LES DÉTECTEURS SOLIDES DE TRACES

(suite et fin)*

Applications pratiques

D. BLANC **

(Manuscrit reçu le 25 mai 1970)

En 10 ans, ces détecteurs ont envahi de nombreux domaines de la physique et d'autres zones scientifiques. C'est un développement remarquable, et qui n'est pas fini, car de nombreuses voies d'étude — on l'a vu — sont à développer, et conduiront sans nul doute à des améliorations très considérables.

Je passerai donc en revue, très succinctement, les principales applications de ces détecteurs. Les références bibliographiques permettront au lecteur de traiter en détail chaque cas particulier, s'il le désire.

MESURES D'INTERVALLES DE TEMPS

1° PÉRIODES DE FISSION SPONTANÉE

La très grande sensibilité des détecteurs solides de traces aux fragments de fission les désigne tout naturellement pour des mesures de ce genre, qui seront plus précises et plus sûres qu'avec des détecteurs moins sélectifs.

Je me contenterai de donner deux exemples caractéristiques, et, bien entendu, à caractère non limitatif :

a) Période de fission spontanée de l'uranium 238 [Fl-11].

Considérons un minerai d'uranium. Soit t son âge, c'est-à-dire le temps qui s'est écoulé entre la solidification du minerai et la mesure. La fission spontanée de ^{238}U est beaucoup plus importante que celles de ^{235}U et ^{232}Th , et le calcul montre que l'on a, après avoir irradié une lame du matériau par un flux de neutrons thermiques, qui agit sur ^{235}U et pas sur ^{238}U :

$$t = \frac{n_t}{\lambda_F} \cdot \frac{C_{235}}{C_{238}} \cdot \frac{\rho_{TF}}{\rho_{TF}}$$

n_t = fluence des neutrons thermiques,

σ_{f235} = section efficace de fission induite sur ^{235}U ,

* 3^e partie du Cours dont les deux premières parties ont paru dans les Nos 1 et 2 du Volume 5 de « Radioprotection ». La bibliographie totale a paru dans le N° 1.

** Professeur à la Faculté des Sciences et Directeur du Centre de Physique atomique et nucléaire de Toulouse, 118, route de Narbonne.

λ_F = constante radioactive pour la fission spontanée de ^{238}U ,
 C_{235} = concentration des atomes de ^{235}U par unité de volume,
 C_{238} = concentration des atomes de ^{238}U par unité de volume,
 ρ_{TF} = densité des traces fossiles de fragments de fission, par unité de surface,
 ρ_{TFP} = densité des nouvelles traces induites par l'irradiation dans le faisceau de neutrons thermiques.

ρ_{TF} et ρ_{TFP} seront obtenus en accolant à la lame de minéral d'uranium une feuille de détecteur, comme du mica.

Cette formule permet de mesurer, par dénombrement de traces, la valeur de λ_F ; la méthode a été employée par FLEISCHER et PRICE [Fl-11] : une feuille de mica synthétique, accolée à une feuille d'uranium naturel, sert à dénombrer les fragments de fission spontanée et induite de l'uranium. On coupe le sandwich de mica et d'uranium en deux :

— une moitié sert à collecter les phénomènes de fission spontanée durant 6 mois;

— la seconde est irradiée par des neutrons thermiques (réacteur de Brookhaven); elle sert à collecter les phénomènes de fission induite.

Ces auteurs ont obtenu, par une série de recouplements :

$$\lambda_F = (6,85 \pm 0,20) \cdot 10^{-17} \text{ s}^{-1}.$$

b) *Période de fission spontanée de l'isotope 260 de l'élément 104* [Fl-32].

Un faisceau de noyaux de néon (113 à 115 MeV) tombe sur une cible constituée par le mélange de plusieurs isotopes du plutonium. Cette cible est disposée sur une feuille d'aluminium. L'élément 104 est obtenu par la réaction : $^{242}\text{Pu} (^{22}\text{Ne}, 4n)$. La cible est transportée par une courroie qui se déplace devant une série de plaques de verres, sensibles uniquement aux fragments de fission spontanée de l'élément 104. On déduit la période de fission de la densité des traces obtenues et de la vitesse de la courroie. En 1964, on a obtenu ainsi une valeur de 0,3 s, la section efficace de formation étant de $2 \cdot 10^{-34} \text{ cm}^2$. La période obtenue est beaucoup plus grande que celle que l'on déduit du modèle de la goutte liquide ($5 \cdot 10^{-6} \text{ s}$).

Plus récemment, des procédés analogues ont permis de mesurer les périodes de fission spontanée des isotopes de l'américium [Li-1], [Ro-2], [Se-3].

2° DURÉES DE VIE TRÈS COURTES

La méthode du microscope électronique sur la trace latente donne à ces détecteurs un pouvoir de résolution spatial très élevé (de l'ordre de 100 Å), puisque le pouvoir séparateur de ces microscopes est considérable. Cela permet donc la mesure d'intervalles de temps très courts : une particule se déplaçant avec une vitesse égale au dixième de celle de la lumière parcourt cette distance en $3 \cdot 10^{-16}$ seconde environ. On est très au-dessus des performances des meilleurs systèmes électroniques (10^{-11} à 10^{-12} s). Il est instructif de comparer aux émulsions nucléaires dont la résolution spatiale optimale, liée au diamètre des grains de bromure d'argent, est de l'ordre de 1 micron.

Voici deux exemples de ce que l'on peut faire dans ce domaine :

1 - D'AURIA *et alii* [Da-3] ont pu déterminer la durée de vie des noyaux composés obtenus dans l'interaction de feuilles de ^{27}Al par des noyaux ^{16}O et ^{20}Ne : jusqu'à 100 MeV environ, toutes les collisions inélastiques conduisent à la formation d'un noyau composé.

2 - FLEISCHER *et alii* [Fl-5], [Fl-20], ont étudié la fission du plomb par des ions oxygène de 150 MeV, en utilisant des lames minces de mica synthétique contenant 1 % de plomb : ils n'ont pas obtenu de traces caractéristiques des noyaux composés, et en ont déduit que la durée de vie de ces noyaux est inférieure à $5 \cdot 10^{-16}$ s, valeur qui correspond au pouvoir séparateur du microscope électronique qu'ils employaient.

ÉTUDE DE RÉACTIONS NUCLÉAIRES

1° RÉACTIONS DE FISSION ET DE SPALLATION

La détection des fragments de fission est un domaine privilégié des détecteurs solides de traces (micas et matières plastiques). En particulier, les détecteurs plastiques présentent, sur les émulsions nucléaires, un certain nombre d'avantages [De-8] :

a) *Le pouvoir d'arrêt.* Il est plus faible que celui de l'émulsion et la longueur des traces sera plus grande : la fission du californium donne des traces de 19 μm dans le makrofol contre 11 μm dans l'émulsion.

b) *La sensibilité.* Le seuil de détection permet de ne pas enregistrer les particules créant la fission : on peut soumettre un échantillon de makrofol à des protons de 18 GeV (jusqu'à 10^{12} p/cm²) sans obtenir une seule trace parasite. Par contre, dans une émulsion, même peu sensible, la fluence maximale de protons incidents se situe au voisinage de 10^8 protons/cm².

c) *La composition chimique.* Les plastiques sont formés d'éléments légers (H, C, O, parfois N), alors que les émulsions, beaucoup plus hétérogènes, contiennent H, C, O, N, Br, Ag, et des sensibilisateurs (Au, S, etc.).

Les polymères sont inertes chimiquement : on peut déposer sur leur surface une feuille de matériau fissile et constituer des « sandwichs », cibles-détecteurs, dont nous verrons plusieurs exemples. Ces sandwichs, utilisés par PRICE *et alii* [Fl-6], ont été employés, depuis, par de nombreux auteurs. Les émulsions se prêtent mal à cette opération, en raison de leur réactivité chimique.

d) *Le développement.* Lorsque le développement semble insuffisant, on peut procéder à des opérations chimiques ultérieures, ce qui est impossible avec une émulsion. Enfin, le détecteur est insensible à la vapeur d'eau et le développement peut être fait à la lumière du jour.

