UN DÉTECTEUR SOLIDE DE TRACES : LE TRIACÉTATE DE CELLULOSE

J.C. VAREILLE et J.L. TEYSSIER*

(Manuscrit reçu le 9 octobre 1972)

RÉSUMÉ

Le triacétate de cellulose (Bayer triafol T.N.) est étudié comme détecteur visuel solide de traces de particules chargées (particules α , fragments de fission du californium, ions néon, argon, krypton et azote). On montre que :

— Le rapport d'attaque R_T augmente lorsque la température diminue et lorsque la normalité de l'agent chimique croît. La présence de plastifiant dans le matériau détecteur accroît R_T d'un facteur 2,5.

— L'énergie d'activation de la réaction « potasse-zone endommagée » par le passage de la particule chargée augmente quand le transfert linéique d'énergie diminue.

— L'énergie maximale d'enregistrement est de 4 MeV pour les particules α et un développement par la potasse 4 fois normale à 60 °C.

Enfin, le détecteur est étalonné pour discriminer en énergie les particules α avec une résolution de 500 keV.

ABSTRACT

Cellulose triacetate (Bayer triafol T.N.) is studied as solid state track detectors of charged particles (alpha particles, fission fragments of californium and accelerated heavy ions : argon, neon, krypton and nitrogen). We prove that :

— Etch rate ratio R_T increases when temperature of the etchant is decreased and when the concentration of the etchant is increased.

— As energy loss is increased activation energy for track etching decreases.

— Critical energy is 4 MeV for alpha particles when the etching reagent is KOH, 4N, 60 °C.

Discrimination of alpha particles of different energies is made by this detector with 500 keV resolution.

Plusieurs articles, parus dans cette revue [1,2,3] ont attiré l'attention sur les qualités des détecteurs solides de traces et sur leurs possibilités d'emploi dans des disciplines très différentes (dosimétrie neutronique, géochronologie, cristallographie, ...).

Nous donnons ici un certain nombre de renseignements sur l'un de ces détecteurs. Il s'agit du triacétate de cellulose. Parmi les composés cellulosiques, nous l'avons préféré au nitrate qui a fait et fait encore l'objet de très nombreuses recher-

* Laboratoire des Radiations Ionisantes de l'Université de Limoges, 123, rue A.-Thomas, 87100 Limoges.

ches; quant au diacétate, sa faible sensibilité le rend peu commode d'emploi. Nous avons étudié un triacétate de cellulose sans plastifiant qui est commercialisé par la Société Bayer sous l'appellation triafol T.N.

Nous avons déterminé deux paramètres qui nous paraissent bien caractériser le matériau du point de vue de la détection :

- le rapport d'attaque R_T ,
- l'énergie maximale d'enregistrement E_M .

Nous avons employé la potasse comme agent chimique et les particules α , les fragments de fission du Californium 252, les ions argon, krypton, azote et néon pour irradier le détecteur.

I - LE RAPPORT D'ATTAQUE R_T

Il est défini comme le rapport de la vitesse moyenne d'attaque le long de la trace, $\bar{V}_T$, et de la vitesse moyenne d'attaque du matériau non irradié, ($\bar{V}_0$). En dépit de son caractère macroscopique, il fournit des renseignements intéressants puisqu'il dépend à la fois des conditions de l'attaque chimique, de la nature du matériau et de la particule incidente.

I - MÉTHODES DE MESURE DE R_T

Nous en avons utilisé trois. Les deux premières reposent sur le fait que R_T peut être relié à l'angle limite d'enregistrement θ_L , valeur que l'angle d'incidence de la particule ne doit pas dépasser pour que la trace soit révélée. On a :

$$\cos \theta_L = \frac{1}{R_T} + \frac{p_m}{L_M} \quad [6]$$

où p_m est la profondeur de champ du microscope; L_M est le parcours de la particule incidente dans le matériau.

