N \delta k$$

Il résulte de (3) que pour 2 couches absorbantes minces qui suivent l'une et l'autre la loi $1/v$, le rapport du nombre de neutrons absorbés dans les mêmes conditions géométriques d'irradiation par les deux couches sera égal au rapport des constantes k , soit au rapport des sections efficaces pour n'importe quelle énergie où cette loi est valable.

$$(9) \quad \frac{\sigma_1}{\sigma_2} = \frac{n_1 N_2}{N_1 n_2}$$

$n_{1,2}$ = nb. de réactions de capture par cm^2

$N_{1,2}$ = nb. d'atomes par cm^2 de la couche absorbante.

3. CONDITIONS EXPÉRIMENTALES.

L'isotope ^{10}B du bore offre des conditions idéales pour l'application de la méthode ci-dessus. Il peut être utilisé comme élément de référence. La théorie de Breit-Wigner indique que les sections efficaces de capture varient proportionnellement à $1/v$ pour toutes les énergies notablement inférieures à l'énergie de résonance la plus basse. Le ^{10}B n'a qu'une énergie de résonance connue et elle est supérieure à 1000 eV. Pour toutes les énergies inférieures à 1000 eV le produit de la section efficace par la vitesse est une constante qui vaut

$$1,60 \pm 0,05 \cdot 10^6 \text{ barns}^1 \times \text{m/s.}$$

Moyenne des déterminations de GOLDSCHMIDT, IBSEN et FELD (G⁴), BACHER et COLL (B¹), RAINWATER et HAVENS (R¹).

Aucun renseignement numérique sur la variation de la section efficace de fission de ^{235}U dans la région thermique n'a été publié, à notre connaissance. Mais de nombreux auteurs (D. EVANS (E¹), FERMI (F²), ont mentionné l'existence de la variation en $1/v$. On connaît une résonance à 7 eV, pour la réaction de capture de ^{238}U , mais il n'a jamais été fait mention de résonances de fission pour ^{235}U dans la région thermique. Dans l'impossibilité où nous étions de vérifier l'absence de

¹ 1 barn = 10^{-24} cm^2 .

résonances, nous avons admis la proportionnalité à $1/v$ pour les énergies inférieures à 0,18 eV (résonance du Cd). Nous pensons que toutes les données actuellement disponibles sont en accord avec cette hypothèse.

La réalisation d'une expérience de comparaison des sections efficaces de capture du ^{10}B et de ^{235}U nécessite donc les éléments suivants :

- a) détection quantitative des traces de fission de l'uranium,
- b) détection quantitative des traces de la réaction du bore,
- c) détermination de la concentration superficielle de l'uranium dans la couche photographique,
- d) détermination de la concentration superficielle du bore dans la couche photographique.

Le quatrième point mentionné est connu par les données de la fabrique Ilford qui fournit des couches chargées de borax dont la teneur en bore est indiquée à 2 % près, et dont l'épaisseur ($100\ \mu$) est également reproductible à cette précision.

Les trois premiers points feront l'objet des trois chapitres suivants, et nous résumerons dans le chapitre 7 les résultats obtenus.

CHAPITRE 4. — DETECTION QUANTITATIVE DES TRACES DE FISSION

1. TECHNIQUE DE PRODUCTION.

Nous voudrions justifier dans ce § le choix de la technique d'imprégnation en regard de la technique d'exposition superficielle qui a été employée dans le travail original de MYSSOWSKI et IDANOV, et plus récemment par PERFILOV (P^1), SHAPIRO (S^2), BORST et FLOYD (B^4).

L'avantage principal de cette dernière technique est d'offrir une masse superficielle utile plus grande que dans le cas de l'imprégnation. Dans le cas où de l'uranium métallique pur est utilisé, cette masse superficielle atteint $\approx 5\ \text{mg par cm}^2$.

Avec l'imprégnation, nous avons réalisé une concentration de 0,9 mg d'uranium par cm^2 dans les plaques de $50\ \mu$. Nous pourrions donc obtenir 5 fois plus de traces de fission pour la même exposition, par la méthode superficielle.

En revanche, deux difficultés se présentent pour la détermination quantitative du rendement :

1. nécessité de connaître le parcours des fragments de fission dans la couche uranifère utilisée,

2. obligation de détecter des traces de longueurs variables, dont certaines seront très courtes, et qui ont une direction privilégiée perpendiculaire à l'émulsion.

Pour cette raison, nous avons préféré l'imprégnation, qui permet d'observer des traces de fissions entières, à l'exception d'une minorité de traces qui sortent de la couche en surface ou dans le verre dont le nombre peut être calculé.

Nous n'échappons pas à des difficultés importantes avec cette méthode : elles ont trait

1. à l'influence de la solution imprégnante sur le développement et sur la conservation de l'image latente,
2. au dosage de l'uranium dans la couche.

Les paragraphes suivants montreront comment elles ont pu être résolues.

2. DISCRIMINATION FISSION-ALPHA.

Les méthodes suivantes ont été utilisées pour distinguer les traces de fission des traces α :

a) discrimination par l'aspect caractéristique de la trace de fission dans une émulsion sensible à toutes les particules ionisantes.

Cette méthode n'est applicable qu'avec des flux de neutrons intenses qui permettent une irradiation de quelques minutes ou de quelques secondes, qui évite la présence des traces α parasites.

DEMERS (D¹): irradiation dans une pile à réaction en chaîne. Emploie les plaques Eastmann imprégnées de solution de nitrate d'uranyle à 0,06 %. Il distingue les traces de fission par leur aspect.

WOLLAN, MOAK et SAWYER (W¹): irradiation dans une pile (1 minute) de plaques Eastmann imprégnées de solution saturée d'acétate d'uranyle dans l'eau (7 gr. pour 100 cm³).

b) discrimination par l'emploi de plaques spéciales de faible sensibilité enregistrant seulement les traces de fission. Deux types d'émulsions spéciales américaines sont mentionnées dans la littérature:

EASTMANN KODAK NTC utilisées par Borst et Floyd pour la technique de l'exposition superficielle. Les auteurs indiquent que ces émulsions enregistrent les traces de fission tandis que les particules α et les protons ne produisent pas de traces mais un voile général (plaques préconisées également par Shapiro).

EASTMANN 548-0. Le travail de RICHARDS et SPECK (R²)

mentionne que ces plaques imprégnées de nitrate d'uranyle enregistrent les fissions à l'exclusion de toute autre trace.

Comme nous ne disposions pas de ces plaques au début de notre travail, nous avons utilisé un type ILFORD, D1 qui est considéré comme une plaque spéciale pour les fissions, mais qui ne présente pas la même absence de sensibilité aux particules α (H^2). Les traces α sont visibles, sous forme de grains séparés, distincts les uns des autres, mais suffisamment gros pour créer des confusions surtout si l'on a une trace de fission pour 5000 traces α (photographie fig. 12, pl. IV).

Pour cette raison nous avons dû nous préoccuper d'une méthode d'affaiblissement.

c) discrimination par l'emploi d'un traitement spécial destiné à affaiblir les traces des autres particules ionisantes.

On peut diviser ces traitements en trois groupes :

1. action sur la formation de l'image latente,
2. action sur l'image latente,
3. action sur le développement.

BRODA (B⁶) mentionne une méthode qui vise à empêcher la formation de l'image latente des particules α . Il immerge la plaque (C2 Ilford 50 μ) dans une solution d'acide chromique à 1 % pendant cinq minutes; rince à l'eau et imprègne ensuite la plaque (nitrate d'uranyle en solution acétique).

Les résultats indiqués sont les suivants : traces de protons disparaissent, voile γ disparaît, traces α très affaiblies. Permet la discrimination α - fission.

GREEN et LIVESEY (G¹) utilisent le même principe pour des imprégnations de nitrate de thorium en vue de fissions par neutrons rapides. Les traces α sont affaiblies par l'acide chromique 1 %, les traces de protons éliminées. Le développement se fait par ¹D 19 dilué 10 fois pendant 40 à 50 minutes. Dans les conditions optima, ces auteurs observent 3 traces de fission par mm² après 3 h. d'irradiation. Le rapport du nombre de traces α au nombre de traces de fission a la valeur 0,1. Les photographies reproduites dans l'article cité montrent que les traces α n'ont pas entièrement disparu. Comme il y a 10 fois plus de traces de fission, on peut se contenter d'un affaiblissement modéré.

La principale objection qui peut être faite à ce traitement préalable par l'acide chromique dans le cas de notre étude est l'influence oxydante sur les traces de fission. Cette dernière action a peu d'importance dans le travail de Green et Livesey vu le peu de temps (4 h.) qui sépare l'imprégnation du dévelop-

pement. Pour des irradiations de 24 heures, cette action affaiblissante risque de faire disparaître les traces de fission qui se sont marquées durant les premières heures d'irradiation.

PERFILOV (P¹) a étudié l'action de l'acide chromique après l'irradiation. La plaque est plongée pendant 15 minutes dans une solution de CrO₃ à 15° C, puis elle est lavée plusieurs fois dans l'eau distillée durant 40 minutes. L'eau est évacuée par l'alcool éthylique et finalement la plaque est séchée dans un courant d'air chaud à 30° C.

Le développement est effectué à l'aide d'un révélateur à l'hydroquinone (6 g pour 440 cm³ d'eau) pendant 16 minutes à la température de 18° C.

Les résultats sont les suivants : une concentration de 0,125 mg CrO₃ par cm³ fait disparaître les traces de particules α entièrement. Avec une concentration de 0,2 mg par cm³ les traces de fission sont enregistrées d'une façon suffisamment forte pour être comptées, les traces α n'apparaissent pas.

Cette méthode est utilisée pour enregistrer les traces de fission par neutrons rapides, au contact avec une couche de U₃O₈. Perfilov a déterminé la section efficace de fission de ²³⁸U par les neutrons rapides, en utilisant les protons de recul comme étalonnage du flux de neutrons.

La méthode de Perfilov semble donner d'excellents résultats puisque son auteur a pu détecter les fissions « spontanées » de l'uranium en maintenant une plaque au contact d'une couche d'uranium métallique pendant 70 jours. Le rapport du nombre de particules α au nombre de fissions est de l'ordre de 10⁸.

YAGODA (Y¹) indique toutefois que le résultat de Perfilov est trop faible, par rapport aux données obtenues par d'autres méthodes et qu'il n'est pas impossible qu'après 70 jours une proportion importante des traces de fission soient éliminées par ce traitement.

Action sur le révélateur.

Le révélateur ID 19 classique pour le développement des plaques nucléaires est un révélateur métol hydroquinone dans les proportions suivantes :

Métol	8 gr
Hydroquinone	22 gr
K Br	10 gr
Na ₂ SO ₃ anhydre	180 gr
Na ₂ CO ₃ anhydre	120 gr
Eau ad.	2500 cm ³

Dans la dilution de 1 partie de la solution ci-dessus pour 2 parties d'eau.

STEVENS (S¹) a montré qu'il était possible de développer d'une façon sélective les traces de fission à l'exclusion des traces α en faisant varier le pH du révélateur.

Il réussit à développer des traces de fission dans une émulsion Kodak NT2a par la méthode suivante :

10 min. dans ID 19 dilué 3 fois

40 min. dans un révélateur spécial de pH 8,0, composé de chlorhydrate de paraminophénol, tamponné avec le phosphate de Na.

Stevens indique qu'une échelle complète de développement peut être obtenue en faisant varier la composition du mélange et le pH du révélateur.

SAN-TSIANG ET COLL. (T¹) ont obtenu un développement satisfaisant des traces de fission, dans des plaques C2 de 50 μ imprégnées de solution de nitrate d'uranyle dans l'eau jusqu'à une concentration de 20 %. Avant développement la plaque est lavée à l'eau courante pendant 1 heure, puis plongée dans une solution très diluée de nitrate d'uranyle pendant quelques minutes.

On développe ensuite avec ID 19 dilué 20 fois pendant 40 minutes. Les photographies publiées montrent que les traces α sont clairement visibles avec une densité de grains faible, tandis que les traces de fissions sont continues.

TRAVAUX DE GREEN ET LIVESEY (G²), action affaiblissante de la solution d'uranyle.

Green et Livesey imprègnent des plaques C2 avec une solution d'uranyle dans l'acide acétique 10 %.

Ils exposent les plaques une fois séchées et développent avec D 19 dilué 10 fois pendant 40 à 50 minutes.

Ces auteurs signalent que l'on peut obtenir différents degrés de discrimination protons- α -fission en faisant varier la concentration de la solution en ions UO_2 . Le tableau suivant, emprunté à leur mémoire, donne le résumé de ces variations.

% acétate d'uranyle	<i>Aspect après développement.</i>		
	<i>Protons</i>	<i>Alphas</i>	<i>Fission</i>
1 %	fin	distinct	très dense
2 %	aucune	faible	dense
3 %	aucune	très faible	dense

Ces auteurs interprètent cette désensibilisation comme une action affaiblissante due à la présence de l'uranium.

PICCIOTTO (P²) a donné de cet effet une interprétation toute différente. Il a montré que des solutions UO₂ jusqu'à une concentration de 10 % peuvent être incorporées à l'émulsion et que le développement des traces α se fait parfaitement bien avec ID 19 si le pH de la solution imprégnante est tamponné à 7.

Cet auteur ne nie pas l'existence d'un effet spécifique mais pense que la majeure partie de l'effet affaiblisseur obtenu par Green et Livesey était dû au pH bas de la solution d'imprégnation, l'acidité de cette solution étant la cause d'un affaiblissement du révélateur.

En résumé : les traitements spéciaux employés sont le plus souvent complexes, on agit à la fois sur l'image latente et sur le révélateur.

3. PROCESSUS EXPÉRIMENTAL POUR LE TRAITEMENT DES PLAQUES ILFORD D1.

Nos recherches ont porté sur deux points :

- a) modification du pH de la solution d'imprégnation
- b) modification du pH du révélateur ID 19.

Les premières traces de fissions ont été obtenues en imprégnant avec une solution de nitrate d'uranyle de 142 mgr d'U par cm³. Le pH était environ 1.

Dans ces plaques un grand effet de désensibilisation par suite de l'acidité était observé.