Les traces ne sont développées que si elles émergent à la surface du détecteur. Cela est un avantage ou un inconvénient, selon les cas.

Voici des exemples d'applications pratiques :

a) FISSIONS INDUITES PAR DES NEUTRONS.

Ces détecteurs permettront la mesure de sections efficaces très faibles : l'élément fissile est incorporé dans le détecteur, et les traces des fragments de fission sont enregistrées par le détecteur lui-même. On déduit la section efficace de la concentration des noyaux fissiles et du nombre de traces.

b) FISSIONS ET SPALLATIONS INDUITES PAR DES PROTONS

On a beaucoup étudié les réactions induites par les protons très rapides produits par les grands synchrocyclotrons actuels [De-6], [Fl-18]. En voici des exemples :

1 - *Fission des métaux de masses moyennes et élevées.*

— *Protons de 3 GeV.* DEBEAUVAIS *et alii* ont étudié l'uranium, le plomb, l'argent, le chrome (10^{11} à 10^{12} protons/cm²). Le détecteur est constitué par une lame métallique mince (100 à 2 000 Å d'épaisseur) entourée par deux plaques de mica ou de makrofol [De-6].

La plaque de sortie reçoit les protons après traversée de la couche métallique; elle enregistre les traces des fragments de fission des atomes métalliques dirigées vers l'avant.

La plaque d'entrée enregistre les traces dirigées vers l'arrière.

A partir du rapport du nombre de traces produites vers l'avant au nombre de traces produites vers l'arrière, on peut préciser la cinématique de l'émission des produits de fission et de spallation.

— *Protons de 18 GeV.* DEBEAUVAIS *et alii* [De-7], [De-8] ont utilisé des détecteurs plastiques (makrofol) dont le T.L.E. critique ($5,5 \text{ MeV} \cdot \text{mg}^{-1} \cdot \text{cm}^2$) est trois fois plus faible que celui des micas.

La technique est analogue à la précédente : le matériau fissile (U, Pb, Au) est déposé par évaporation sous vide (épaisseur de quelques centaines d'angströms) sur l'une des deux lames de plastique qui lui sont accolées. On a mis ainsi en évidence des phénomènes à plusieurs branches dus aux réactions de spallation et aux réactions de fission ternaire.

2 - *Etude à la limite inférieure de masses possibles.*

La technique du sandwich a permis de mesurer des sections efficaces faibles de fission induite [Ma-4], dans le cas de protons de 156 MeV et de noyaux qui se situent à la limite des éléments fissiles : praséodyme $^{141}_{59}\text{Pr}$, lanthane $^{138}_{57}\text{La}$, antimoine $^{123}_{51}\text{Sb}$, indium $^{115}_{49}\text{In}$, cadmium $^{113}_{48}\text{Cd}$. Du dénombrement des fragments émis dans des feuilles de mica en sandwich, on a déduit des sections efficaces de quelques microbarns.

Cette limite de 10^{-6} barn [Du-1] a été abaissée en dénombrant les traces préexistant dans les micas ou les verres naturels, au moyen d'une attaque chimique préalable. En mesurant des densités de traces très faibles, on a pu mesurer, dans ces matériaux, des sections efficaces de l'ordre de 10^{-11} barn.

3 - Irradiation de lames de mica

Pour obtenir la densité et l'apparence des traces induites par le rayonnement cosmique dans les minéraux naturels, MAURETTE et WALKER [Ma-3], [Ma-5], ont irradié par des protons de 3 GeV ($3,3 \cdot 10^{12}$ p. cm⁻²) des échantillons de mica muscovite. Ils ont obtenu deux types de traces :

a) Des traces fines et courtes ($< 5 \mu\text{m}$) obtenues après attaque de 30 minutes par HF, peu abondantes. Elles semblent dues à des réactions de spallation avec les impuretés de masses atomiques moyennes présentes dans le mica (Fe, par exemple).

b) Des figures de corrosion, obtenues après 4 heures d'attaque par HF. Leur densité est constante d'un échantillon à un autre, ce qui montre qu'elles proviennent d'un constituant normal du mica. Elles sont dues, probablement, à des réactions de spallation des protons sur le potassium.

Un échantillon de mica, exposé même peu de temps au rayonnement cosmique, devrait donc présenter des traces dues à cette exposition. Cependant, il est pratiquement impossible de trouver de telles traces dans les micas terrestres. Ceci est dû au fait que la vitesse d'érosion du sol terrestre est de l'ordre de 10 m par million d'années : la plupart des minéraux que l'on trouve actuellement au voisinage de la surface du sol ont été protégés pendant longtemps de l'action du rayonnement cosmique par des épaisseurs de roches importantes et variables [Ma-5].

c) FISSIONS INDUITES PAR DES NOYAUX PLUS LOURDS

Le bombardement par des particules α de 25 à 120 MeV de cibles d'or a permis de déterminer la hauteur de la barrière de fission de ²⁰¹Tl [Bu-1].

FLEISCHER *et alii* [Fl-6] ont étudié les fissions ternaires des noyaux lourds par des ions d'argon (414 MeV); ils ont démontré, à l'aide de détecteurs de mica et de verre où étaient incorporés les atomes fissiles, et qui sont insensibles aux ions argon de cette énergie (fig. 24) que, en accord avec la théorie [Sw-2], le rapport du nombre des événements tertiaires à celui des phénomènes binaires, augmente avec le paramètre de fission $\left(\frac{Z^2}{A}\right)$ du noyau composé.

Dans les détecteurs contenant du (Th Si O₄), par attaque prolongée à l'acide phosphorique à 220 °C, on a obtenu [Fl-30], dans des conditions analogues d'irradiation, des traces rectilignes assez longues; elles semblent dues à des réactions nucléaires (Ar + Si) ou (Ar + O).

d) PHOTOFISSIONS

Une étude récente est celle des fissions ternaires induites dans ²³²Th, ²³⁸U et ²³⁹Pu par le rayonnement de freinage d'électrons de 27,5 MeV [Me-2]. La technique est celle du sandwich (fig. 27) : la substance fissile est placée entre deux détecteurs de sensibilités différentes, l'un est du mica muscovite (épaisseur = 100 microns), l'autre du polyester de type Melinex O (épaisseur = 40 microns). Ces détecteurs sont insensibles aux particules α et sélectionnent donc les fissions ternaires qui conduisent à des fragments de masses comparables. Les auteurs ont

obtenu ainsi le rapport du nombre de fissions ternaires à celui de fissions binaires avec une précision qu'ils considèrent comme meilleure que celle atteinte au moyen d'émulsions nucléaires et même de semi-conducteurs.

FIG. 27. — Fission ternaire dans un système en « sandwich ». La coupe est faite dans le plan où a lieu la fission [Me-2].

FIG. 28. — Dispositif expérimental employé pour mesurer la distribution angulaire de particules α depuis la cible d'un accélérateur de particules [So-2].

2° AUTRES RÉACTIONS NUCLÉAIRES

Ici, les détecteurs solides de traces perdent l'intérêt de leur effet sélectif et, en général, les systèmes électroniques donneront de meilleurs résultats. Ils peuvent cependant remplacer avantageusement les émulsions nucléaires. Les exemples sont plus rares; j'en donnerai deux :

D'AURIA *et alii* [Da-3], plaçant des feuilles de mica derrière la cible, ont étudié certaines réactions nucléaires à hautes énergies, produites par des ions ^{20}Ne .