Lorsque, comme c'est souvent le cas $L_M \gg p_m$,

$$\cos \theta_L \approx \frac{1}{R_T}$$

On a d'abord déterminé θ_L en étudiant les variations de l'efficacité de détection η en fonction de l'angle d'incidence θ de la particule incidente repéré par rapport à la normale à la surface du détecteur. η est défini comme le rapport des densités des traces D et D_0 correspondant respectivement aux angles d'incidence θ et 0. La figure 1 donne le résultat obtenu pour les particules α d'énergie 3 MeV et une solution de potasse 4 fois normale à 60 °C. De manière arbitraire, on prend comme valeur de θ_L l'angle correspondant à une efficacité de 50 %, soit :

$$(\theta_L)_\alpha = 72^\circ \pm 2^\circ \quad \text{ou} \quad (R_T)_\alpha = 3,2 \pm 0,3.$$

Dans son principe, la méthode n'a aucune limite; dans la pratique, au fur et à mesure que θ croît, D diminue; cela peut obliger à des durées d'irradiation prohibitives. Aussi, dans les conditions où nous opérons, ne peut-on espérer mesurer correctement des valeurs de R_T supérieures à 14,5.

FIG. 1. — Efficacité de détection des particules α en fonction de l'angle d'incidence sur le détecteur.

On a également irradié le détecteur sous toutes les incidences possibles à l'aide d'une source de particules quasi ponctuelle obtenue en utilisant un diaphragme de 1 mm de diamètre et de 20 μm d'épaisseur. La zone irradiée sur la surface du détecteur situé à la distance l du point source est délimitée par un cercle de rayon $\varrho = l \operatorname{tg} \theta_L$.

La mesure de ϱ fournit la valeur de θ_L . Dans les mêmes conditions que précédemment, nous avons obtenu :

$$(R_T)_\alpha = 2,7 \pm 0,3.$$

A cause de l'épaisseur non négligeable du diaphragme, la valeur maximale de R_T que l'on peut mesurer est de 3,9.

La dernière méthode est plus longue, mais d'une application beaucoup plus large : on détermine séparément $\bar{V}_g$ et $\bar{V}_T$:

— mesure de $\bar{V}_g$.

Le matériau présente une face lisse pratiquement exempte de défauts que nous avons choisie pour visualiser les traces; l'autre face est ornée de multiples défauts en formes d'algues. On doit donc s'attendre à une certaine inhomogé-

FIG. 2. — Variation d'épaisseur sur chaque face de la feuille de triafole en fonction du temps de développement dans une solution KOH (4N) à 60 °C.

néité du matériau. C'est ce que confirme la diminution d'épaisseur $\bar{\Delta e}$ du matériau pour chaque face en fonction de la durée de l'attaque chimique t (fig. 2). Cependant, comme les pentes des 2 droites sont pratiquement égales pour des temps de développement suffisamment élevés, le matériau est sans doute plus homogène en profondeur.

$\bar{\Delta e}$ est mesuré au comparateur avec une précision de 1 μm. La vitesse générale moyenne d'attaque $\bar{V}_g$ relative à chaque face est définie comme la pente de la partie linéaire de la courbe $\bar{\Delta e}(t)$ correspondante.

— mesure de $\bar{V}_T$

Nous donnerons ici les résultats obtenus pour les fragments de fission du californium 252, car leur taux d'attaque ne peut être déterminé que par l'intermédiaire de $\bar{V}_g$ et de $\bar{V}_T$. On détermine la loi de variation de la longueur L d'une trace en fonction de t . Par l'expérience on a accès aux longueurs L_p des

traces projetées sur la surface; à condition d'opérer sous une incidence donnée, fixée ici à 45° , on peut relier L_p et L de manière simple :

$$L(t) = L_p(t) \sqrt{2} + \bar{V}_g \sqrt{2} t \quad (t: \text{en heures}) \quad [4]$$

En fait, on prend en compte la valeur moyenne $\bar{L}_p$ des L_p , puis $\bar{L}$ des L sur 100 traces pour que la précision statistique soit bonne.

FIG. 3. — Histogramme des longueurs L_p des traces des fragments de fission légers pour un développement dans une solution de KOH (4N) à $60^\circ C$.