En comparant une plaque irradiée et une plaque développée sans irradiation, nous trouvions :

dans la plaque témoin : quelques traces de particules α très faibles, provenant des désintégrations survenues au cours du développement au moment où le bain du révélateur avait chassé la plus grande partie du sel d'uranyle et rétabli un pH suffisamment alcalin pour pouvoir agir,

dans les plaques irradiées : ces traces se retrouvaient accompagnées des traces de fissions, assez faibles, difficiles à discerner, que l'on reconnaissait à leur longueur de 25 à 30 μ et à une densité plus forte au centre.

Recherche d'une solution d'imprégnation.

Le nitrate d'uranyle a une solubilité de 56,08 gr de sel pour 100 gr de solution saturée à 25° (2,5 parties de sel pour 1 partie d'eau) (poids). La solution concentrée est acide par hydrolyse. L'addition de soude provoque la précipitation de l'uranate alcalin Na₂ U₂ O₇ (pyro-uranate).

En dissolvant le sel hexahydraté dans une solution 0,4 normale de citrate tertiaire de Na, nous avons trouvé qu'il était possible d'ajouter de la soude en solution normale sans provoquer la précipitation de l'uranium (formation d'un complexe organique entre les ions UO_2 et le citrate).

La figure 3 donne la variation du pH d'une solution contenant 30,0077 gr de nitrate d'uranyle hexahydraté pour 100 cm^3 de solution, en fonction de la quantité de soude ajoutée.

Le pH de 4,9 choisi pour l'imprégnation des plaques photographiques résulte d'un compromis. Il correspond à une concentration de 8,85 gr d'uranium par cm^3 , ce qui est plus du double de la concentration de l'acétate d'uranyle saturé utilisé par divers auteurs, et l'influence de l'acidité n'est plus gênante pour le développement. Si l'on augmente la concentration en uranium, l'acidité augmente. L'addition de soude provoque une nouvelle dilution de la solution.

Le pH a été déterminé à l'aide d'une électrode de verre à la température de 24° C et d'un potentiomètre à lampes: la précision des mesures est de 2 centièmes d'unité de pH, ce qui correspond à la largeur des cercles représentés sur le graphique.

Développement sélectif des traces de fission.

Nous n'avons pas pu obtenir des conditions favorables de discrimination en maintenant le développement habituel avec ID 19 dilué 3 fois et en changeant le pH de la solution d'imprégnation. Pour les pH de 2, 3 et 4, le développement est incomplet et les traces de fissions sont faibles.

Pour les pH supérieurs à 5 on obtient un développement intense des traces α .

Des conditions favorables de discrimination ont été obtenues en ajoutant de l'acide citrique M/10 au révélateur ID 19 dilué 3 fois pour abaisser son pH à 8,8 (3,5 cm^3 d'acide pour 10 cm^3 de révélateur). L'addition de 7,5 cm^3 d'acide acétique 1 % pour 10 cm^3 de révélateur donne un pH de 8,5 qui permet une discrimination équivalente.

Nous obtenons ainsi une méthode de discrimination apparentée à celle de Stevens.

METHODE

A. IMPRÉGNATION.

1. *Préparation*: 30 gr de nitrate d'uranyle $UO_2(NO_3)_2 \cdot 6 H_2O$ (Merck puriss.) sont dissous dans une solution de citrate de Na M/2,5 (35,712 gr de sel dans 250 cm^3) dans un ballon

jaugé de 100 cm³. On complète au trait après dissolution. La solution présente parfois une certaine opalescence. On fait passer sur un filtre gravimétrique. Le pH est de 1,84.

60 cm³ de soude caustique normale sont additionnés en 4 fois. Il se produit à chaque addition un précipité jaune orangé qui se dissout par agitation prolongée. La solution finalement obtenue est limpide, sans dépôt.

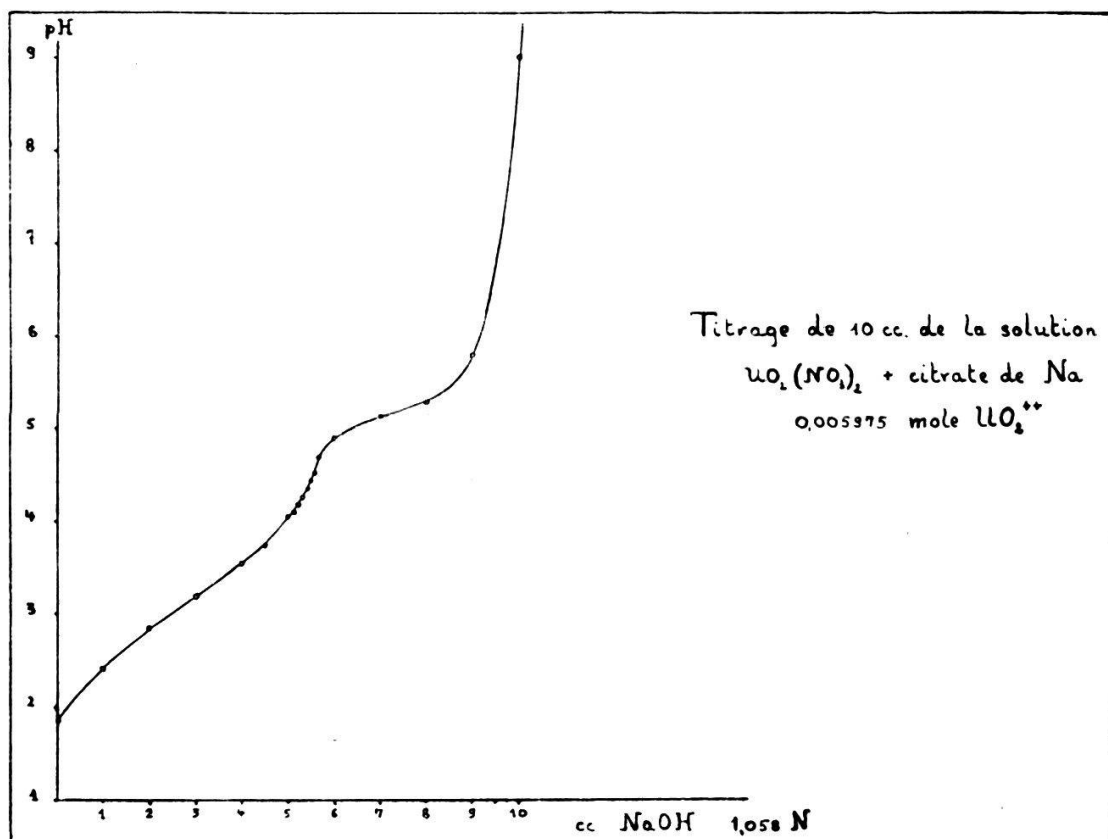


FIG. 3.

2. Bain d'imprégnation.

100 cm³ de la solution préparée sous 1 sont versés dans une cuvette de verre de format 9 × 12 cm, dans laquelle la plaque photographique D1 de format 7,5 × 2,5 cm, dont l'émulsion a une épaisseur de 50 μ, est placée horizontalement, la couche sensible tournée vers le haut. La plaque est soutenue par un porteur de bakélite placé contre le fond de la cuvette. Le dispositif est représenté par la fig. 4 et 5. La température est maintenue à 17 ± 1°.

La cuvette est ensuite placée sur le plateau mobile de l'appareil à agitation lente utilisé pour l'agitation des bains de développement et de fixage. Le plateau est entraîné par un moteur à

30 tours/min. Durée du bain : elle a été fixée à 2 h., après que des essais eurent montré qu'il n'y avait pas de différences sensibles à prolonger ce temps au delà.

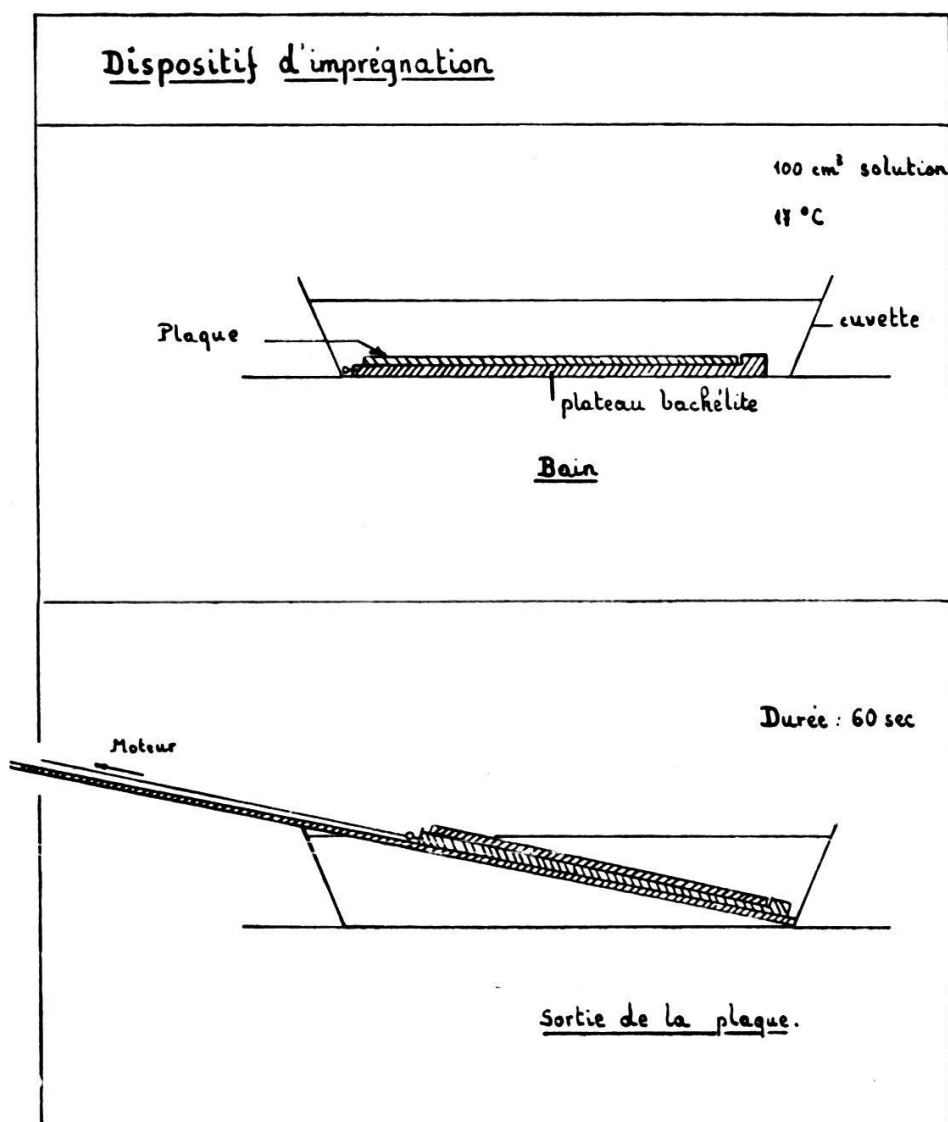


FIG. 4 et 5.

3. Séchage.

La façon dont on retire la plaque du bain a une grande importance pour la reproductibilité et l'uniformité de l'impregnation. Nous avons adopté le processus suivant :

La plaque, placée sur le plateau de bakélite de 8×3 cm, 0,5 cm d'épaisseur, est retirée par un moteur à mouvement très lent. Le plateau glissant sur un plan incliné selon le schéma 3. La durée de l'extraction est de 60 sec. pour une plaque de 7,5 cm.

Sitôt sortie, la plaque est déposée horizontalement sur un

support de porcelaine et introduite dans un dessiccateur contenant du CaCl_2 frais. On maintient un vide de quelques mm de Hg durant 2 heures. L'humidité relative à l'intérieur du dessiccateur tombe rapidement à 0 %.

B. IRRADIATION AUX NEUTRONS.

La plaque imprégnée est enfermée dans un porteur de carton de 1 mm d'épaisseur et enveloppée de papier noir. L'humidité relative de l'enceinte de paraffine est de 65 %. L'irradiation a lieu dans un local frais, où la température ne dépasse pas 20° C. Durée : 24 heures.

C. DÉVELOPPEMENT.

1. Préparation du révélateur :

15 cm³ de révélateur ID 19 dilué 3 fois sont pipetés dans un bécher de 25 cm³; on ajoute 11,5 cm³ d'acide acétique 1 %; un second bécher de même contenance est rempli du même mélange dilué d'un égal volume d'eau distillée.

2. Développement (type « en température ») (OCCHIALINI) (O¹).

1. Immersion dans le révélateur refroidi à 3° C (le bécher est entouré de glace fondante). Durée : 15 minutes.

2. Rinçage de la plaque avec le révélateur dilué de moitié.

3. Élévation lente de la température. La plaque recouverte d'une lame liquide de révélateur est placée dans une étuve bien humidifiée. La température s'élève jusqu'à 25,0° C. Elle est maintenue à cette valeur pendant 30 min. à $\pm 0,2^\circ$ C.

4. Stoppage acide dans un bain acétique 2 % à 3° C pendant 30 minutes.

5. Fixage en solution d'hyposulfite 30 % pendant 3 heures avec une forte agitation.

6. Durcissage acide (solution de 100 gr alun de potassium, 60 cm³ d'acide acétique glacial pour 1 l.). Durée : 30 minutes.

7. Lavage à l'eau courante. Durée : 1 heure.

8. Séchage de la plaque. Pour le séchage, la plaque est maintenue horizontale sur deux fils de fer et laissée une nuit dans l'atmosphère du local.

Deux photographies illustreront la discrimination obtenue en employant cette méthode.

La figure 11 (pl. IV) montre une trace de fission dans une plaque imprégnée au pH de 7,0 et développée par le révélateur habituel ID 19 dilué 3 fois (pH 10,4).

La figure 12 (pl. IV) montre une trace de fission dans une

plaque de pH 4,9 ayant subi le même temps d'irradiation et développée par le révélateur de pH 8,5 contenant l'acide acétique. Les photographies dont il est question (Pl. I, II, III) au chapitre 2 ont été obtenues par le même traitement.

4. INTERPRÉTATION DES RÉSULTATS OBTENUS.

L'examen de la planche IV et des plaques dans lesquelles ces vues ont été obtenues permet de faire la constatation suivante. La discrimination d'une particule fortement ionisante est améliorée par le sous-développement. Les traces de particules α sont affaiblies, tandis que la densité des traces de fission reste sensiblement constante.