SOMOGYI et SCHLENK [So-2] ont utilisé des feuilles de makrofol pour mesurer la distribution angulaire des particules α produites par les réactions $^{19}\text{F}(\text{d}, \alpha)$ et $^{27}\text{Al}(\text{d}, \alpha)$ à basses énergies. Le dispositif expérimental, très simple, est représenté sur la figure 28.

RAYONNEMENT COSMIQUE

Je ne dirai que quelques mots de ce domaine, qui est en rapide développement depuis que l'on sait réaliser des expériences de spectrométrie au moyen de ces détecteurs.

Rappelons que, pour des particules ayant traversé la totalité de l'épaisseur d'une feuille de plastique (ce qui est le cas des rayons cosmiques primaires), les traces ont, en fonction du temps, les allures données sur les parties C et D de la

FIG. 29. — Les diverses catégories de traces développées :

- A : développement au-delà du parcours réel,
- B : le développement n'a pas atteint la fin du parcours,
- C : la particule a traversé la lame et le développement est fait des deux côtés,
- D : même tracé que C, mais après un développement plus long [Be-6].

figure 29 [Be-10]. Pour des particules dont le parcours est contenu dans l'épaisseur du plastique, on obtient les aspects A ou B. Ces détecteurs permettent les opérations suivantes :

- Mesure de la charge Z par la longueur de la trace développée [Ma-8];
- Mesures de Z et de A de particules pénétrantes par la vitesse de développement;
- Mesure de l'énergie des fragments de fission d'après le diamètre de la trace à la surface du détecteur.

Le mécanisme de ces phénomènes reste mal connu, et il faut se livrer à des étalonnages expérimentaux (voir les figures 18 et 19), par exemple au moyen

de fragments de fission d'énergies bien connues [Fi-2], [Ho-1], ou d'accélérateurs linéaires pour ions lourds [Bl-4], [Ma-7].

L'emploi d'empilements de feuilles de plastique, assez analogues aux empilements d'émulsions nucléaires, permet d'obtenir tout un faisceau de renseignements [So-2]. On peut employer des surfaces considérables de matériau, ce qui est une nouvelle supériorité vis-à-vis des émulsions.

Les détecteurs solides de traces sont parfaitement désignés pour les mesures lors de vols de ballons plafonnants, lors de tirs de fusées à charges récupérables, ou dans les vols spatiaux.

On pense (WALKER) pouvoir atteindre ainsi, assez rapidement, l'abondance des rayons cosmiques correspondant aux trois quarts supérieurs du tableau périodique; en effet, jusqu'à maintenant, c'est le premier quart qui a surtout été étudié. Lors des vols spatiaux, on obtiendra des renseignements sur la composante de basse énergie. Enfin, on se doute de l'intérêt de la méthode dans le cas des échantillons lunaires (corrélations à établir avec les explosions solaires et l'activité du vent solaire).

MICRO-ANALYSE, DOSAGES DIVERS

1° DOSAGE DU RADON ET DU THORON

Les techniques employant les émulsions peuvent être appliquées aux détecteurs solides de traces, sans innovation particulière. Par exemple, on a employé des lames de nitrate de cellulose épaisses de 50 microns pour mesurer la radioactivité α des descendants de ^{222}Em , et en déduire leurs concentrations dans l'air [Me-1].

De même que dans le cas des rayons cosmiques, ces détecteurs s'adaptent bien aux mesures, lors de vols de ballons, de la teneur de l'air en Rn et Tn, en fonction de l'altitude [An-1].

Enfin, des systèmes à nitrate de cellulose sont utilisables pour mesurer les descendants du radon dans les mines d'uranium [Jo-2].

2° MICRO-DOSAGES DE L'URANIUM ET DU THORIUM DANS LES CRISTAUX NATURELS [Pr-8].

On irradie l'échantillon par un faisceau de neutrons [Da-1]. Des traces de fragments de fission, on déduit la teneur en uranium. La sensibilité est de 10^{-8} millionième environ [Fl-18], [Pr-8]; elle atteint $4 \cdot 10^{-9}$ millionième dans les micas.

On détermine d'abord le bruit de fond, c'est-à-dire le nombre de « traces fossiles », par une attaque de l'échantillon par HF; on expose ensuite le matériau dans un flux de neutrons thermiques d'un réacteur. La densité ρ/cm^2 des traces induites par la fission des impuretés est donnée par :

$$\rho = n N_0 \sigma I R_0 C_u$$

n = fluence des neutrons thermiques/ cm^2 ,

N_0 = densité atomique, ou nombre d'atomes/ cm^3 ,

σ = section efficace de fission sur ^{238}U ,

I = abondance isotopique de ^{235}U ,

C_u = concentration de l'uranium,

R_0 = parcours moyen des fragments de fission dans le mica (15,2 microns pour les fragments légers, 12,5 microns pour les fragments lourds). Comme des fragments d'énergie très faible ne donnent plus de trace décelable, on a pris arbitrairement $R_0 = 10$ microns.

Afin de tenir compte, éventuellement, de fissions sur ^{238}U et des impuretés de thorium par des neutrons rapides, on entoure l'échantillon de cadmium qui absorbe les neutrons lents, et on mesure les traces obtenues : ρ est la différence des valeurs obtenues sans et avec protection de cadmium. La contribution des neutrons rapides est, en général, négligeable.

Si l'échantillon contient, à la fois, ^{235}U , ^{238}U et ^{232}Th , on obtiendra le rapport des teneurs relatives de ces trois types de noyaux fissiles en effectuant la mesure de la densité des traces après trois irradiations différentes :

— Une exposition aux neutrons thermiques, qui provoque la fission de ^{235}U .

— Une exposition aux neutrons rapides, qui provoque la fission des trois isotopes.

— Une exposition à des rayons gamma (d'énergie supérieure à 5 MeV) : la section efficace de photofission de ^{238}U est alors 100 fois plus grande que celle de photofission de ^{232}Th [Ka-1].

Cette méthode simple de microanalyse a permis de mesurer, entre autres, les teneurs en uranium de verres anciens [Fl-10], d'os fossiles [Fl-27] et de météorites [Fl-19], [Fl-25].

3° TAUX D'ENRICHISSEMENT EN ^{235}U DE L'URANIUM MÉTALLIQUE

Le Commissariat à l'Energie Atomique [Ch-5], [Ch-13] emploie des feuilles de nitrate de cellulose pour mesurer l'activité α d'échantillons épais.

En effet, l'enrichissement en ^{235}U s'accompagne d'un enrichissement parallèle en ^{234}U ; l'activité α du mélange est due, en grande partie, à celle de ^{234}U , et la mesure de cette activité fournit une valeur assez précise du degré d'enrichissement de 1 % à 99 %.

Les auteurs dépouillent les données par densitométrie optique, ce qui est un procédé assez rapide.

RADIOPROTECTION

J'ai parlé plus haut de l'emploi possible de feuilles de nitrate de cellulose dans le contrôle de protection dans les mines d'uranium. Je n'y reviendrai pas.

1° RADIOPROTECTION SPATIALE

Des dosimètres en matière plastique sont embarqués dans les vols spatiaux américains. Par exemple, neuf dosimètres contenant deux couches de 190 microns de polycarbonate (Lexan) ont été embarqués avec l'équipage d'Apollo VIII. Le seuil en énergie de ce matériau est de $3.10^3 \text{ MeV.g.cm}^{-2}$. Après le retour de la cabine spatiale, on a observé, en moyenne, une trace par cm^2 . La spectrométrie

des traces a montré que 70 % des particules ont des Z supérieurs à 10, et que 30 % ont leur parcours compris dans l'épaisseur du matériau.

Ces détecteurs constitueront d'excellents systèmes de routine pour les astronautes, dans le cas de missions de longues durées (jusqu'à plusieurs années).