A titre d'exemple, on trouvera sur la figure 3 la répartition statistique de L_p pour $t = 12$ mn. Elle rend bien compte de la distribution énergétique des fragments de fission puisque ceux-ci sont de deux sortes (légers et lourds). La courbe $\bar{L}(t)$ (fig. 4) présente une partie linéaire, puis un palier qui correspond à la révélation totale de la trace. La vitesse d'attaque $\bar{V}_T$ est définie comme la pente de la partie linéaire. Nous avons consigné dans le tableau I les valeurs de $\bar{V}_g$, $\bar{V}_T$ et R_T obtenues avec une solution 4 fois normale de potasse à $60^\circ C$ pour les fragments de fission légers du Californium 252 et les particules α de 3 MeV.

TABLEAU I

Quelques valeurs de $\bar{V}_g$, $\bar{V}_T$ et R_T (KOH, 4N, 60 °C)

$\bar{V}_g$ ($\mu\text{m/h}$)	Particules incidentes	$\bar{V}_T$ ($\mu\text{m/h}$)	R_T
1,45	Fragments fission légers	45,5	31
	α (MeV)	4,3	3

On notera la bonne concordance des valeurs de $(R_T)_\alpha$ fournies par les trois méthodes : 3,2, 2,7 et 3.

FIG. 4. — Courbe $\bar{L}(t)$ pour les fragments de fission légers dans une solution de KOH (4N) à 60 °C.

2 - LE RÔLE DE LA PARTICULE INCIDENTE

Nous avons dans des conditions d'attaque déterminées (solution de KOH, 4N, à 60 °C), mesuré le rapport R_T pour :

- des particules α de 3 MeV,
- des ions azote de 15,4 MeV,
- des ions néon de 22 MeV,
- des ions argon de 44 MeV,
- des ions krypton de 92 MeV,
- des fragments de fission légers du ^{252}Cf (d'énergie moyenne 100 MeV).

On caractérise ces particules par leur transfert linéique d'énergie $\frac{dE}{dx}$. En fonction de ce paramètre, R_T croît d'abord relativement vite, puis semble tendre vers une limite (fig. 5); des constatations de ce genre ont été faites à plusieurs reprises [5] [7] [8] [9] [10].

FIG. 5. — Variation de R_T en fonction de la perte linéique d'énergie pour une solution de KOH (4N) à 60 °C.

Bien qu'une certaine prudence s'impose, du fait que $\frac{dE}{dx}$ n'est vraisemblablement pas, comme on le sait, le meilleur paramètre pour caractériser le comportement de la particule vis-à-vis du détecteur, on peut cependant avancer quelques hypothèses sur l'existence d'une valeur limite de R_T :

- la première concerne le matériau : on peut supposer qu'il se sature, c'est-à-dire qu'il existe une quantité maximale de dommages dans une trace latente.
- la seconde met en cause l'agent chimique : la vitesse de diffusion de l'agent chimique dans la trace pourrait être inférieure à la vitesse $\bar{V}_T$ réelle,

3 - LE RÔLE DE L'AGENT CHIMIQUE

Nous avons fait varier la concentration et la température de la potasse et nous avons dans chaque cas mesuré R_T à partir de $\bar{V}_g$ et $\bar{V}_T$.

Ces vitesses obéissent à la loi d'ARRHENIUS, c'est-à-dire que, quelle que soit la concentration de l'agent chimique, ce sont des fonctions de la température absolue T de la potasse de la forme :

$$\bar{V}_g = A \exp \left(-\frac{W}{kT} \right)$$

$$\bar{V}_T = B \exp \left(-\frac{W^*}{kT} \right)$$

W est l'énergie d'activation de la réaction potasse-matériau vierge. Nous avons trouvé : $W = 0,95$ eV.

W^* est l'énergie d'activation de la réaction potasse-matériau endommagé. Les valeurs de W^* pour différents ions sont consignées dans le tableau II.