La densité de la trace est une mesure du pouvoir ionisant de la particule considérée.

Dans le tableau suivant, nous résumons les différences de pouvoir ionisant d'un certain nombre de particules fortement ionisantes que l'on peut détecter par la méthode photographique.

<i>Particule</i>	<i>Energie</i>	<i>Charge</i>	<i>Masse</i>	<i>Pouvoir ionisant</i>	<i>Valeur relative</i>
Proton lent	2 MeV	+ 1	1	34 keV/ μ	0,17
α du Po	5,30 MeV	+ 2	4	196 keV/ μ	1
α du UI	4,15	+ 2	4	250 keV/ μ	1,28
Fragment léger de fission U	97 MeV	(10)	95	6,3 MeV/ μ	32
Fragment lourd de fission U	65 MeV	(11)	139	17 MeV/ μ	86

[d'après YAGODA (Y¹) p. 98]. Les pouvoirs ionisants ont été calculés à partir de la formule $\left| \frac{dE}{dR} \right| = 0,114 R^{-1/3}$ et les courbes de Lattes, Fowler et Cüer.

Le pouvoir ionisant est donné ici par la perte d'énergie cinétique par unité de parcours en μ dans l'émulsion.

Le pouvoir de discrimination de l'émulsion photographique sera illustré par la variation de la densité de grains correspondant à ces différentes intensités d'ionisation. Toutefois, le nombre de grains rendus développables par unité de parcours n'est pas susceptible de varier indéfiniment. Il atteint une limite lorsque tous les grains situés sur le parcours sont rendus développables. Un certain nombre de valeurs du nombre de grains par unité de parcours ont été publiées (Webb, Powell) pour des traces de différentes particules (mésons, protons, deutérons), dont le pouvoir d'ionisation varie fortement avec l'énergie.

Nous avons reproduit dans la figure 6 les données de POWELL (P³) concernant l'émulsion Kodak NT4, en reportant le nombre de grains par μ en fonction du logarithme de la perte d'énergie cinétique. En effet, nous avons pensé et vérifié que ces courbes ainsi dessinées présentent une certaine analogie avec les courbes caractéristiques de Hurter et Driffield utilisées en photographie, où l'on reporte la densité optique en fonction du logarithme de l'exposition.

Cette analogie n'est pas seulement fortuite, si l'on songe que la densité optique ($D = \log I_0/I$ $I_0 =$ intensité lumineuse incidente, $I =$ intensité lumineuse transmise par la plaque développée) est proportionnelle au nombre de grains rendus développables par l'irradiation lumineuse pour une quantité donnée d'énergie lumineuse absorbée par la couche photographique.

La figure 7 représente de même la courbe « caractéristique » des émulsions Ilford C2 pour un développement normal avec ID 19, 30 min. selon les données de Powell.

On voit que dans ces 2 types de plaques qui diffèrent par leur sensibilité aux faibles pouvoirs ionisants, le nombre de grains par μ ne varie pratiquement plus en dessus de 30 keV/ μ , c'est-à-dire que des protons très ralentis, des particules α et des fragments de fission sont indiscernables par la densité de grains si l'on opère un développement complet.

Effectivement, ces plaques ne peuvent pas être utilisées pour la discrimination α - fission sans traitement spécial.

Nous n'avons pas eu la possibilité de déterminer une courbe semblable pour les émulsions Ilford D 1. Toutefois, nous pouvons tenter par analogie une représentation schématique de la variation de la sensibilité de ces plaques. Nous avons trouvé qu'avec le développement normal ID 19 ¹/₃ les protons de recul de 2 MeV (parcours de 30 μ) provoqués par les neutrons rapides de la source ne sont pas visibles. Le seuil de sensibilité des D1 est donc supérieur à 30 keV/ μ ; d'autre part, pour un développement poussé, les traces α de l'uranium ont une densité proche de la densité maximum des traces de fission (planche IV). Nous utiliserons donc comme une représentation schématique approximative la courbe I de la figure 8. Le problème de la discrimination consiste à déplacer la partie linéaire de cette caractéristique de façon à faire apparaître une différence de densité plus considérable entre ces deux traces.

L'analogie citée plus haut avec les courbes de Hurter et Driffield peut être poussée plus loin et le principe d'une amélioration de la discrimination α -fission peut être trouvé dans l'étude des variations connues de ces courbes. La figure 9 tirée

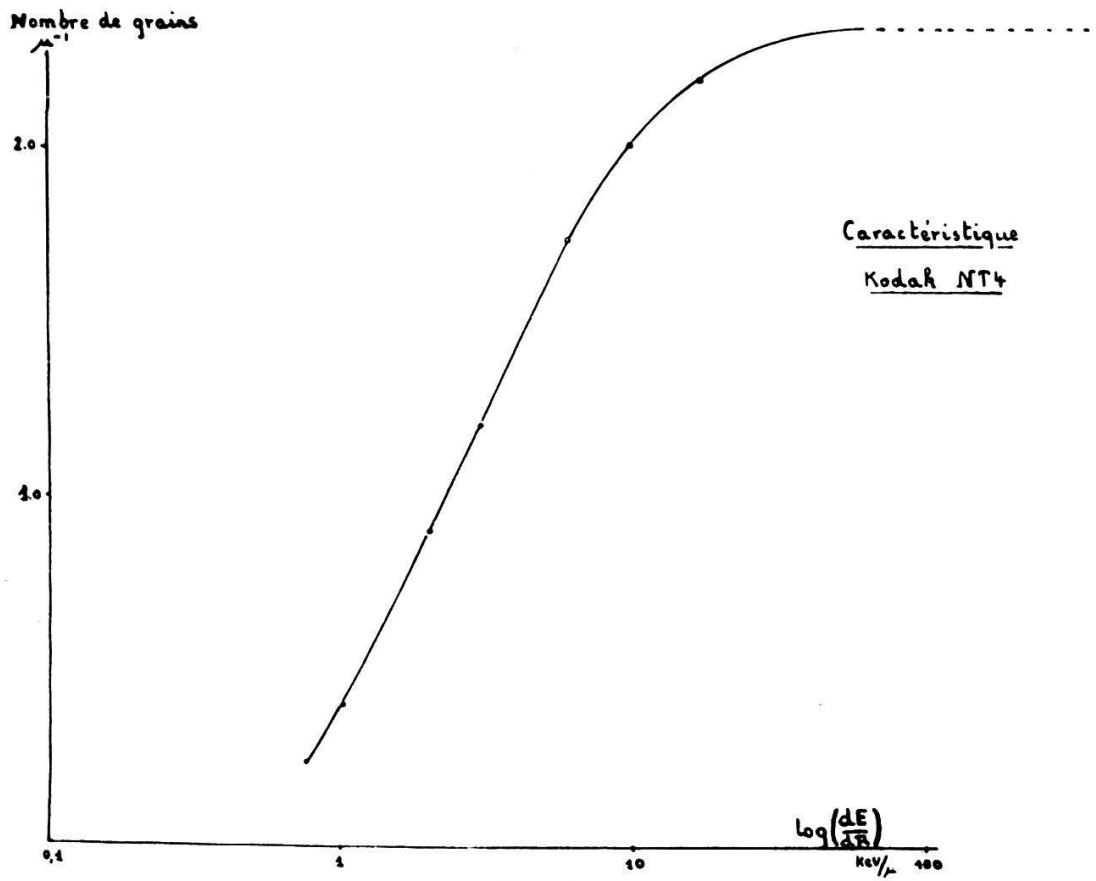


FIG. 6.

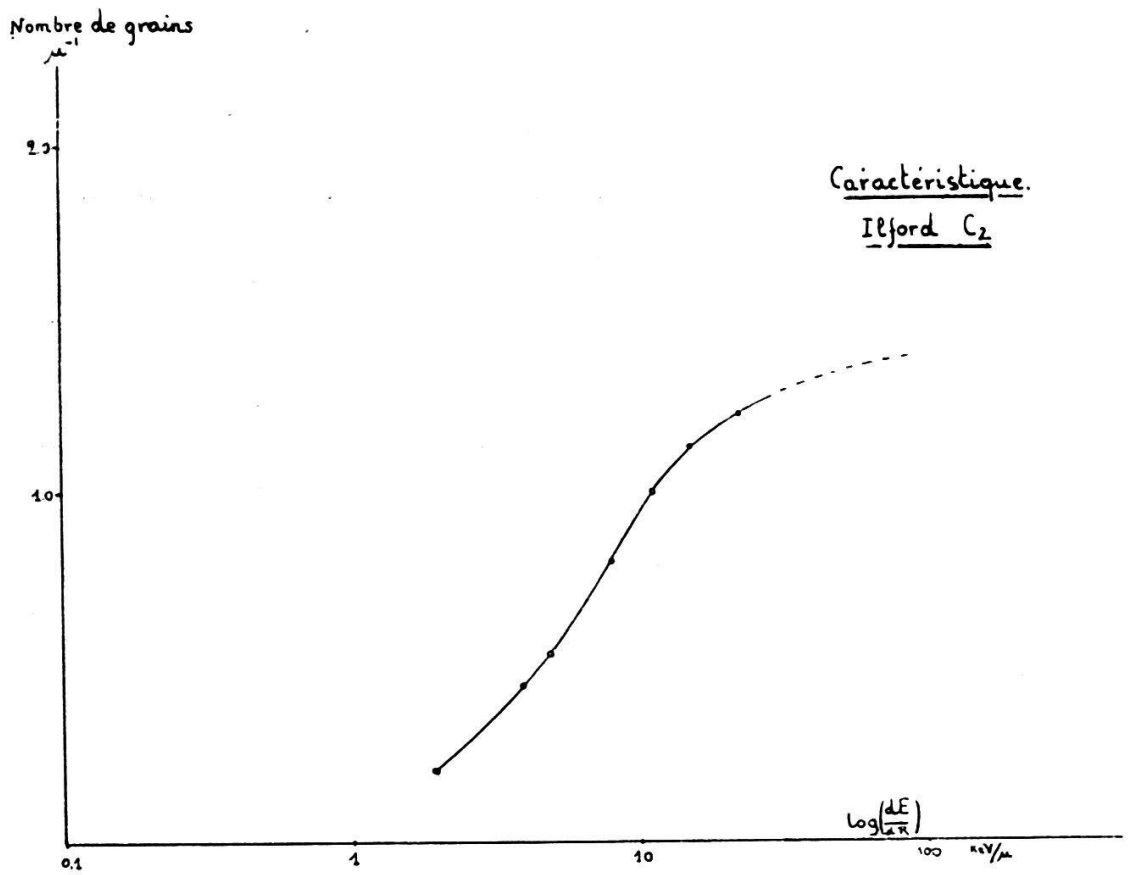


FIG. 7.

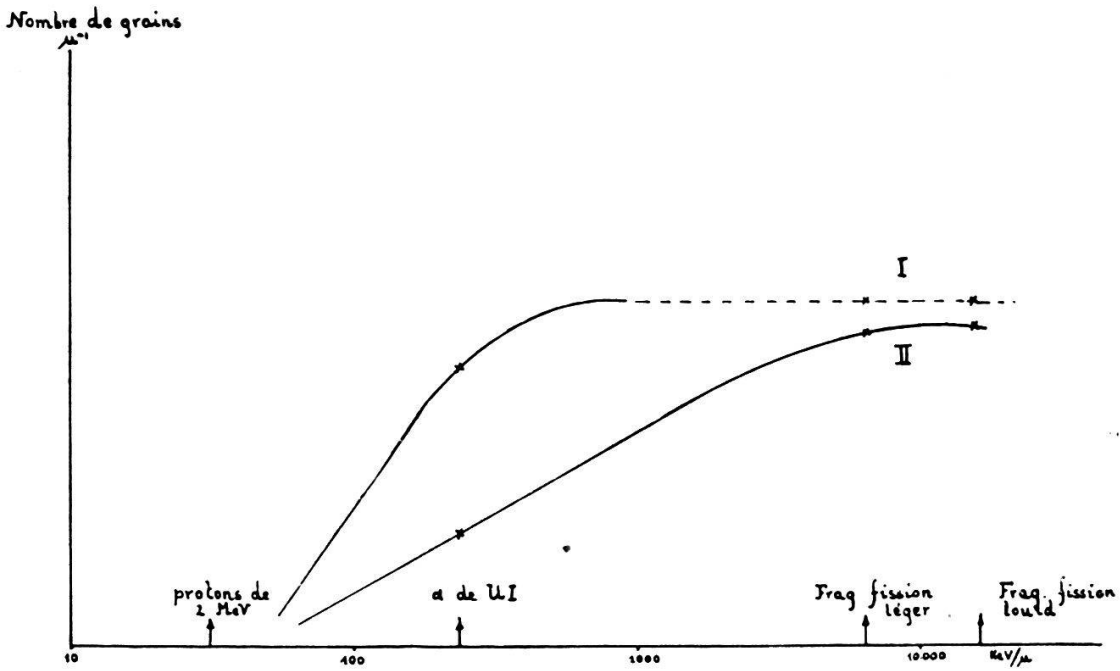


FIG. 8.

Présentation schématique de l'effet du sous-développement.
Plaques Ilford D1

I. Développement normal. II. Sous-développement.

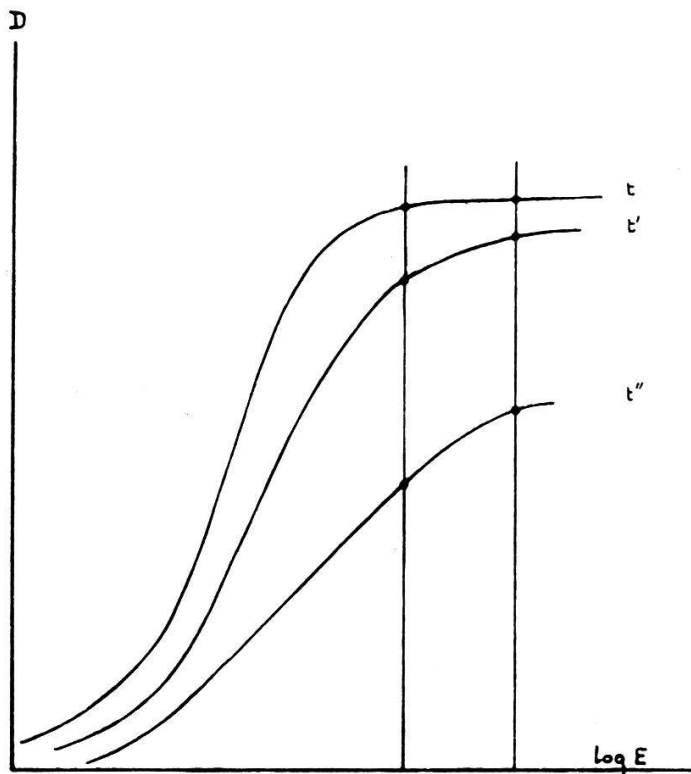


FIG. 9.