2° DÉTECTION DES NEUTRONS - LEUR DOSIMÉTRIE

De par leurs propriétés, les détecteurs solides de traces ne décèlent que les particules atomiques : ils sont inutilisables pour les électrons, les rayons X et gamma. Par contre, leur intérêt est grand pour les neutrons, dans le cas de production de fragments de fission ou de particules α . Il est regrettable qu'ils ne soient pas sensibles aux protons.

1 - INTRODUCTION

Ainsi que je viens de le dire, les neutrons ne peuvent être détectés que par l'intermédiaire des produits de réactions de fission, ou de réactions nucléaires classiques. Ces dernières sont très peu employées. On peut citer la réaction $^{12}\text{C}(n, n)3\alpha$ pour la dosimétrie des neutrons thermiques [Fl-28].

Ce qui suit concerne uniquement la détection des neutrons par l'intermédiaire de réactions de fission. On emploie l'équation suivante donnant la densité ρ des traces produites par les fragments de fission (par cm^2), sous l'impact de neutrons d'énergie donnée :

$$\rho = n N_0 \sigma I R_0 C_u$$

avec, rappelons-de :

n = fluence des neutrons/ cm^2 ,

N_0 = densité atomique, ou nombre d'atomes/ cm^3 ,

σ = section efficace de fission pour ^{235}U ,

I = abondance isotopique de ^{235}U ,

C_u = concentration de l'uranium dans la cible,

R_0 = parcours moyen des fragments de fission dans le matériau détecteur.

Si C_u est connue, on peut en déduire la fluence n , donc la dose.

Le détecteur solide est caractérisé par un certain nombre de propriétés :

1 - Sensibilité nulle pour les particules autres que les fragments de fission : les rayons bêta et gamma ne sont pas enregistrés. Dans l'uranium, le seuil de photofission est de 5 MeV, et les rayons gamma d'une source de ^{60}Co n'ont pas d'effet sur le dosimètre. Cependant, des rayons gamma d'énergie supérieure peuvent être détectés. La plus grande sensibilité est obtenue avec les rayons gamma de 14 MeV (elle représente le tiers de la sensibilité obtenue pour la détection des neutrons de 1 MeV) [Fl-14]. Enfin, seul le nitrate de cellulose enregistre des particules α d'énergie comprise entre 0,5 MeV et 3 MeV.

2 - Stabilité des traces à températures élevées (intéressant pour les réacteurs), et en fonction du temps.

- 3 - Simplicité de réalisation, de manipulation et de traitement.
- 4 - Large domaine de mesure des fluences (10^{13} à 10^{23} n/cm²).

2 - PRÉPARATION DES ÉCHANTILLONS

Le mode de préparation dépend de la structure du solide.

— On peut déposer, par évaporation, un film mince de matériau détecteur sur une feuille de produit fissile, puis séparer le film après l'irradiation. Ce procédé a été employé lorsque les matériaux détecteurs sont des métaux monocristallins (cyanamide d'argent, thiocyanates d'argent et de mercure, picrate de potassium et de thallium) [Ch-1] ou polycristallins : oxyde d'urane [Wh-1], Al [Ke-1], [Ke-2], Cr et Ge [Bi-1], Ir [Pr-11].

L'uranium naturel est le matériau fissile le plus utilisé :

— lorsqu'il s'agit de matériaux isolants à structure lamellaire (mica, molybdénite), la seule possibilité est de faire un dépôt de produit fissile sur le solide; après l'irradiation, celui-ci est séparé et clivé;

— enfin, on peut faire des assemblages de plusieurs détecteurs. Ainsi, CISLAK [Ci-1] introduit entre deux feuilles de mica clivé une feuille d'aluminium de $200 \mu\text{g}/\text{cm}^2$ d'épaisseur massive, recouverte sur une de ses faces par une couche de $20 \mu\text{g}/\text{cm}^2$ d'élément cible (cette couche est déposée par vaporisation électrique pour l'uranium naturel, et par évaporation thermique pour le bismuth, le plomb, l'or et le cuivre.)

3 - NEUTRONS THERMIQUES

Pour la dosimétrie des neutrons thermiques, on a utilisé plusieurs dispositifs selon la fluence neutronique :

— pour les fluences faibles, on place le matériau fissile sur l'une des faces du détecteur; l'épaisseur de la couche fissile est fonction de la valeur de la fluence;

— pour les fluences intenses, le matériau cible (uranium) est incorporé dans le détecteur en quantités variables selon la valeur de la fluence. On peut également utiliser l'uranium présent dans les micas sous forme d'impuretés.

Dans ce dernier cas, on se heurte à une difficulté : les micas deviennent radioactifs à partir de 10^{18} n/cm².

D'autre part, il faut sélectionner des feuilles de mica dont les impuretés sont réparties d'une manière uniforme [Mo-1].

Les tableaux IX et X résument les différents assemblages utilisés avec les micas et les plastiques pour la mesure de fluences de neutrons thermiques comprises entre 10^3 et 10^{21} neutrons/cm².

FLEISCHER [Fl-25] emploie tout simplement des lamelles de microscope. L'étalonnage de chaque verre se fait selon sa teneur en uranium, existant sous la forme d'impuretés. La condition principale est que la concentration de l'uranium soit uniforme.

TABLEAU IX
DISPOSITIFS POUR LES MICAS [De-9]

Fluence de neutrons thermiques/cm ²	Matériau fissile	Mode d'observation
2.10 ³ - 2.10 ⁸	uranium enrichi, cible épaisse, $e > 10 \mu\text{m}$	m.o.
3.10 ⁵ - 3.10 ¹⁰	uranium naturel, cible épaisse	m.o.
10 ¹⁰ - 3.10 ¹⁴	uranium naturel, cible épaisse	m.e.
10 ⁸ - 10 ¹³	uranium naturel, cible mince ($\approx 200 \text{ \AA}$)	m.o.
10 ¹³ - 10 ¹⁷	uranium naturel, cible mince	m.e.
10 ⁹ - 10 ²¹	impuretés d'uranium dans les micas naturels ($C = 10^{-11}$ atome)	m.o.

m.o. = microscope optique m.e. = microscope électronique

TABLEAU X
DISPOSITIFS POUR LES PLASTIQUES ET LES VERRES [Mo-1]

10 ³ à 10 ⁹ n/cm ²	Uranium enrichi d'épaisseur infinie + plastique aluminisé
10 ⁸ à 10 ¹³ n/cm ²	Uranium naturel, cible de 100 Å à 200 Å d'épaisseur + plastique aluminisé au mica
7.10 ¹² à 10 ¹⁶ n/cm ²	Verre + 10 ⁻⁴ ou 10 ⁻⁶ atomes d'uranium alliage (aluminium + 10 ⁻⁷ U) + mica

4 - NEUTRONS INTERMÉDIAIRES - NEUTRONS RAPIDES

Leur détection est plus difficile. On a d'abord employé du mica, contenant un peu d'uranium [Pr-10]. Si l'on suppose que la densité d'atomes fissiles et que le parcours moyen L des fragments de fission sont constants, le nombre de traces H qui traversent un plan est tel que :

$$H = L \cdot \Sigma \cdot \Phi$$

Σ = section efficace macroscopique de fission,
 Φ = fluence des neutrons.

La fission peut se produire sur ²³⁵U ou sur ²³⁸U, ou dans les deux matériaux en même temps. L'équation qui précède s'écrit donc :

$$H = L t_0 \int_0^\infty [\Sigma_5 + \Sigma_8] \Phi(E) dE$$

avec :

$$\Phi = \int_0^{\infty} \Phi(E) dE.$$

Dans l'uranium naturel, 0,5 % du nombre total des fissions provient de ^{238}U , 2,5 % sont dues aux neutrons épithermiques ($\geq 0,414$ eV); on commet une erreur de 3 % si l'on considère que tout est dû à la fission de ^{235}U par les neutrons thermiques.