Courbes caractéristiques de Hurter et Driffield pour film Kodak
(tiré de K. MEES, Theory of the photographic Process.)

Densité en fonction de log. de l'exposition pour trois durées de développement différentes : $t = 12$ min. $t' = 7$ min. $t'' = 4$ min.

de K. Mees illustre une famille de courbes caractéristiques d'un film Kodak obtenues pour différents temps de développement.

Nous avons ajouté à cette figure deux droites verticales correspondant à des abscisses arbitraires, situées dans la région des fortes expositions. La figure 9 montre que la différence de noircissement entre les deux plages, qui est nulle lorsque le développement est maximum, augmente avec le sous-développement. Des changements du même type apparaissent pour toutes les autres techniques de sous-développement : dilution du révélateur, diminution du pH, abaissement de la température.

Nous constatons qu'un résultat comparable est obtenu dans les plaques nucléaires Ilford D1 pour la discrimination α -fission. La courbe schématique II de la figure 8 pourrait représenter la densité des traces obtenues par la méthode de discrimination indiquée.

Cette interprétation et ce mode de représentation sont tout à fait nouveaux. Nous pensons qu'ils pourront être utiles en permettant d'utiliser certains résultats connus de la technique photographique habituelle, pour l'amélioration des conditions de développement en photographies nucléaires.

En résumé : la discrimination des traces de fission est réalisée par un sous-développement contrôlé. Elle permet un comptage quantitatif des réactions de fission, malgré la présence dans la même plaque d'un nombre 5000 fois plus grand de particules α .

5. PROBLÈME DE L'ACTION AFFAIBLISSANTE DE L'URANIUM.

Une série d'investigations a été effectuée en vue de savoir si la présence des ions UO_2 dans la plaque avait une influence affaiblissante spécifique sur l'image latente. Un résultat semblable à celui de PICCIOTTO (*loc. cit.*) a été reproduit dans l'expérience suivante :

1. Plaques Ilford, Type C2 50 μ .

	Solution d'imprégnation		Développement
A	pH: 7,0	concentration: 13,00 gr de nitrate hexahydraté p. 100 cm ³ de sol.	I D 19 dilué 3 fois
B	pH: 3,0	concentration: 16,50 gr de nitrate hexahydraté p. 100 cm ³ de sol.	30 min. à 19° C.

La solution d'imprégnation de pH 7 a été préparée par adjonction de NaOH, à partir de 21,4572 gr de nitrate d'uranyle hexahydraté dissous dans 100 cm³ de citrate de Na M/2,5.

Résultats : Plaque A : traces denses Photographies fig. 13
 Plaque B : traces affaiblies » fig. 14
 (planche V)

2. Plaques Ilford, Type D1 50 μ .

N ^o	Imprégnation	pH	Concentration en gr. de nitrate/100 cm ³	Développement
139	30 min. à 18°	3,0	16,50	
141	30 min. à 18°	4,0	14,80	ID 19 dilué 3 fois
142	30 min. à 18°	5,5	13,70	40 min. à 19°
123	30 min. à 18°	7,0	13,00	

Résultats :

Nos 139 traces invisibles
 141 traces très faibles Photographies fig. 15, 16, 17
 142 traces faibles (planche V)
 123 traces faibles

La différence de sensibilité des deux types d'émulsions est illustrée par la différence de densité de grains sur les traces.

Nous constatons donc un affaiblissement des traces dans les plaques imprégnées en pH acide, aussi bien pour les C2 que pour les D1.

Bain en pH 8 avant développement.

L'influence de l'acidité de la solution d'imprégnation sur le révélateur peut être partiellement supprimée par un bain préliminaire de pH 8.

Pour étudier l'effet du pH indépendamment de l'uranium, le processus suivant a été employé :

1. Bain dans une solution tampon de même pH que les solutions d'uranyle (tampon acétate de Na M/10 + HCl M/10 de CLARK et LUBBS) pH : 1 — 2 — 3 — 4.

La durée du bain a été prolongée à 12 h., pour s'assurer que le pH de la gélatine s'équilibre si possible avec celui de la solution.

2. Irradiation à un flux extérieur de particules α (la plaque est placée durant 2 h. au-dessus d'une couche de nitrate de thorium cristallisé).

3. Bain dans une solution tampon de pH 8 (tampon de Na₂ H PO₄ + K H₂ PO₄ de Sørensen). Durée : 12 heures.

Deux plaques témoins sont développées en même temps. L'une et l'autre sont irradiées, la première subit avant développement le bain tampon de pH 8, la seconde est développée sans traitement préliminaire.

<i>Imprégnation</i>	<i>Lavage avant le développement</i>	<i>Résultats</i>
12 h. pH 1,0	pH 8 12 h.	traces très faibles
pH 2,0	id.	traces faibles
pH 3,0	id.	traces denses
pH 4,0	id.	traces denses
témoin (pas d'imprégnation)	id.	traces denses
témoin (pas d'imp.)	témoin (pas de lavage)	traces denses

Remarques : l'influence du fading survenant pendant que la plaque est immergée 12 h. dans la solution de pH 8 n'est pas négligeable. Elle correspond à une petite différence de densité des traces des 2 plaques témoins.

Néanmoins on peut admettre que le fading représente un facteur d'affaiblissement identique pour toutes les plaques ayant subi le traitement en pH 8, et que les différences constatées doivent provenir d'autres raisons.

Les résultats de cette expérience apportent une confirmation aux conclusions précédentes. Il est possible de développer des traces α normalement dans une émulsion ayant subi un bain d'imprégnation à des pH de 4 et 3 si l'on fait précéder le développement d'un bain neutralisant en pH 8.

Pour un pH de 1 et de 2, l'expérience n'a pas pu prouver que cette restauration était possible, les traces développées restent faibles.

Influence des ions UO_2 .

La même expérience a été répétée en irradiant avec un flux de particules α

a) des plaques imprégnées de solution tampon de pH 2, 3, 4, et 5 (tampon acétate de Na + HCl);

b) des plaques imprégnées de solution de nitrate d'uranyle + citrate de Na de même pH, et de concentration constante.

Chaque série est ensuite plongée dans un bain de pH 8 pendant 12 h. et toutes les plaques sont développées en même temps, avec du révélateur ID 19 dilué 3 fois, 30 min. à la température de 21,0° C.

Les résultats sont résumés dans le tableau suivant :

a) <i>Imprégnation par une solution d'uranyle</i>	<i>Aspects des traces du thorium</i>
pH 2,0	nul
pH 3,0	très faible
pH 4,0	très faible
pH 5,0	dense

bain tampon en pH 8, 12 heures avant développement.

b) *Imprégnation par solution tampon inactive* *Aspects des traces du thorium*

pH 2,0	bain tampon en	faible
pH 3,0	pH 8, 12 heures	dense
pH 4,0	avant développe-	dense
pH 5,0	ment.	dense

Nous constatons que le bain en pH 8 est capable de restaurer un développement normal pour les plaques ayant subi le traitement par la solution d'acétate + HCl, mais que pour les plaques ayant subi un traitement de même durée par la solution d'uranyle de même pH, le développement n'est pas restauré par ce traitement (fig. 18, 19, 20, pl. VI).

Il semble donc bien qu'il y ait une cause d'affaiblissement liée à la présence de l'uranium et indépendante de l'effet affaiblisseur du pH.

CHAPITRE 5. — OBSERVATION ET COMPTAGE DES
TRACES DE LA REACTION $^{10}\text{B} (n, \alpha) \text{}^7\text{Li}$.

1. GÉNÉRALITÉS.

Les émulsions Ilford C2 de 100 μ chargées de bore sous forme de borate de Na contiennent actuellement 0,023 gr. de bore par cm^3 . Elles présentent une sensibilité aux particules ionisantes égale au type non chargé (seuil à 1,3 keV/ μ), mais sont plus sensibles au développement du fait de l'alcalinité du borax.

Leur emploi a été précisé dans ce laboratoire par M. Klément (CH. HAENNY et KLÉMENT, H¹). Pour les irradiations effectuées par M. Klément, la plaque était placée à une distance de 10 cm. Cette épaisseur protège complètement la plaque du voile des rayons γ . Nous avons utilisé le même montage mais en réduisant l'écran de Pb à 5 cm (cylindre de Pb entourant la source) et en rapprochant les plaques à 9 cm de celle-ci.

A cette distance et pour un temps d'irradiation de 6 h., le voile est déjà considérable, dans les conditions de développement habituelles.

2. RÉDUCTION DU VOILE γ ¹.

Nous sommes arrivé à un résultat pratique utilisable dans

¹ M. P. Lerch a effectué sur ce sujet un travail de diplôme auquel une partie des conclusions données ici sont empruntées. Nous le remercions pour l'amabilité avec laquelle il a accepté de discuter ses résultats au cours de son étude.

le cas de nos expériences, mais nous ne considérons pas que la question soit épuisée par ces recherches. Le procédé est encore un sous-développement; le révélateur est affaibli par l'addition de 7 cm³ d'acide acétique 1 % par 10 cm³ de révélateur, immédiatement avant l'emploi.

Une étude du voile γ , des traces de protons de recul et des traces de particules α de la réaction du bore pour un sous-développement de plus en plus grand obtenu en acidifiant le révélateur, nous a amené aux conclusions suivantes :

1. Le voile γ est réduit plus facilement que les traces α . Pour un pH de 8,45 les traces α sont encore continues alors que le voile a disparu.

2. Les traces de protons sont plus affaiblies que les traces α . Quand le pH passe de 9,6 à 8,45, la densité de grains sur les traces de protons diminue de moitié, alors que les traces α sont inchangées.

Les conditions de développement sont maintenues identiques en ce qui concerne la température (0° puis 25,0° C.), la durée des bains et du temps à l'étuve et la succession des opérations décrites au § 3.

Ce traitement a permis d'observer les traces de la réaction du bore sans ambiguïté, en dehors des cas signalés ci-dessous. La réduction du voile γ est nette. Les plaques sont claires, moins colorées (défaut fréquent dans le développement des plaques Ilford C2 chargées de bore).

3. CAUSES D'ERREUR DANS LE COMPTAGE DES TRACES DE LA RÉACTION DU BORE.

4 causes doivent être envisagées :

a) La réaction $^{14}\text{N} (n, p) ^{14}\text{C}$ produisant des traces de protons de 8 μ indiscernables des traces $\alpha + \text{Li}$. Compte tenu de l'abondance de l'azote dans la gélatine (0,061 gr/cm³) et de la section efficace de la réaction (1,3, 10⁻²⁴ cm²) le calcul donne une correction de 0,3 %.

b) La réaction des neutrons rapides avec l'hydrogène produisant des traces de protons de recul, dont certains peuvent être confondus avec les traces de bore. Compte tenu de la fréquence des protons de recul observés, ayant un parcours beaucoup plus long, cette correction est de l'ordre de 0,2 %.

c) Les traces de bore qui préexistent dans la plaque par suite de son irradiation aux neutrons cosmiques entre le moment de la fabrication et le moment de l'emploi.

Ces traces sont automatiquement éliminées par la détermination de l'effet cadmium. On ne prend en considération que la

différence entre le nombre de traces provoquées par l'irradiation sans Cd et avec Cd.

d) Des traces de la réaction du bore peuvent être manquées parce qu'elles sortent en partie dans le verre ou dans l'air aux limites de l'émulsion et que le fragment de la trace visible dans l'émulsion est indiscernable d'un grain du voile.

On établit par le calcul que la fraction des traces de longueur L qui sont entièrement contenues à l'intérieur de la couche d'épaisseur e est égale à

$$1 - L/2e$$

Comme $L = 6 \mu$, $e = 100 \mu$, nous trouvons qu'une fraction de 3 % des traces de bore sortent de la couche. Sur ce nombre, celles qui ont une longueur dans l'émulsion supérieure à 3μ sont encore visibles. Nous considérons donc comme une limite supérieure la valeur de 1,5 % de perte pour les traces sortantes.

En définitive, le nombre total de traces comptées (10 000) étant connu avec une incertitude de 1 % due à la statistique, nous augmenterons ce nombre de 1,5 % pour tenir compte des pertes et nous introduirons une incertitude totale de ± 3 % sur le nombre compté, pour tenir compte de l'ensemble des causes d'erreur mentionnées.

4. INHOMOGÉNÉITÉS DE RÉPARTITION DU BORE DANS LES PLAQUES.

Technique de comptage : Equipement : objectif immersion 1/12. Oculaire Huyghens périplan $8 \times$. Echelle micrométrique oculaire, 100 divisions correspondent à $81,6 \pm 0,3 \mu^1$ dans le plan-objet. Diamètre du champ : 120μ .

10 champs sont examinés successivement en ligne, puis, après un déplacement latéral, les 10 champs voisins et ainsi de suite en va et vient sur un carré de 100 champs. Une telle surface constitue 1 domaine.

Nous avons exploré ainsi 10 domaines sur la surface d'une plaque C2 + B, 100μ irradiée pendant 6 h. Les 10 domaines sont répartis comme suit sur la plaque de $2,5 \times 3,0$ cm. (fig.10).

Le but de cette exploration en différents points est de déceler d'éventuelles inhomogénéités dans la répartition du bore, qui auraient pour effet de fausser le résultat du comptage si celui-ci était fait à un seul endroit.

Les bords de la plaque sont intentionnellement évités parce qu'ils présentent souvent des irrégularités de développement.

Le tableau (p. 229) donne les résultats des comptages. Le

¹ L'étalonnage est effectué en plaçant sur le porte-objet un réseau ayant 500 traits par mm.

nombre de champ ayant x traces est indiqué pour chaque domaine en fonction de x .