Dans un échantillon entouré d'une plaque protectrice de cadmium qui absorbe les neutrons de moins de 0,5 eV, 80 % du nombre total des fissions proviennent de la fission de ^{235}U par les neutrons épithermiques, et 20 % proviennent de la fission de ^{238}U par les neutrons rapides. Pour cette raison, l'emploi de ce détecteur comme contrôleur de flux de neutrons exige la connaissance du spectre des neutrons, et l'on retrouve — évidemment — les difficultés habituelles de la dosimétrie neutronique.

En déposant un dépôt fissile d'uranium naturel appauvri en ^{235}U sur le détecteur, on peut mesurer des neutrons rapides d'énergie supérieure à 1 MeV [Pr-10]; le procédé présente deux avantages :

- la réduction de la teneur en ^{235}U permet d'éliminer la forte contribution des neutrons épithermiques qui provoquent la fission de ^{235}U ;
- la protection de cadmium n'est plus nécessaire.

5 - EXEMPLES DE RÉALISATIONS PRATIQUES

On peut modifier de manière presque continue les paramètres des détecteurs, et c'est ce qui explique en partie le grand nombre de publications consacrées à ce sujet. Il est nécessaire de trier l'essentiel, et je présenterai ici quatre types de dosimètres, particulièrement représentatifs de la technique que je viens d'exposer.

1° Le dosimètre de FLEISCHER, PRICE et WALKER [Fl-3], [Fl-4].

Il est utilisable pour les neutrons lents et rapides.

Le dosimètre est constitué par une feuille de mica de faible épaisseur recouverte par une feuille de matière fissile.

D'après la technique déjà citée, lorsqu'on veut mesurer des fluences importantes de neutrons, on enlève la couverture fissile et on utilise comme matériau cible les impuretés d'uranium contenues dans le solide.

En utilisant deux dosimètres dont l'un est entouré d'une feuille de cadmium destinée à arrêter les neutrons thermiques, il est possible de mesurer séparément les doses de neutrons thermiques et de neutrons de plus grande énergie. Un dénombrement des traces contenues dans la feuille de mica permet de déterminer la densité ρ de ces traces.

En supposant que l'on peut mesurer au microscope une densité de traces ρ comprise entre 10 et 10^6 traces/cm², on obtient les doses maximales et minimales détectables indiquées dans le tableau XI.

TABLEAU XI

DOSES DE NEUTRONS DÉTECTABLES À PARTIR DES DOSIMÈTRES DE FLEISCHER, PRICE ET WALKER [Fl-14]

Matière fissile	Dose minimale détectable		Dose maximale détectable	
	Neutrons thermiques	Neutrons de 1 MeV	Neutrons thermiques	Neutrons de 1 MeV
2 mg/cm ² (plaque d'U) 20 µg/cm ² (film d'U) 10 ⁻⁷ atome % dans un solide	0,5 mrem 50 mrem 5.10 ⁵ rems 5.10 ¹⁴ n/cm ²	100 mrem 10 mrem 1,6.10 ⁸ rems 4.10 ¹⁸ n/cm ²	50 mrem 5.10 ³ rems 5.10 ¹⁰ rems 5.10 ¹⁹ n/cm ²	10 ⁴ rems 10 ⁶ rems 1,6.10 ¹³ rems 4.10 ²⁰ n/cm ²

Les valeurs de ce tableau correspondent à un détecteur de mica, préalablement recuit pendant plusieurs heures à 500 °C, pour supprimer les traces induites par la fission spontanée des impuretés d'uranium.

²⁰ Le dosimètre en matière plastique de BAUMGARTNER [Ba-3], [Ba-4], [Ba-5], [Ba-6].

Il est utilisable pour les neutrons thermiques et intermédiaires.

BAUMGARTNER définit trois critères de choix du matériau fissile :

- le seuil de la réaction de fission doit être inférieur à 0,7 MeV;
- la réponse de la feuille doit être indépendante de l'énergie des neutrons;
- il faut pouvoir évaluer la dose de neutrons thermiques et rapides et obtenir une indication sur le nombre de neutrons intermédiaires.

Si l'on examine les courbes de sections efficaces de fission pour différents isotopes en fonction de l'énergie des neutrons (de 0 à 10 MeV), on constate qu'aucun élément ne satisfait, à la fois, à ces trois critères.

Les principaux matériaux fissiles utilisés sont ²³⁵U, ²³⁸U et ²³²Th; seul ²³⁵U est fissile aux neutrons thermiques.

²³⁸U et ²³²Th ne satisfont pas au premier critère car leur seuil se situe au-dessus de 0,7 MeV (0,75 MeV pour ²³⁸U et 1,5 MeV pour ²³²Th). Le neptunium ²³⁷ possède un seuil de 0,4 MeV mais il est instable chimiquement; dans l'air, il est transformé en oxyde; on peut cependant utiliser cet oxyde en le mélangeant au produit détecteur (résine plastique); la préparation est longue (de un à deux jours) et la concentration d'oxyde de neptunium est élevée (environ 35 mg/cm²).

Aussi, pour réaliser un prototype de dosimètre capable de mesurer des flux de neutrons de différentes énergies, doit-on envisager l'emploi d'une combinaison de plusieurs matières fissiles.

Les caractéristiques limites de détection sont fonction de l'énergie des neutrons, de la nature du matériau et de la surface du détecteur exposé aux neutrons. Le tableau XII donne ces caractéristiques.

Si l'on compare les résultats des tableaux XI et XII, on constate que le détecteur plastique de BAUMGARTNER est beaucoup plus sensible aux neutrons que le

dosimètre au mica de FLEISCHER : ainsi, le lexan détecte des doses minimales de neutrons thermiques (8.10^{-7} rem) environ mille fois moins fortes que celles du mica (5.10^{-4} rem). Ce résultat s'explique par la différence de sensibilité d'enregistrement entre les micas et les plastiques.

TABLEAU XII

Feuille fissile	Energie des neutrons	Limite inférieure de détection	
		Flux	Dose
^{235}U	Thermiques	3.10^3 n/cm^2	8.10^{-7} rem
	1 MeV	3.10^5 n/cm^2	7.10^{-4} rem
^{233}U	2 à 6 MeV	3.10^5 n/cm^2	1.10^{-3} rem
^{232}Th	3 à 6 MeV	1.10^7 n/cm^2	5.10^{-4} rem
^{237}Np	1 à 5 MeV	1.10^6 n/cm^2	5.10^{-3} rem

BAUMGARTNER [Ba-3] a mis au point plusieurs prototypes de dosimètres, sans préciser toutefois l'intérêt pratique de chaque prototype.

Je donnerai cinq réalisations de BAUMGARTNER [Ba-3].

FIG. 30. — Dosimètre à plusieurs unités, BAUMGARTNER [Ba-3].

a) *Figure 30* : assemblage vertical de plusieurs dosimètres ($\Phi = 0,5$ cm, $e = 0,12$ cm) séparés par une feuille d'isolant plastique 3 fois plus épaisse que chacun de ces dosimètres.

FIG. 31. — Dosimètre cylindrique à feuilles multiples, BAUMGARTNER [Ba-3].

b) *Figure 31* : dosimètre cylindrique. Par rapport au faible encombrement, la surface de détection est très importante.

FIG. 32. — Dosimètre sphérique de BAUMGARTNER [Ba-3].

c) *Figure 32* : dosimètre sphérique. La réalisation est complexe, le procédé de lecture peu pratique. Il est difficile d'obtenir, par évaporation, une sphère de matière fissile, et l'emploi du microscope optique nécessite le découpage de la sphère plastique détectrice en fragments suffisamment flexibles pour que l'observation de l'échantillon se fasse dans un même plan.

d) *Figure 33* : Ce dosimètre à feuilles multiples comporte 4 plaques de matériau fissile de quelques millimètres de côté. Avec une seule couche fissile, ce dosimètre peut mesurer des doses de neutrons égales ou supérieures à une dizaine de rems.