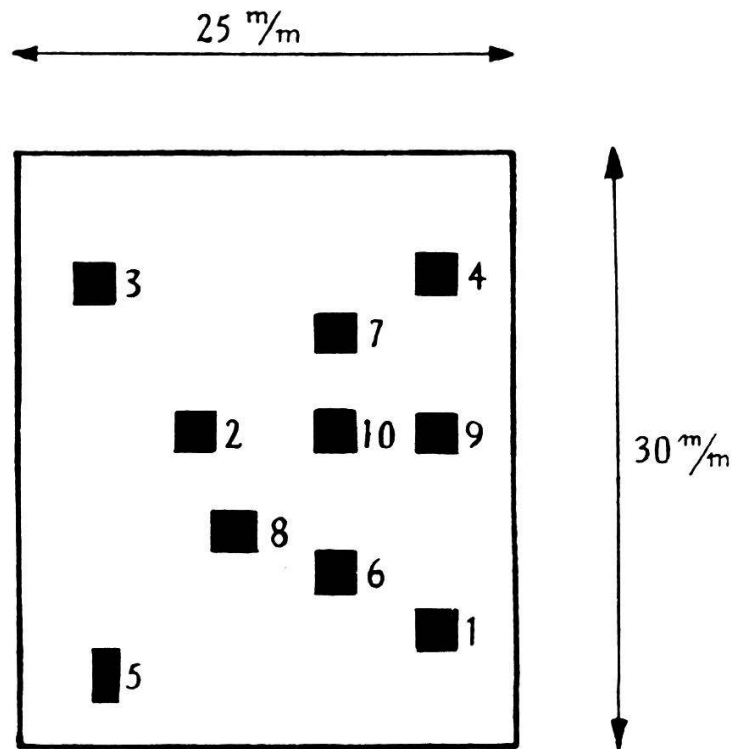


FIG. 10.
Position des 10 domaines explorés sur la plaque C2 + bore.

Les moyennes arithmétiques des 10 domaines sont les suivantes :

N° 1	moyenne : 11,12 traces par champ		
2	11,02	»	»
3	10,94	»	»
4	10,92	»	»
5	10,70	»	»
6	11,20	»	»
7	10,48	»	»
8	11,30	»	»
9	10,69	»	»
10	11,11	»	»

Nous avons étudié la distribution statistique de ces moyennes. Si la répartition du bore est homogène, le nombre de traces par champ est une grandeur statistique qui doit fluctuer selon la loi de Poisson.

$$P(x) = \frac{e^{-m} \cdot m^x}{x!}$$

$P(x)$ = probabilité de x traces par champ
 m = paramètre de la formule de Poisson.

Si les résultats des 10 domaines représentent bien 10 séries de 100 valeurs indépendantes obtenues au hasard parmi une population distribuée selon la loi de Poisson, les moyennes arithmétiques des séries doivent être distribuées « normalement » autour de la valeur m du paramètre de Poisson avec une déviation standard $\sigma = \sqrt{\frac{m}{100}}$. le 50 % des valeurs devant être contenues dans les limites $m \pm 0,674 \sigma$. En utilisant pour m la valeur approchée \bar{x} obtenue en faisant la moyenne générale des 1000 champs observés, nous arrivons aux limites suivantes pour \bar{x}_i : moyenne des séries de 100 champs.

$$\bar{x}_i = 10,95 \pm 0,22$$

Les valeurs indiquées montrent que cette répartition est effectivement réalisée.

Nous avons également étudié l'accord entre les résultats de chaque domaine et la loi de distribution de Poisson calculée dans chaque cas en prenant pour m la valeur particulière \bar{x}_i de la moyenne du domaine.

Dans la fig. 21¹, nous avons reporté les histogrammes correspondant aux résultats du comptage. Les lignes pointillées correspondent à la distribution de Poisson calculée. On peut contrôler la concordance entre fréquences calculées et observées par la méthode du test de χ^2 .

$$\chi^2 = \sum \frac{(e - o)^2}{e} \quad \begin{array}{l} e = \text{fréquence calculée} \\ o = \text{fréquence observée} \end{array}$$

La valeur de χ^2 est d'autant plus grande que l'accord est moins bon. La limite significative de χ^2 dépend du nombre de degrés de liberté (= nombre de fréquences — 1).

Appelons χ_{lim}^2 la valeur de χ^2 qui ne doit être dépassée que dans le 5 % des cas.

Les tables de la distribution de χ^2 donnent les valeurs suivantes

nombre des degrés de liberté	χ_{lim}^2 (P = 0,05)
14	23,685
15	24,996
16	26,296
17	27,587

¹ p. 230.

Le nombre des degrés de liberté est 16 pour les domaines 1, 2, 3, 9, 10; 14 pour les domaines 5, 6 et 8; 17 pour le domaine 4 et 15 pour le domaine 7.

Les valeurs de χ^2 étant toutes inférieures au χ_{lim}^2 calculé pour le nombre de degrés de liberté correspondant (tableau 5), nous en concluons que les désaccords entre les fréquences observées et celles calculées au moyen de la loi de Poisson ne sont pas significatifs.

Exemple du calcul de χ^2 pour le domaine N° 8.

$$\bar{x} = 11,30 \quad P(x) = \frac{e^{-11,30} \cdot (11,30)^x}{x!}$$

x	P(x) 10 ²	e	o	e - o	(e - o) ²	$\frac{(e - o)^2}{e}$
4	0,84	1	0	1	1	1,00
5	1,90	2	1	1	1	0,50
6	3,50	3	1	2	4	1,33
7	5,74	6	4	2	4	0,66
8	8,46	8	8	0	0	0,00
9	10,0	10	11	1	1	0,10
10	12,1	12	15	3	9	0,75
11	11,95	12	15	3	9	0,75
12	11,25	11	13	2	4	0,36
13	10,0	10	13	3	9	0,10
14	8,05	8	9	1	1	0,12
15	6,06	6	5	1	1	0,17
16	5,42	5	0	5	25	5,00
17	2,85	3	3	0	0	0,00
18	1,78	2	2	0	0	0,00
19	1,05	1	0	1	1	1,00
		100	100			11,84

$$\chi^2 = 11,84 \quad \text{Nombre des degrés de liberté : } 15$$

$$\chi_{\text{lim}}^2 = 24,996$$

Notre conclusion est donc qu'il n'y a pas lieu de tenir compte d'inhomogénéité de répartition du bore dans la zone de la plaque étudiée.

La détermination du nombre total de réactions du bore par cm² sera traitée dans le chapitre sur la détermination de la section efficace.

x =	1	2	3	4	5	6	7	8	9	10	11	12	13	14	15	16	17	18	19	20	21	
N° du domaine																						
1	0	0	0	0	1	4	6	7	13	12	19	7	10	10	6	3	1	0	0	1	0	100
2	0	0	0	2	2	6	6	4	10	22	7	14	9	9	3	3	0	1	1	1	0	100
3	0	0	0	0	0	4	7	11	13	12	13	8	6	12	3	4	4	3	0	0	0	100
4	0	0	0	1	0	2	9	7	14	18	10	10	9	10	4	0	2	3	0	0	1	100
5	0	0	0	0	2	6	9	9	10	15	12	10	8	7	5	4	1	1	1	0	0	100
6	0	0	0	0	0	2	4	7	10	18	18	15	5	8	7	1	4	0	0	1	0	100
7	0	0	0	0	2	1	7	13	14	13	19	11	10	4	2	2	0	0	0	0	0	100
8	0	0	0	0	1	1	4	8	11	15	15	13	13	9	5	0	3	2	0	0	0	100
9	0	0	0	0	1	1	4	12	14	21	11	13	13	3	4	1	2	0	0	0	0	100
10	0	0	0	0	1	3	4	7	12	10	14	20	9	6	8	3	1	0	1	0	1	100
Total				3	10	30	60	85	121	156	138	121	92	58	47	21	20	10	3	3	2	1000

TABLEAU.

Résultats du comptage.

Nombre de champs ayant x traces dans chaque domaine.

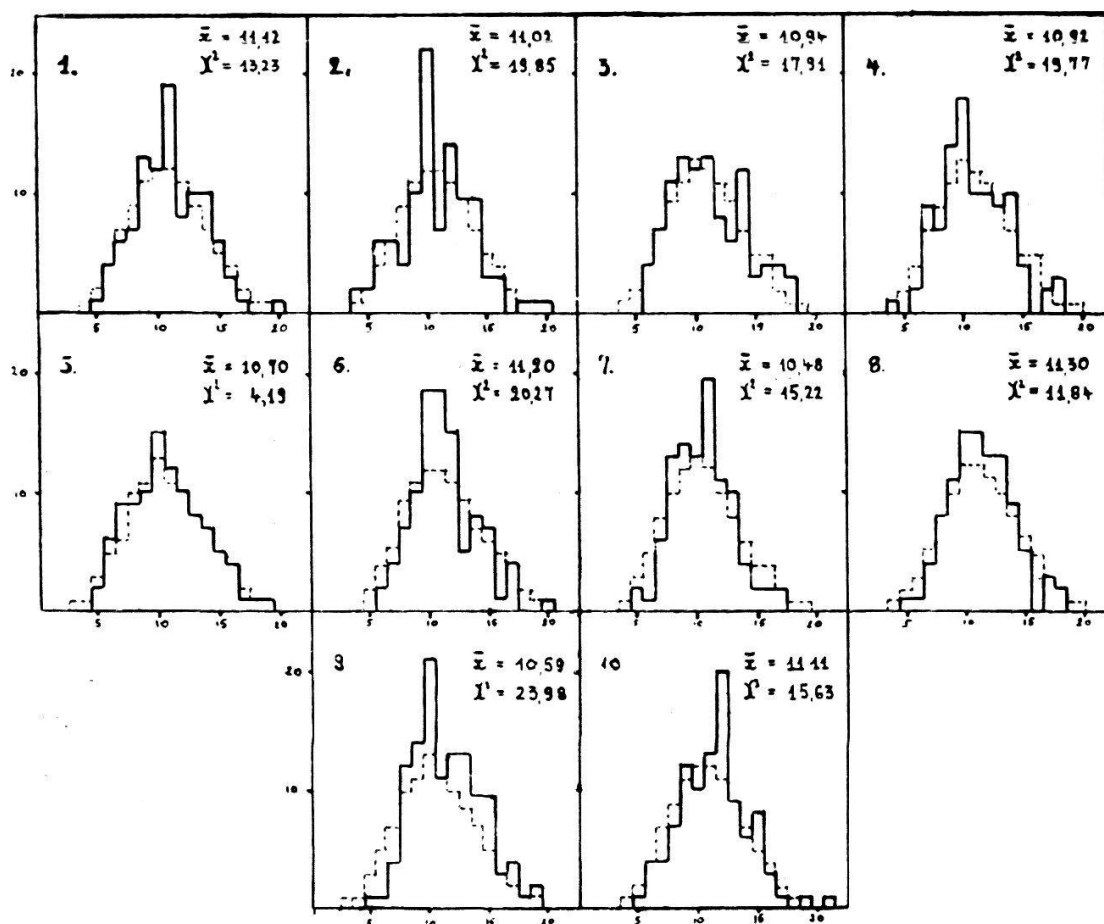


FIG. 21.

CHAPITRE 6. — DOSAGE DE L'URANIUM DANS LA PLAQUE

1. TEST D'EXTRACTION.

Le sel d'uranyle étant fortement soluble dans l'eau, il est possible d'épuiser la gélatine en la traitant par l'eau distillée d'une façon répétée.

Des tests d'extraction ont tout d'abord été effectués de la façon suivante :

2,0 cm³ de solution sont déposés sur la plaque photographique à l'aide d'une microburette. Une prise de même volume est utilisée pour un dosage témoin. L'extraction est effectuée en 10 lavages successifs, la plaque étant agitée avec 25 cm³ d'eau pendant 10 min., l'eau de lavage recueillie. Les 250 cm³ sont ensuite ramenés à 50 cm³ par évaporation.

Le dosage gravimétrique de l'uranium est ensuite effectué par la méthode de Treadwell; on précipite l'uranate d'ammonium à chaud en présence d'un excès d'ions NH₄ par l'ammo-

niaque 0,1 N¹. On calcine le précipité à 950° C et on pèse sous forme de U₃O₈.

Le tableau suivant donne un résultat de ce test :

<i>Volume déposé</i>	<i>Expérience</i>	<i>Poids U₃ O₈ trouvé</i>
0,200 ± 0,005 cm ³	extraction	22,1 ± 0,4 mg.
0,200 ± 0,005 cm ³	extraction	22,0 ± 0,4 mg.
0,200 ± 0,005 cm ³	test	21,8 ± 0,4 mg.
0,200 ± 0,005 cm ³	test	22,5 ± 0,4 mg.

La moyenne des deux extractions diffère ici de — 0,1 mg. de la moyenne des deux tests, mais cette différence n'est pas significative.

2. DOSAGE DES PLAQUES IMPRÉGNÉES.

Le processus d'imprégnation a été décrit dans le chapitre III. La plaque une fois sortie du bain d'imprégnation et séchée, présente une concentration en uranium beaucoup plus uniformément répartie en profondeur que dans le cas du test réalisé sous 1. Le rendement de l'extraction réalisée comme sous 1 est alors inférieur, ce qui a été contrôlé de la façon suivante. Immédiatement après son imprégnation et son séchage, la plaque est placée sous un compteur de Geiger-Muller, à paroi de 3,08 mg. par cm².

La plaque est fixée horizontalement, sa surface à 2,1 mm. de la fenêtre circulaire du compteur (diamètre de la fenêtre : 28,0 mm), dans des conditions géométriques reproductibles. La tension de travail est de 1800 volts, les lectures sont faites à l'aide d'une échelle de 64. Le mouvement propre est de l'ordre de 28 cpm.

L'activité observée résulte essentiellement de l'émission β de UX₂, dont le spectre très dur a son maximum à 2,3 MeV et un coefficient d'absorption massique de $\frac{1}{94}$ mg⁻¹ cm².