FIG. 33. — Dosimètre à feuilles multiples [Ba-3].

e) *Figure 34* : prototype plus complet de dosimètres à « feuilles multiples »; ses dimensions sont les suivantes : longueur 7,62 cm, largeur 2,54 cm, épaisseur 0,635 cm. Grâce à l'emploi conjugué de plusieurs feuilles fissiles ^{235}U , ^{238}U et $^{237}\text{NpO}_2$ pour une seule feuille détectrice de plastique lexan, on peut déterminer les doses de neutrons rapides, intermédiaires et thermiques. Mais ce dosimètre, à cause du neptunium qui est radioactif, présente au contact un débit de dose D de 15 mR/h; actuellement, on se préoccupe d'abaisser ce débit de dose à 1 mR/h pour son emploi en dosimétrie du personnel, en réduisant d'un facteur 5 la quantité de matière fissile, et en utilisant des emballages de plomb et de cuivre.

A partir d'une valeur D de 1 mR/h, les dosimètres à détecteurs solides de traces pourront être utilisés en dosimétrie du personnel.

3° Détecteurs à seuils

Ils conviendront pour les neutrons rapides.

KERR et STRICKLER [Ke-3] ont repris l'idée des détecteurs à seuil de HURST au T.D.U. [Hu-1], [Hu-2]. On emploie une série de matériaux dans lesquels les neutrons induisent des réactions nucléaires à seuils. On peut citer, parmi eux :

- ^{197}Au recouvert de cadmium, pour les neutrons thermiques,
- ^{239}Pu recouvert de bore (^{10}B) pour les neutrons rapides,
- ^{237}Np pour les neutrons d'énergies supérieures à 0,75 MeV,
- ^{238}U pour les neutrons d'énergies supérieures à 1,5 MeV,
- ^{32}S pour les neutrons d'énergies supérieures à 2,5 MeV.

KERR et STRICKLER remplacent les détecteurs à scintillations employés par HURST par une série de feuilles de détecteurs solides, accolées aux feuilles de matériau fissile; ils enregistrent ainsi, sélectivement, les traces des fragments de fission. L'emploi de feuilles fissiles de ^{239}Pu , ^{237}Np et ^{238}U , de 30, 50 et 300 $\mu\text{g}/\text{cm}^2$ d'épaisseur massique, respectivement, permet de mesurer des doses de neutrons rapides de 10 à 10^4 rads.

FIG. 34. — Prototype de dosimètres à feuilles multiples [Ba-4].

L'ensemble est placé dans un cylindre de bore situé à l'intérieur d'une sphère de Cd. Pour des épaisseurs données de l'enveloppe de bore, on étudie la variation de la section efficace de fission de ^{239}Pu en fonction de l'énergie des neutrons.

Par rapport au T.D.U., cette méthode a deux avantages :

- on élimine tout système de comptage électronique,
- il n'est pas nécessaire d'analyser les résultats aussitôt après l'expérience, puisqu'il ne s'agit plus d'une mesure de décroissance radioactive.

Toutefois, les détecteurs de Au et S ne sont plus utilisables.

4° Les verres dosimètres

A l'aide de verres radiophotoluminescents, employés comme détecteurs solides de traces, BECKER [Be-2] [Be-3] a mesuré des doses de neutrons d'énergie comprise entre 0,025 eV et 14 MeV.

Pour l'irradiation aux neutrons thermiques, un verre japonais est accolé à une feuille d'uranium 235 dont l'épaisseur (30 μm) est grande par rapport au parcours des fragments de fission dans l'uranium. Le nombre maximal des traces obtenues (7.10^3 traces par mm^2) équivaut à une fluence de l'ordre de 2.10^8 neutrons/ cm^2 . Pour la mesure de fluences plus intenses, BECKER envisage :

- un temps d'attaque réduit et un plus fort grossissement microscopique,
- l'emploi de couches fissiles de faible épaisseur : ces couches peuvent être déposées par électrolyse sur des plaques métalliques non fissiles; leur épaisseur est alors inférieure au parcours maximal des fragments de fission dans le matériau fissile,
- l'emploi de matières fissiles diluées comme des composés chimiques ou des alliages,
- l'utilisation de matériaux absorbants entre la feuille fissile et le verre dosimètre. Une feuille de mylar de 13 μm d'épaisseur abaisse d'un facteur 19 la forte sensibilité aux neutrons thermiques de la combinaison verre-feuille de ^{235}U .

Pour la dosimétrie des neutrons rapides, les limites de sensibilité peuvent varier selon le choix des matériaux fissiles.

Le prix de revient de ^{239}Pu et de ^{237}Np est élevé; c'est pourquoi BECKER préconise l'utilisation de l'uranium 238 et du thorium 232.

En général, la précision est de 15 %. Pour les faibles densités, elle peut être diminuée jusqu'à 25 %.

6 - CONCLUSION

Ces détecteurs offrent la possibilité de réaliser des dosimètres pour la protection du personnel. Les matières fissiles à seuil, les matières plastiques, laissent espérer une amélioration de la sensibilité et de la précision des mesures de flux de neutrons. Outre l'amélioration des procédés de lecture, certains problèmes restent à résoudre. C'est le cas pour la mesure précise de la quantité de matière fissile.

Remarque. L'utilisation de ces détecteurs comme dosimètres ne se limite pas à la radioprotection. Des essais portent sur la mesure de doses élevées de rayons gamma. Le principe consiste à effectuer un développement dans des conditions toujours rigoureusement identiques : on mesure l'épaisseur du matériau avant et

après le développement; la variation de la vitesse d'attaque en fonction de la dose fait que l'on peut remonter, après étalonnage, aux doses absorbées.

Le nitrate de cellulose est utilisable de 10^6 à 10^8 rads, le polycarbonate de 10^7 à 10^8 rads [Fr-2].

GÉOCHRONOLOGIE-ASTROPHYSIQUE

Dès 1962, PRICE et WALKER ont prouvé l'existence de traces fossiles dans les minéraux naturels. On distingue deux types de minéraux :

— les minéraux ordinaires, constitués d'éléments légers, de nombres atomiques inférieurs à 30, qui renferment des impuretés fossiles d'éléments lourds (uranium en général) : c'est le cas de la plupart des silicates minéraux,

— les minéraux spéciaux de type « cérusite », qui contiennent des éléments lourds autres que l'uranium, tels que le plomb.

Dans ces deux types de minéraux, les « traces fossiles » sont créées par :

- la fission spontanée des impuretés fissiles,
- la fission des éléments lourds, induite par la radioactivité artificielle ou par les rayons cosmiques,
- des noyaux de recul dus à l'interaction des rayons cosmiques de hautes énergies.

Dans la cérusite, MAURETTE [Ma-5] a mesuré en fonction de la distance au sol les densités des traces des fragments de fission induits par les rayons cosmiques (tableau XIII).

TABLEAU XIII

DENSITÉS DE TRACES DE FISSION PRODUITES DANS LA CÉRUSITE (PbCO_3)
PAR LE RAYONNEMENT COSMIQUE (à 55° de latitude) [Ma-5]

Altitude	Traces de fission induite par cm^2 pour 10^6 ans	Fraction d'atome d'uranium pouvant produire le même nombre de traces
3 500 m (air)	$4,1 \cdot 10^4$	$1,8 \cdot 10^{-5}$
0	$3,6 \cdot 10^8$	$1,6 \cdot 10^{-6}$
— 8 m (eau)	75	$3,3 \cdot 10^{-8}$
— 20 m (eau)	17,3	$7,7 \cdot 10^{-9}$
— 60 m (eau)	9,9	$4,4 \cdot 10^{-9}$
— 600 m (eau)	0,25	$1 \cdot 10^{-10}$

— A la surface terrestre, les fissions induites sont dues aux neutrons produits par le rayonnement cosmique.

— A partir d'une profondeur équivalente de 8 m d'eau, les fissions proviennent certainement de l'action des muons.

10 PROCÉDÉ DE DATATION DE COMPOSÉS MINÉRAUX

Le principe consiste à étudier les traces fossiles de fission spontanée et à les comparer à d'autres types de traces. On se reportera à [Du-1], [Fl-8], [Fl-9], [Fl-13], [Fl-17], [Ma-2], [Pr-7].

a) *Datation par irradiation neutronique*

Considérons un échantillon cristallin (mica, par exemple) qui permet la détection des fragments de fission. Soit ρ_{TF} la densité des traces fossiles des fragments de fission par unité de surface. On irradie l'échantillon par les neutrons thermiques d'un réacteur (fluence = n_t) : il apparaît de nouvelles traces de fission, dont la densité par unité de surface est ρ_{TP} .

Si t est l'âge de l'échantillon, c'est-à-dire le temps qui s'est écoulé entre sa solidification et la mesure effective, un calcul simple donne :

$$t = \frac{n_t \sigma_{f235}}{\lambda_F} \cdot \frac{C_{235}}{C_{238}} \cdot \frac{\rho_{TF}}{\rho_{TP}}$$

σ_{f235} , étant la section efficace de la fission de ^{235}U par les neutrons thermiques,

λ_F , la constante radioactive de fission spontanée de ^{238}U ,

C_{235} , la concentration de l'isotope 235 dans l'uranium, au moment de la mesure,

C_{238} , la concentration de l'isotope 238 dans l'uranium, au moment de la mesure.

Les possibilités de mesure dépendent, avant tout, de la teneur de l'échantillon en uranium : pour une concentration de 10^{-6} , l'échantillon doit avoir au moins 10^6 ans [Fl-18] pour que la densité des traces soit facilement mesurable.

Cette méthode de datation est employée en géochronologie pour mesurer des âges compris entre 6 mois et $1,4 \cdot 10^9$ ans. En fait, le domaine de précision maximale de la méthode se situe entre 10^4 et 10^7 ans, domaine qui est mal couvert par les autres méthodes de datation. Jusqu'à 10^8 ans, les résultats obtenus sont en bon accord avec ceux établis par d'autres méthodes de datation, telle que la méthode classique au potassium-argon [Pa-1]. La figure 35 permet de se rendre compte de ce fait [Du-1], [Fl-20].

— Les âges des verres naturels [Fl-7], [Fl-13], [Fl-22] ou artificiels [Br-2] ont été déterminés sur un intervalle de temps de 6 mois à $34 \cdot 10^6$ ans.

— Pour les zircons [Fl-14] vieux de $80 \cdot 10^6$ ans et de $125 \cdot 10^6$ ans, les valeurs trouvées correspondent à celles obtenues par les méthodes classiques de décroissance radioactive.

— On a pu confirmer que les tectites seraient arrivées sur Terre à l'époque où s'est effectuée une solidification générale des matériaux [Ba-1], [Za-1].

— Enfin, des objets aussi variés qu'un chandelier du XIX^e siècle contenant 0,6 % de trioxyde d'uranium [Br-2] ou qu'un couteau mésolithique [Fl-27] ont pu être datés grâce à la méthode des traces de fission.

Cependant, au-dessus de 10^8 années, les résultats sont très différents de ceux obtenus par les méthodes classiques de datation; deux causes principales d'erreur peuvent expliquer ces désaccords [Ma-5] :

— une variation de la teneur en uranium pendant l'histoire du minéral; on peut admettre que l'uranium, même à l'état de solution extrêmement diluée,

a circulé dans les roches depuis leur cristallation; cette variation correspondrait à un enrichissement en uranium car les âges mesurés présentent le plus souvent d'importantes erreurs par défaut.

— une disparition possible des traces de fission due à un échauffement passager du minéral depuis sa cristallisation. Des expériences de recuit confirment cette hypothèse : dans le muscovite et le phlogopite, les densités et les longueurs des traces de fission, non attaquées à l'acide fluorhydrique, diminuent après un chauffage d'une heure à 400 °C [Pr-1].

FIG. 35. — Comparaison des âges obtenus par la méthode des traces à ceux obtenus par les méthodes [K-Ar] et [Rb-Sr]. D'après [Fl-23].

Les échantillons de moins de 1 000 ans ont été prélevés sur ces objets faits par l'homme, les autres sont géologiques.

En conclusion, on peut affirmer que cette méthode de datation ne donne, à ce jour, de résultats acceptables que pour les minéraux géologiquement récents ($< 10^8$ ans). Avec des teneurs en uranium de l'ordre de 10^{-6} on peut mesurer avec une bonne précision des âges compris entre 10^5 et 10^8 ans.

b) *Datation par désintégration radioactive*

En 1967, WALKER a proposé une nouvelle méthode de datation, fondée sur la découverte des traces courtes produites par les *noyaux de recul* qui accompagnent l'émission de la particule α lors de la désintégration de l'uranium et du thorium. Cette méthode est environ 3 000 fois plus sensible que celle basée sur les fragments de fission. Elle doit permettre de mesurer l'âge de n'importe quel objet fabriqué par l'homme, dont la concentration en uranium est d'au moins 10^{-6} . On peut donc envisager l'application de cette méthode à la détection d'objets d'origine récente et de matériaux anciens à très faible teneur en uranium.

2° ÉTUDE DES TRACES INDUITES PAR LES RAYONS COSMIQUES DANS LES MINÉRAUX D'ORIGINE EXTRATERRESTRE

a) *Cas des météorites* [Fl-18], [Fl-20], [Ma-1], [Ma-5].

Les traces peuvent avoir plusieurs origines possibles :

1. fission spontanée de ^{238}U (traces longues),
2. fission spontanée de ^{244}Pu (traces longues),
3. fission induite des éléments lourds (Pb, Th) pour les particules chargées de grande énergie du rayonnement cosmique (traces en forme de V),
4. noyaux de recul des éléments lourds et moyennement légers, dus aux réactions de spallation induites par le rayonnement cosmique (traces courtes),
5. ions lourds du rayonnement cosmique primaire (traces longues),
6. mésons des rayons cosmiques de haute énergie (il semble cependant que la fréquence de ces traces, même dans les méthodes les plus anciennes, soit extrêmement faible [Be-1],
7. monopôles magnétiques de DIRAC [Ma-5], particules actuellement hypothétiques. Les calculs ont montré que des pôles magnétiques doublement chargés devraient produire des traces de 30 cm de long à l'intérieur des météorites [Fl-18].

Selon les cas, l'apparence, la densité, la distribution des longueurs et la distribution angulaire des traces varient fortement. De plus, l'échauffement de la météorite au cours de la traversée de l'atmosphère terrestre, peut faire disparaître les traces, jusqu'à plus de 3 mm de la surface frontale [Ch-3], [Ch-4], [Fl-23] : la figure 36 [Fl-23] représente la distribution des traces obtenues dans un échantillon d'australite sphérique, après des expériences de parcours simulé dans l'atmosphère terrestre.

La fission spontanée de l'isotope, maintenant éteint, du plutonium (^{244}Pu , émetteur α de période 76.10^6 ans) est 4.10^6 fois plus probable que celle de ^{238}U [Fl-18], [Fl-29] : une faible quantité de ^{244}Pu a pu produire un nombre important de traces ; ces traces ont toutes la même longueur et sont réparties de façon isotrope. Leur formation date de la phase de refroidissement des météorites qui a succédé à l'éclatement du système solaire. Il est possible de connaître l'intervalle de temps ΔT_0 qui sépare la fin de la formation de l'uranium et du plutonium dans

notre système solaire et la cristallisation des minéraux composant les météorites (phase de refroidissement).