Après l'extraction, on observe à nouveau l'activité dans la même disposition géométrique. Une estimation a montré que la variation de la self-absorption par la couche photographique, résultant de l'extraction de l'uranium n'entraîne pas une correction appréciable. Les activités avant et après extraction peuvent donc être considérées en bonne approximation comme

¹ Il y a une difficulté à précipiter l'uranate en présence du citrate. Le précipité se forme mal ou même n'apparaît pas. Nous avons détruit le citrate par H₂SO₄, aux fumées blanches, pendant 2 à 5 h. On neutralise par l'ammoniaque avant de précipiter.

proportionnelles à la quantité d'uranium contenue dans la couche.

Le tableau suivant donne pour 5 plaques photographiques Ilford D1 imprégnées de la solution mentionnée au § 3, la surface totale de l'émulsion, le poids U_3O_8 obtenu après extraction et calcination (en mg), le poids d'uranium (en mg) par cm^2 (en mg) l'activité initiale et l'activité après extraction.

Surface en cm^2	Poids U_3O_8 total en mg	Poids U_3O_8 en mg par cm^2	Activité en cpm initiale	Activité en cpm finale
$19,50 \pm 0,03$	$21,1 \pm 0,4$	$1,08 \pm 0,03$	1600 ± 10	113 ± 3
$19,27 \pm 0,04$	$18,2 \pm 0,4$	$0,95 \pm 0,02$	1620 ± 10	127 ± 3
$19,39 \pm 0,04$	$19,6 \pm 0,4$	$1,01 \pm 0,02$	1652 ± 10	130 ± 4
$19,35 \pm 0,09$	$19,4 \pm 0,4$	$1,00 \pm 0,03$	1619 ± 10	131 ± 4
$19,29 \pm 0,06$	$19,3 \pm 0,4$	$1,00 \pm 0,02$	1610 ± 10	140 ± 4

L'incertitude totale résulte de l'erreur de pesée d'une part et de l'erreur sur la mesure de surface d'autre part.

Les mesures de surface ont montré des variations de dimensions suivant les plaques de $2,5 \times 7,6$ cm.

Largeur :	$25,45 \pm 0,02$	Longueur :	$76,00 \pm 0,02$
	$25,46 \pm 0,02$		$75,9 \pm 0,10$
	$25,20 \pm 0,02$		$75,97 \pm 0,02$
	$25,50 \pm 0,01$		$76,00 \pm 0,02$
	$25,43 \pm 0,06$		$75,80 \pm 0,02$
	$25,65 \pm 0,03$		$75,98 \pm 0,02$
	$25,46 \pm 0,02$		$75,99 \pm 0,02$

Le rendement de l'extraction, déterminé à partir de l'activité observée sur les plaques traitées, est en moyenne de

$$92 \pm 2 \%$$

D'autre part l'imprégnation conduit à des écarts de $\pm 5 \%$ sur la densité superficielle de l'uranium.

Ces deux incertitudes sont parmi les plus graves causes d'erreur rencontrées dans ce travail et elles limitent la précision de la détermination de la section efficace.

Pour les restreindre le plus possible, nous avons opéré comme suit :

Après l'imprégnation et le séchage, la plaque qui servira à la mesure est placée sous le compteur, dans l'obscurité. La même plaque est ensuite irradiée aux neutrons, puis développée et observée au microscope. On dispose ainsi du taux de comptage de la plaque, ce qui permet de déterminer la concentration superficielle par comparaison avec les valeurs

obtenues sur les plaques ayant subi l'extraction. On ne peut pas bien entendu faire l'extraction sur la plaque qui sert à la mesure.

Pour obtenir la quantité exacte d'uranium, nous multiplierons le poids trouvé par l'inverse du rendement soit $1,09 \pm 0,02$. L'erreur totale sur la détermination de la quantité d'uranium résulte d'une part des écarts de $\pm 5\%$ constatés sur les résultats des pesées et d'autre part de l'incertitude de 2% sur la valeur du rendement.

Dans les deux cas, il s'agit de la déviation standard sur les mesures individuelles. Cette incertitude totale est donc de 7% .

CHAPITRE 7. — DÉTERMINATION DU RAPPORT DES SECTIONS EFFICACES ¹

1. FADING DES TRACES DE FISSION.

Ce phénomène, qui limite la durée d'irradiation utile, a été mis en évidence par l'expérience suivante.

4 plaques, imprégnées simultanément dans la solution du § 5. sont irradiées pendant 24 heures, 48 h., 72 h. et 97 h. 30 min. (plaques D1, $50\ \mu$, format $2,5 \times 3,75\ \text{cm}$).

Comptage des traces de fission :

Équipement : objectif immersion 1/12 grossissement $100\times$. Oculaire Huyghens $6\times$ avec échelle micrométrique. Diamètre du champ : $140\ \mu$.

Technique de comptage : on explore la plaque transversalement en la déplaçant au moyen d'une des vis micrométriques. On compte le nombre de traces dans une bande transversale, dont les dimensions sont $2,5\ \text{cm} \times 0,014\ \text{cm}$.

Résultats du comptage :

<i>Durée d'irradiation</i>	<i>Nombre de traces par cm^2</i>	<i>Calculé</i>
24 h.	420 ± 15	(420)
48 h.	815 ± 21	(840)
72 h.	1220 ± 21	(1260)
97 h. 30 min.	1200 ± 20	(1705)

On voit sur la figure 22 que le nombre des traces de fission n'est pas proportionnel à la durée d'irradiation. Pour 48 h. la différence n'est pas significative, mais au delà de 72 h. on

¹ Voir aussi une communication à la Société suisse de Physique (H³).

observe que la courbe tend vers une saturation, il se crée autant de traces nouvelles qu'il en disparaît.

Pour cette raison, nous avons limité à 24 h. la durée d'irradiation utilisée pour la comparaison des sections efficaces.

L'effacement se manifeste également par une diminution de la densité de certaines traces. Les trois photographies ci-dessous montrent des traces de fission affaiblies, dans les plaques de 24 h., 48 h., 72 h. (fig. 23, 24, 25, pl. VII).

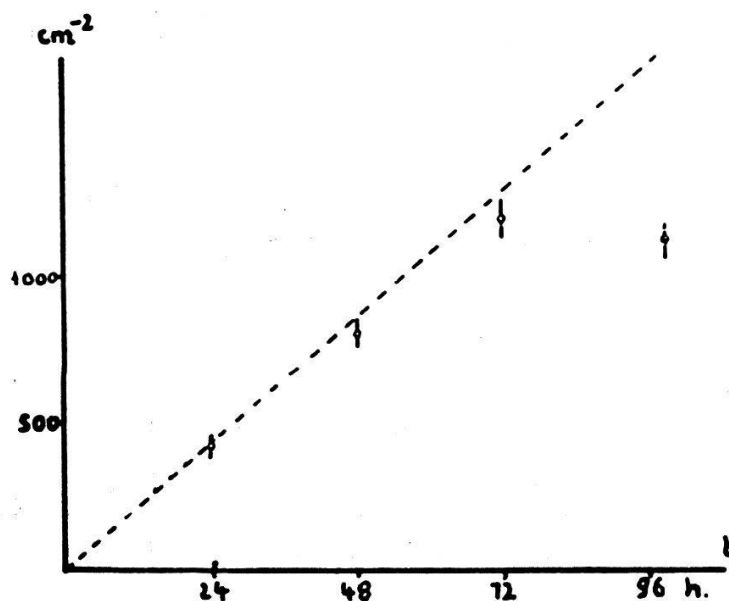


FIG. 22.

Ces cas présentent des difficultés d'identification, du moins dans les plaques de 48 h. et de 72 h. Avec 24 h. d'irradiation, le voile de fond est suffisamment réduit pour qu'une trace affaiblie comme le montre la photographie 23 soit détectée sans ambiguïté.

2. COMPARAISON BORE-URANIUM.

Elle a été réalisée à l'aide des 4 plaques suivantes :

A : Une plaque D1 $50\ \mu$ imprégnée de la solution $\text{UO}_2(\text{NO}_3)_2$ de pH 4,89, format $7,5 \times 2,5$ cm.

Placée sous le compteur de Geiger-Muller elle donne un taux de comptage de 1653 ± 13 coups par min., dans les conditions décrites au § 2.

Sa concentration en uranium déterminée par comparaison avec les autres plaques imprégnées est de $0,92 \pm 0,07$ mg U/cm².

Cette plaque est coupée en deux parties :

A₁ : irradiée pendant 24 h. dans le porteur de carton.

A₂ : irradiée pendant 24 h. sous un écran de Cd de 1 mm d'épaisseur.

B : Une plaque C₂ de 100 μ, chargée de bore. Sa concentration en bore est de $0,23 \pm 0,01$ mg B/cm², l'erreur indiquée provenant de la précision donnée par la fabrique pour la contenance en bore des émulsions chargées et d'une incertitude de 2 % sur l'épaisseur de l'émulsion constatée par des mesures d'épaisseur.

Cette plaque est coupée en deux parties :

B₁ : irradiée pendant 6 h. dans la même disposition géométrique que A₁.

B₂ : irradiée pendant 6 h. sous écran de Cd, dans la même disposition géométrique que A₂.

Développement : le processus de développement a été traité en détail dans le § 3. Les plaques chargées d'uranium sont développées avec le révélateur D19 au pH de 8,7. Les plaques chargées de bore avec le même révélateur au pH de 8,5.

Résultats de l'observation au microscope :

Plaque	Surface explorée	Nombre de traces par cm ² en 24 h.	Nombre total de traces comptées
A ₁ *	0,805 cm ²	424 ± 18	341
A ₂	1,000 cm ²	6	6
B ₁	0,114 cm ²	$3,86 \pm 0,04 \cdot 10^5$	10948
B ₂	0,100 cm ²	$4,20 \pm 0,001 \cdot 10^3$	675

* Une deuxième plaque du même type a donné le résultat de 420 ± 15 traces par cm² en 24 h.

Le nombre des réactions nucléaires provoquées par les neutrons lents d'énergie inférieure à 0,18 eV (énergie de résonance du Cd) s'obtient en soustrayant le nombre de traces observées avec Cd de celui compté sans Cd.

Nous obtenons

$$n_B = \text{nombre de réactions du bore} = 3,84 \pm 0,05 \cdot 10^5 \text{ par cm}^2 \text{ en 24 h.}$$

$$n_U = \text{nombre de fissions de l'uranium} = 418 \pm 18 \text{ par cm}^2 \text{ en 24 h.}$$

En effectuant la correction de 1,5 % mentionnée au § 3

$$n_B = 3,90 \pm 0,12 \cdot 10^5$$

Calcul du rapport des sections efficaces :

Ce calcul est immédiat à partir de la formule (5), en utilisant les valeurs connues de la concentration en uranium et en bore des deux plaques. L'erreur totale est de 20 % soit 7 % sur la quantité d'uranium, 5 % sur la quantité de bore, 3 % sur le nombre de traces de bore et 5 % sur le nombre de traces d'uranium.

$$\frac{\sigma_B}{\sigma_U} = \frac{n_B}{N_U} \cdot \frac{N_u}{n_U} = 170 \pm 34$$

En utilisant les valeurs de la section efficace du bore pour la vitesse thermique moyenne 2200 m/sec

$$\sigma_B = 707 \cdot 10^{-24} \text{ cm}^2$$

(Rainwater et Havens), on obtient pour la même énergie (0,025 eV)

$$\sigma_u = (4,2 \pm 0,8) \cdot 10^{-24} \text{ cm}^2$$

On peut encore calculer la section efficace relative à l'isotope 235, dont l'abondance est de 0,719 % (tables des isotopes de Segré)

$$\sigma_{U235} = (5,80 \pm 1,2) \cdot 10^{-22} \text{ cm}^2 = 580 \pm 120 \text{ barns.}$$

La valeur la plus récente dont la publication a été autorisée est celle de NIER, BOOTH et coll. (N 1 (1940) qui donnent $3,0 \cdot 10^{-24} \text{ cm}^2$ pour la section efficace relative à l'uranium naturel, soit $420 \cdot 10^{-24} \text{ cm}^2$ pour l'isotope 235.

Notre résultat est plus élevé; il faut toutefois remarquer qu'il a été déduit d'une valeur très récente de la section efficace du bore pour la vitesse thermique moyenne: $707 \cdot 10^{-24} \text{ cm}^2$. La valeur ancienne communément admise pour le bore étant de $600 \cdot 10^{-24} \text{ cm}^2$. L'article de Nier, Booth ne précise pas quelle méthode de détermination du flux de neutrons lents a été employée.

3. FISSION PAR NEUTRONS RAPIDES.

Nous obtenons 6 traces de fission sur 1 cm^2 en 24 h., dans la plaque entourée de 1 mm de Cd. La proportion des neutrons lents qui traversent cette épaisseur de Cd est inférieure à 10^{-5} . Les traces de fission observées sont certainement dues aux neutrons rapides et correspondent à l'isotope U 238 (le seuil de fission pour U 238 est d'environ 1 MeV). Nous avons tenté de le vérifier en calculant quelle devrait être la section efficace

de fission de U 238 par les neutrons rapides pour rendre compte du nombre des fissions observées.

Dans la plaque au bore entourée de Cd, on observe la présence de traces de protons, provoquées par les collisions élastiques des neutrons rapides avec les atomes d'hydrogène de la gélatine.

Nous avons effectué le comptage de ces traces, en ne prenant en considération que celles ayant une longueur égale ou supérieure à 15μ (énergie = 1 MeV). Après correction pour les traces qui sortent de l'émulsion et qui n'ont pas été mesurées, le nombre des protons de recul d'énergie égale ou supérieure à 1 MeV en 24 h. et par cm^2 est de

$$7570 \pm 50$$

Nous connaissons la quantité d'hydrogène par cm^2 (0,52 mg données de Ilford) et la section efficace moyenne de collision élastique pour les neutrons d'énergies comprises entre 1 et 10 MeV (spectre de la source Ra — α — Be) :

$$2 \cdot 10^{-24} \text{ cm}^2 \text{ (Rev. of Modern Physics, Octobre 1947).}$$

La section efficace de fission de U 238 déterminée par cette méthode serait de $0,2 \cdot 10^{-24}$ barn, la précision étant ici extrêmement faible, vu le nombre de 6 traces obtenues sur 1 cm^2 .

L'ordre de grandeur est toutefois satisfaisant : il est en accord avec les déterminations de ANDERSON ET COLL. (A¹) 0,1 barn, et de PERFILOV (P¹) par la méthode photographique : 0,2 barn.

CONCLUSIONS

Nous avons effectué une détermination de la section efficace de fission de l'uranium par les plaques photographiques. Bien que la méthode générale nous ait été connue, nous pensons avoir obtenu des résultats originaux sur les points suivants :

1. Mise au point d'une méthode de développement qui nous a permis de discriminer les traces de fission dans des conditions difficiles en travaillant avec une source de neutrons faible de 50 millicuries et des plaques très fortement chargées : 0,9 mg par cm^2 . De cette manière, les plaques photographiques pour recherches nucléaires pourront être utilisées pour mesurer la concentration d'un isotope fissile dans une substance donnée.

2. Mise au point d'une méthode de dosage de l'uranium dans la couche par l'emploi de la technique gravimétrique et des mesures d'activité au compteur de Geiger-Müller.

3. Détermination d'une valeur de la section efficace de fission en accord avec les résultats dont la publication est connue.

$$\sigma_{235}^u = 580 \pm 120 \text{ barns.}$$

Dans le courant de ces recherches, nous avons montré, d'autre part, que :

1. La désensibilisation des plaques imprégnées de sel d'uranyle n'était pas uniquement due à l'influence du pH de la solution d'imprégnation sur le révélateur.

2. Les inhomogénéités de répartition du bore dans les plaques C2 + B étaient explicables par les fluctuations statistiques dans le cadre d'une loi de distribution de Poisson.

3. L'effet du sous-développement, qui favorise la discrimination des particules fortement ionisantes dans les plaques employées en physique nucléaire, peut être mis en parallèle avec l'effet du sous-développement dans la technique photographique habituelle au moyen de courbes caractéristiques dont l'allure est semblable à celle des courbes de Hurter et Driffield.

4. Il est possible d'annuler l'effet de l'acidité de la solution d'imprégnation, de pH égal ou supérieur à 3, sur le développement par un bain en pH 8 avant de faire agir le révélateur.

*Laboratoires de Chimie physique, d'Electrochimie
et de Recherches nucléaires,
Ecole Polytechnique de l'Université de Lausanne.*

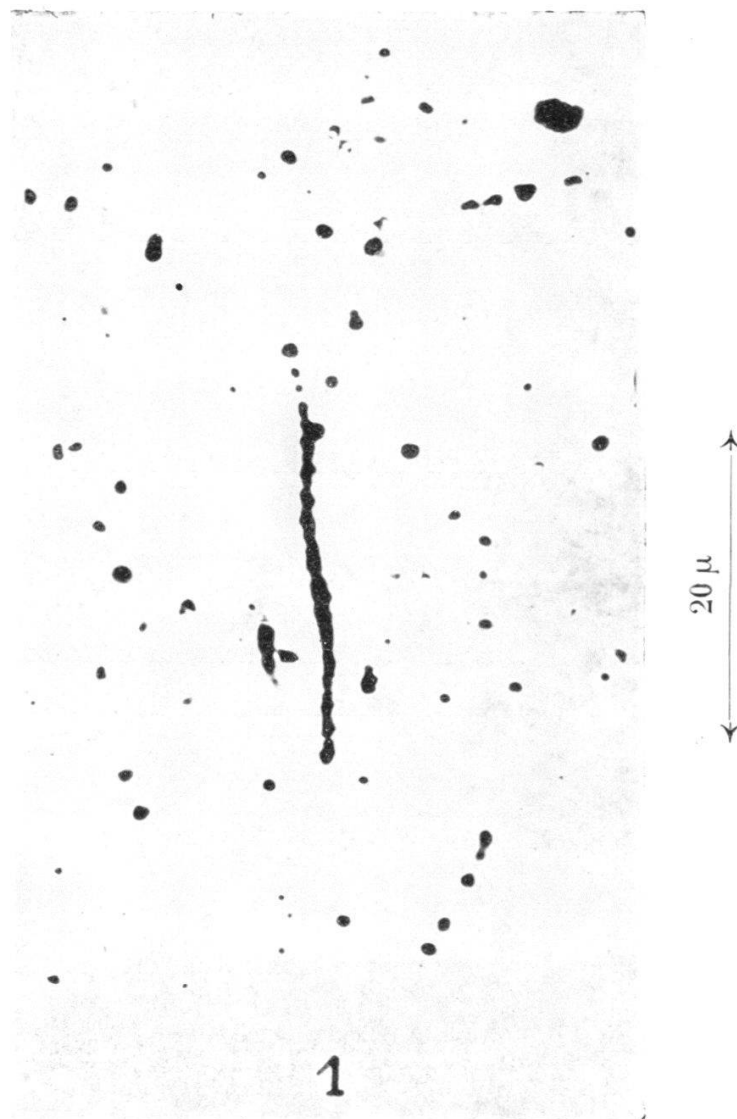
BIBLIOGRAPHIE

- A¹ : H.-L. ANDERSON, E.-T. BOOTH, J.-R. DUNNING, E. FERM., G.-N. GLASOE et F.-G. SLACK. — *Phys. Rev.* 55, 511 (1939).
- B¹ : A. BACHER. — *Phys. Rev.* 69, 441 (1946).
- B² : BROSTROEM, BOEGGILD, et LAURITZEN. — *Phys. Rev.* 58, 651 (1940).
- B⁴ : L.-B. BORST, J.-J. FLOYD. — *Phys. Rev.* 70, 106 (1946).
- B⁵ : E. BRODA. — *J. of Sci. Instruments* 24, 136 (1947).
- B⁶ : E. BRODA. — *Nature* 158, 872 (1946).
- C¹ : P. CUER. — *Sc. et Industrie Photographique*, Tome XVIII, Déc. 1947.
- D¹ : P. DEMERS. — *Can. Journal of Research A* 25, 223-51, July 1947.
- E¹ : R.-D. EVANS. — *The Science and Engineering of Nuclear Power*, Godman édit., 1947, p. 73.
- F¹ : H. FARAGGI. — *C. R. Acad. Sc.* 226, 717 (1948).
- G¹ : GREEN et LIVESEY. — *Nature* 159, 332 (1947).
- G² : GREEN et LIVESEY. — *Nature* 158, 272 (1946).
- H¹ : CH. HAENNY et KLÉMENT. — *Bull. Soc. vaud. S. N.* 64, 297 (1948). — *Experienta* 5, 281(1949).
- H² : CH. HAENNY et ROCHAT. — *H. P. A.* XXI, 186 (1948).
- H³ : CH. HAENNY, P. LERCH, O. ROCHAT, *H. P. A.* XXII, 609 (1949).
- L¹ : LATTES, FOWLER et CUER. — *Nature* 159, 301 (1947).
- L² : LATTES et OCCHIALINI. — *Nature* 159, 331 (1947).
- M¹ : MYSSOWSKI et IDANOV. — *Nature* 143, 794 (1939).
- M² : K. MEES. — *Theory of the photographic Process*, Mac Millan Co, édit., New-York (1945), p. 706.
- M³ : GURNEY et MOTT. — *Proc. Royal Soc. (A)* 164, 151 (1938).
- N¹ : NIER, BOOTH. — *Phys. Rev.* 57, 748 (1940).
- O¹ : G.-P.-S. OCCHIALINI et M. DILWORTH. — *Nature* 162, 102-103 (1948).
- P¹ : N.-A. PERFILOV. — *C. R. Acad. Sci. U. R. S. S.* 47, 623 (1945).
- P² : E. PICCIOTTO. — *Bulletin Université libre Bruxelles* N° 4 (1948).
- R¹ : RAINWATER et HAVENS. — *Phys. Rev.* 70, 136 (1946).
- R² : RICHARDS et SPECK. — *Phys. Rev.* 71, 141 (1947).
- S¹ : G.-W.-W. STEVENS. — *Nature* 161, 526 (1948).
- S² : SEGRÉ. — *Tables des isotopes. Rev. Modern Physics* 16, 1 (1944).
- S³ : SHAPIRO. — *Phys. Rev.* 75, 211 (1948).
- T¹ : SAN TSIANG, HO ZAH WEI, CHATEL et VIGNERON. — *J. Phys. et Rad.* 8, 165, 200 (1946).
- W¹ : WOLLAN, MOAK et SAWYER. — *Phys. Rev.* 72, 447 (1947).
- Y¹ : H. YAGODA. — *Radioactive measurements with nuclear emulsions*, John Wiley, édit., New-York (1949).
- Z¹ : ZÜNTI, HANNI et TELEGDI. — *H. P. A.* XXI, 203 (1948).

TABLE DES MATIERES

	Pages
Chap. 1. <i>Introduction sur la méthode photographique</i> . . .	195
1. Généralités	
2. Principe de la méthode photographique : Effet photographique des particules ionisantes	
3. Dénombrement des événements nucléaires	
4. Mesures de longueurs	
5. Mesures d'angles	
6. Comptage des grains	
Chap. 2. <i>La réaction de fission dans les plaques photographiques</i>	199
1. Historique	
2. Observation des traces de fission	
3. Aspect caractéristique des traces de fission	
Chap. 3. <i>Principe de la détermination de la section efficace.</i>	202
1. Définition	
2. Théorie	
3. Conditions expérimentales	
Chap. 4. <i>Détection quantitative des traces de fission</i>	206
1. Technique de production	
2. Discrimination fission — α	
3. Processus expérimental pour le traitement des plaques Ilford D1	
4. Interprétation des résultats obtenus	
5. Problème de l'action affaiblissante de l'uranium	
Chap. 5. <i>Observation et comptage des traces de la réaction du bore</i>	223
1. Généralités	
2. Réduction du voile γ	
3. Causes d'erreur dans le comptage des traces de bore	
4. Inhomogénéités de répartition du bore dans les plaques Ilford	
Chap. 6. <i>Dosage de l'uranium dans la plaque</i>	230
1. Test d'extraction	
2. Dosage des plaques imprégnées	
Chap. 7. <i>Détermination du rapport des sections efficaces du ^{10}B et de ^{235}U</i>	233
1. Fading des traces de fission	
2. Comparaison bore-uranium	
3. Fission par neutrons rapides	
<i>Conclusions</i>	237
<i>Hors-texte, Planches I-VII.</i>	

Rédaction : Mlle Suzanne Meylan, professeur, Florimont 14, Lausanne.
Imprimerie Baud, avenue de l'Université 5, Lausanne.

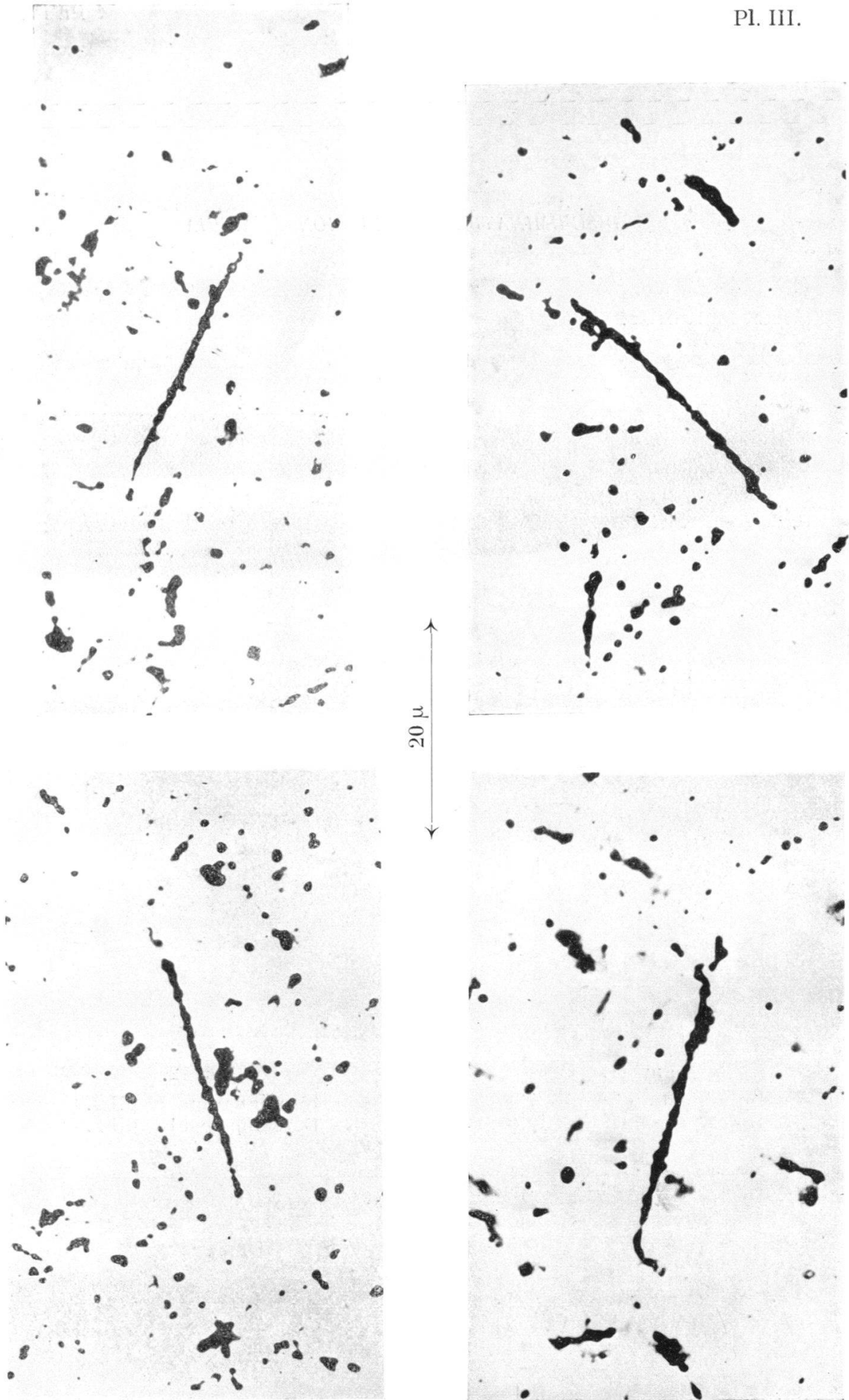


Trace de fission de ^{235}U par neutrons lents.

Plaque Ilford D1 50 μ
imprégnée solution 6 % nitrate uranyle
+ citrate de Na
Irradiation 24 h.