FIG. 36. — Distribution de traces dans une australite qui a subi une ablation pour simuler son entrée dans l'atmosphère terrestre [Fl-23].

Les parties frontales qui ne contiennent pas de traces, ont été découpées en morceaux pour tenir compte de l'échauffement du météorite.

Mouvement relatif de l'air : de droite à gauche. Observation de l'échantillon en coupe transversale.

ΔT_0 est donnée par la formule [Fo-1], [Ko-2] :

$$\Delta T_0 (10^6 \text{ ans}) = 112 \text{ Log } \left[306 \frac{\rho_U}{\rho_{Pu}} \right]$$

ρ_U étant la densité des traces par unité de surface, pour ^{238}U

ρ_{Pu} étant la densité des traces par unité de surface pour ^{244}Pu .

Enfin, on peut déterminer, dans la météorite, les traces dues à la fission spontanée de ^{244}Pu : l'étude des « traces de bruit de fond » dans les minéraux extra-terrestres doit permettre de mesurer l'influence des noyaux très lourds du flux primaire du rayonnement cosmique, et de classer les météorites selon l'intervalle de temps qui sépare la fin de la nucléo-synthèse de la cristallisation des minéraux.

b) *Cas des roches lunaires*

Les expéditions Apollo XI et XII ont permis de disposer d'une quantité assez considérable de roches et poussières lunaires. Il est encore trop tôt pour connaître les résultats obtenus, mais les matériaux lunaires devraient permettre

d'obtenir un certain nombre de renseignements sur la vitesse d'érosion du sol lunaire, l'âge de solidification de la surface lunaire, le rôle et l'importance du rayonnement cosmique primaire.

Le dépouillement systématique de ces données a été préparé au moyen d'une série d'étalonnages, effectués au moyen de particules de nature et d'énergie bien connues. Citons deux séries d'opérations préliminaires :

a) Lames cristallines de 30 microns d'épaisseur, de feldspath, pyroxène, quartz et apatite irradiées par des ions de Ne et Ar (HILAC de BERKELEY) d'énergies allant jusqu'à $10,2 \text{ MeV/uma}$. Les irradiations ont été effectuées jusqu'à $1,6 \cdot 10^{13}$ ions Ar/cm² et $4,0 \cdot 10^{13}$ ions Ne/cm² [Se-4].

b) Cristaux d'hypersthène et d'enstatite irradiés par des protons ($5 \cdot 10^{15}/\text{cm}^2$) et des particules α ($10^{15}/\text{cm}^2$) jusqu'à des énergies de $7,5 \text{ MeV/uma}$ [Cr-5].

CRISTALLOGRAPHIE

Ces applications sont encore assez peu nombreuses.

1) On peut employer les détecteurs solides de traces (nitrate de cellulose) pour étudier la rétrodiffusion de particules α depuis un monocristal, en fonction de l'angle de diffusion (énergies des α égale ou inférieure à 4 MeV) [Ma-9].

FIG. 37. — Dispositif de mesure employé par MARSDEN *et alii* [Ma-9].

Le dispositif employé par MARSDEN *et alii* [Ma-9] est présenté sur la figure 37. Il se trouve que les particules α diffusées *vers l'arrière* ne peuvent quitter le cristal exactement selon les axes et les plans cristallins : là où les axes et les plans coupent la surface du détecteur plastique, la densité des particules α doit être particulièrement faible et, par contre, partout ailleurs, la densité des traces α doit être élevée.

On trouvera sur la figure 38 un exemple des résultats obtenus par MARSDEN *et alii* autour de l'axe $\langle 111 \rangle$ d'un cristal d'arséniure de gallium (cristal cubique).

On peut tirer de ce cliché des résultats quantitatifs précis concernant cet effet de « blocage » des particules α .

FIG. 38. — Diagramme de « blocage » des particules α autour de l'axe $\langle 111 \rangle$ d'un monocristal d'arséniure de gallium. Le halo blanc qui entoure le trou central dans le diagramme est dû aux particules α diffusées depuis l'ouverture du canal du faisceau frappant la partie arrière de la plaque de nitrate de cellulose [Ma-9].

2) Dans le même ordre d'idées, on peut employer les particules α pour étudier l'effet « canal » dans les cristaux métalliques. Les particules α sont émises isotropiquement par des sources réalisées à partir de dépôts d'américium 241 ($E_{\max} \approx 4,5$ MeV). Une lame mince polycristalline du métal à étudier est posée sur cette source. Les particules α qui la traversent sont enregistrées par une feuille de nitrate de cellulose posée sur l'ensemble [Qu-1].

Cette technique permet diverses applications en métallurgie. L'une d'elles est l'étude des figures géométriques qui apparaissent dans certaines conditions sur les « alphagraphics » de l'échantillon cristallin.

La géométrie des figures (triangles, croix) peut être liée directement à la texture cristallographique de l'échantillon. Elles sont formées par les impacts, sur le nitrate de cellulose, des particules α que traversent le cristal métallique par canalisation planaire. Leur présence n'est observée qu'après un recuit de l'échantillon métallique dans une atmosphère gazeuse.

JOUSSET *et alii* [Jo-1] ont mesuré la variation sur le nitrate de cellulose des dimensions de ces figures avec la température de la pose, en employant un microscope optique. Contrairement à ce que l'on pensait antérieurement, le nitrate de cellulose enregistre, sous vide, les particules α à des températures aussi basses que 4,2 °K.

FIG. 39. — Coupe schématique d'un spectrographe.

3) On peut suggérer, dans ce domaine, des études sur le mode de détection en fonction de l'orientation du cristal-cible par rapport à la direction en fonction de la particule incidente. On ne connaît pas de recherches sur cette question; il y a beaucoup de travail à faire dans ce domaine.

PHYSIQUE DES AÉROSOLS

Ces détecteurs solides de traces sont capables de se substituer à l'émulsion photographique pour la détection des traces de particules α . Mac LAUGHLIN [La-2] a employé ce procédé pour mesurer les mobilités des descendants du radon en montant sur l'électrode collectrice du spectrographe de mobilité une lame de nitrate de cellulose. La figure 39 présente le dispositif expérimental de l'auteur. Ce dispositif ne présente par ailleurs aucune originalité particulière. La feuille d'aluminium au-dessus de la plaque de matière plastique a pour but de ralentir les particules α de RaA (5,99 MeV) et de RaC' (7,68 MeV) afin de leur permettre d'être enregistrées par la matière plastique.

CONCLUSION

La liste des applications qui précède n'est certes pas limitative. Il est curieux de constater que peu d'essais ont été effectués dans le domaine de la biologie. On peut cependant signaler l'emploi de films minces irradiés frontalement comme filtres cellulaires. Les cellules saines du sang traversent ce matériau en suivant les traces qui s'y sont formées, tandis que les cellules cancéreuses, de plus grande taille, sont arrêtées. On doit pouvoir appliquer ces membranes poreuses à de nombreux problèmes d'écoulement.

Il n'est pas douteux que l'avenir proche verra un développement des domaines d'emploi de ces détecteurs.

J'ai déjà eu l'occasion, au fur et à mesure de l'exposé, d'analyser un certain nombre de domaines de recherches à suivre. J'ajouterai, que, *dans l'immédiat*, deux perfectionnements technologiques sont indispensables si l'on veut aller plus loin :

a) La rationalisation systématique et la sensibilisation des opérations de développement, afin de les rendre absolument reproductibles.

b) La réalisation de matériaux plastiques plus homogènes, et surtout de caractéristiques bien reproductibles (cas du nitrate de cellulose, par exemple) et la découverte de nouveaux matériaux sensibles.