Les changements de direction indiquent des points de collision entre les fragments de fission et les noyaux de l'émulsion.

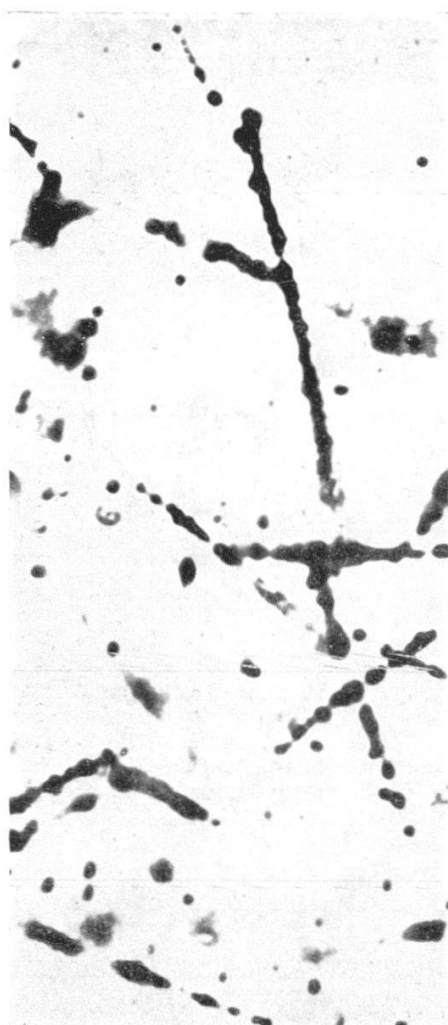
Observer la diminution de l'ionisation (densité de grains) par suite de la diminution de charge au cours du ralentissement.



Exemples de traces de fission.

DISCRIMINATION

FISSION — ALPHA



Traces de fission
 Traces α

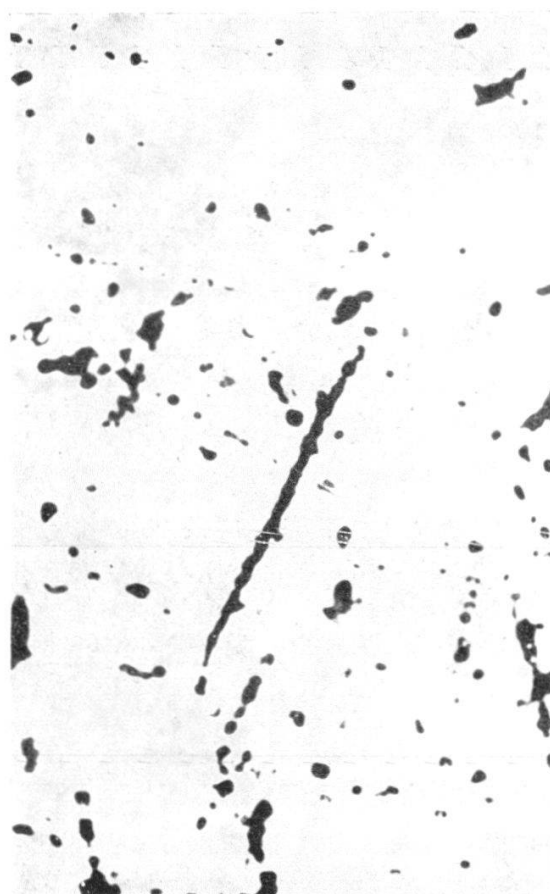


FIG. 11.
 Imprégnation pH 7.0
 Développement pH 10.4

FIG. 12.
 Imprégnation pH 4.9
 Développement pH 8.5

PARTICULES α DE L'URANIUM



FIG. 13.
Plaque C2 pH 7.0.

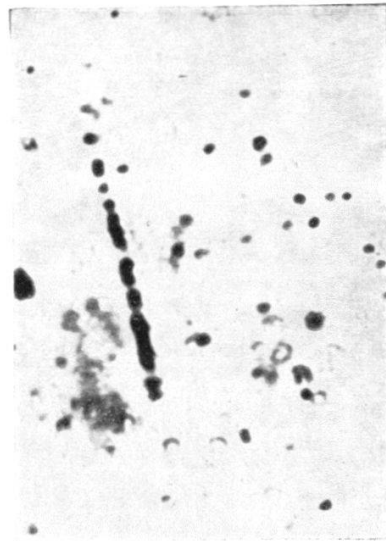


FIG. 14.
Plaque C2 pH 3.0.

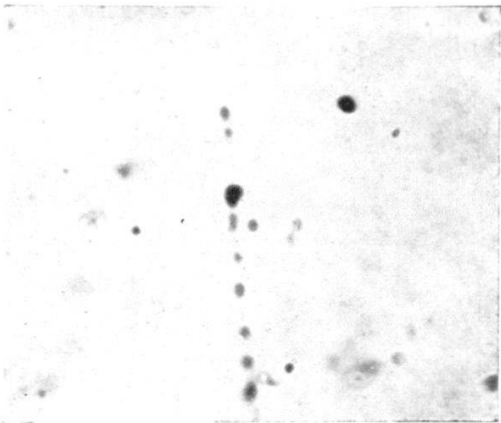


FIG. 15.
Plaque D1 pH 4.0.

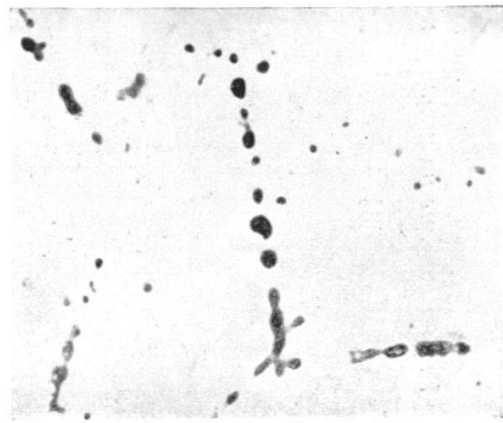


FIG. 16.
Plaque D1 pH 5.0

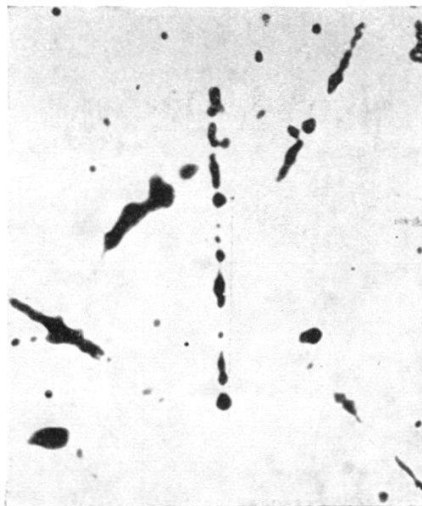


FIG. 17.
Plaque D1 pH 7.0.

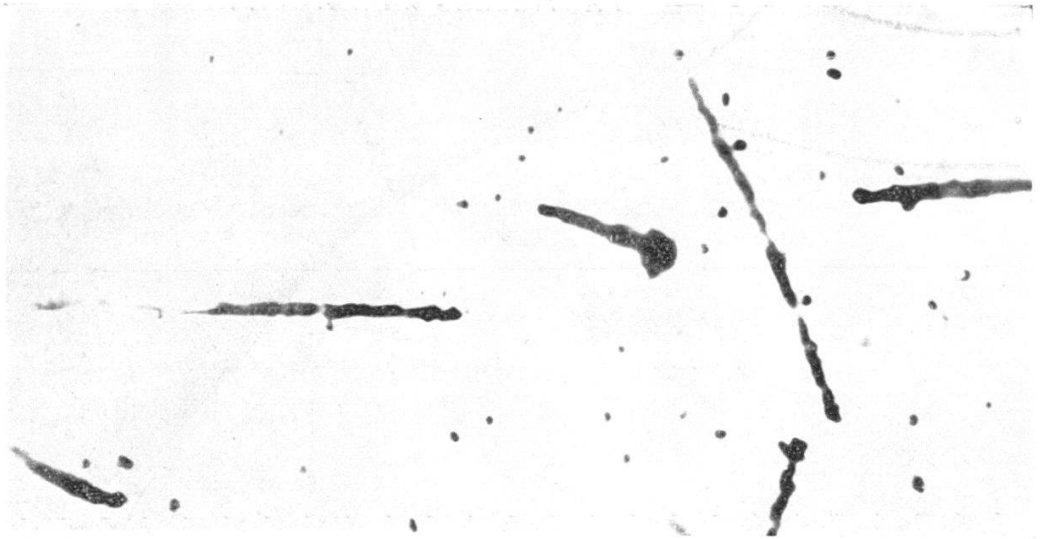


FIG. 18.



FIG. 19.

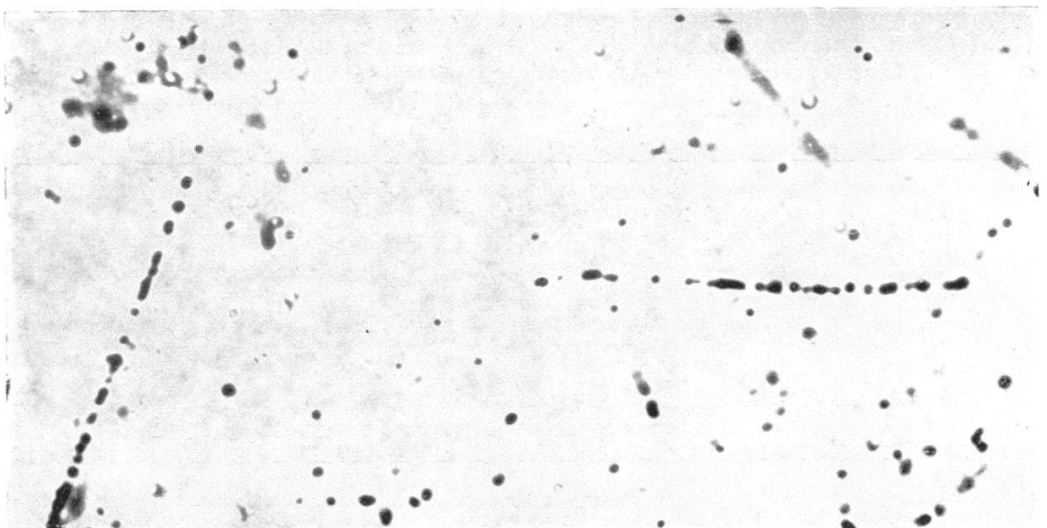


FIG. 20.

Traces α du Thorium en surface de la plaque.

Fig. 18 : Plaque irradiée sans traitement spécial.

Fig. 19 : Plaque irradiée après bain de 12 h. en pH 3.0 sans uranium développée après bain de 12 h. en pH 8.0.

Fig. 20 : Plaque irradiée après bain de 12 h. en pH 3.0 avec uranium développée après bain de 12 h. en pH 8.0.

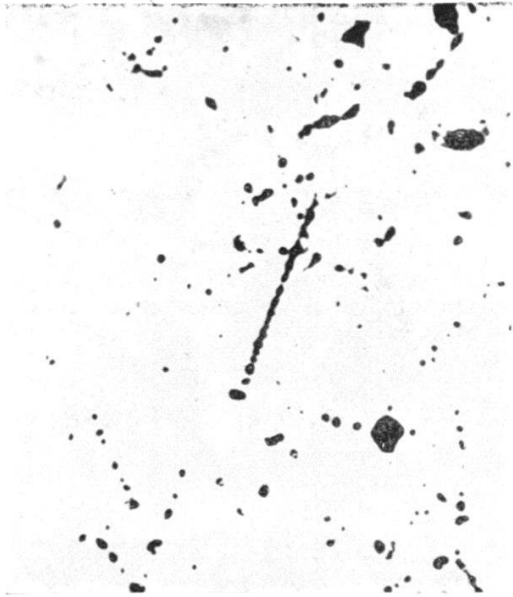


FIG. 23.
24 h.

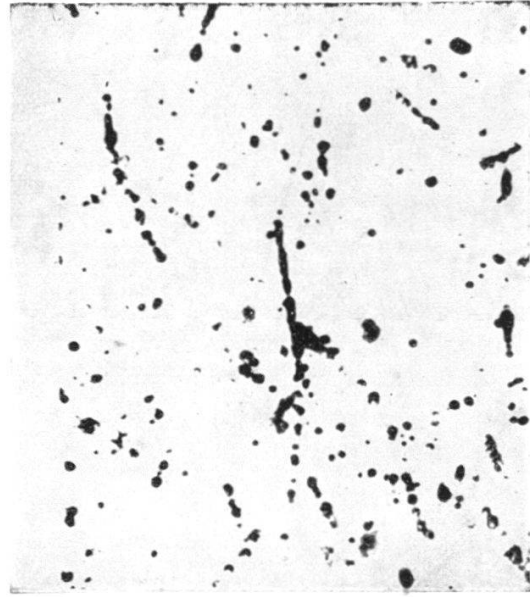


FIG. 24.
48 h.

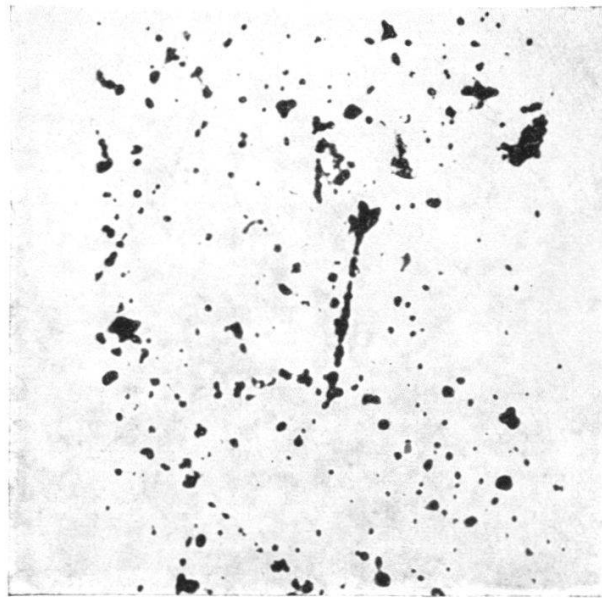


FIG. 25.
72 h.

Fading des traces de fission.