TABLEAU II
QUELQUES VALEURS DE L'ÉNERGIE
D'ACTIVATION W^*

Ion	W^* (eV)
α (3 MeV)	0,76
N (15,4 MeV)	0,71
A (2 MeV)	0,63
Fragment de fission léger Cf (100 MeV)	0,48

k est la constante de BOLTZMANN, A et B des constantes. Il en résulte que R_T suit lui aussi une loi exponentielle de la forme $\exp \left(\frac{W - W^*}{kT} \right)$, c'est-à-dire que :

— R_T augmente lorsque la température diminue (tableau III). Un résultat analogue a été obtenu pour le nitrate de cellulose [5]. La trace révélée, de forme conique, présente un angle au sommet γ tel que $\sin \gamma = \frac{1}{R_T}$; elle est plus fine,

TABLEAU III
VARIATION DE R_T EN FONCTION DE LA TEMPÉRATURE DE L'AGENT CHIMIQUE
POUR LES FRAGMENTS DE FISSION LÉGERS DU ^{252}Cf ET UNE SOLUTION DE POTASSE
4 FOIS NORMALE A 60 °C

Température (degré C)	R_T
40	80
50	62
55	49
60	31
70	23

donc mieux repérable, lorsqu'on opère à basse température (c'est ce qu'on pourra faire en physique nucléaire pour repérer les dispositions relatives de certaines traces). Par contre, si l'on se borne à un décompte des traces, il vaut mieux accroître leurs dimensions, c'est-à-dire opérer à des températures plus élevées.

— R_T augmente lorsque W^* diminue. Nous avons vu plus haut que R_T croît lorsque la particule est plus fortement ionisante. Les résultats donnés dans le tableau II sont donc cohérents : plus la particule est ionisante, plus le W^* associé est faible.

FIG. 6. — Variation de R_T en fonction de la normalité de la solution de potasse à 60 °C pour les fragments de fission légers.

Lorsqu'on maintient la température de l'agent chimique à 60 °C et que l'on fait varier sa concentration de 2 N à 9 N, R_T augmente d'abord puis tend vers un palier (fig. 6) : la trace révélée est plus fine lorsque la concentration est plus élevée. Avec de la soude et des feuilles de triacétate de cellulose qu'il a préparées lui-même, SOMOGYI [6] a mis en évidence l'existence d'un maximum pour une concentration de 20 %. On peut penser que cette différence tient plus à la nature des matériaux employés qu'à celle de l'agent chimique. Nous avons constaté en effet qu'une solution de soude quatre fois normale à 60 °C possède pratiquement le même rapport d'attaque (30,5 au lieu de 31) pour les fragments de fission légers du californium qu'une solution de potasse employée dans les mêmes

conditions. Par contre, le rôle joué par les constituants du matériau est très important; on en jugera à travers l'exemple qui est donné maintenant.

4 - LE RÔLE DU PLASTIFIANT

Le triacétate de cellulose appelé triafol T.X. contient deux plastifiants :

- du phosphate de triphényle (environ 15 %),
- du phtalate de dibutyle (environ 5 %).

Pour les fragments de fission légers du californium et une solution de potasse quatre fois normale à 60 °C, son rapport d'attaque est de 82 au lieu de 31 pour le triafol T.N. La présence du plastifiant améliore considérablement les propriétés détectrices du matériau. Cela a incité notre laboratoire à fabriquer son propre triacétate de cellulose.

III - L'ÉNERGIE MAXIMALE D'ENREGISTREMENT E_M

E_M est définie de la manière suivante : la trace d'une particule dont l'énergie est inférieure à E_M est révélée en partie ou en totalité.

FIG. 7. — Définition de l'énergie maximale d'enregistrement.

Considérons par exemple une particule incidente d'énergie $E > E_M$ (fig. 7). Au cours de la traversée du matériau, son énergie diminue jusqu'à atteindre la valeur E_M après une distance l_1 : les dommages créés sur cette première partie

de la trajectoire sont insuffisants pour que la trace puisse être révélée. Au contraire, sur la partie restante de longueur l_2 , la révélation est possible : E_M dépend donc à la fois de la particule incidente et des conditions de l'attaque chimique. C'est un critère macroscopique mais qui est commode d'emploi.

Pour le déterminer, nous avons étudié la variation du temps $t_r = t_a - t_v$ en fonction de l'énergie de la particule incidente. En effet, le temps d'apparition des traces t_a est la somme :

— du temps de développement t_v nécessaire pour que le diamètre de la trace atteigne le seuil de visualisation que nous avons fixé à $0,5 \mu\text{m}$: $t_v = \frac{0,5}{2 \bar{V}_{LE}}$ si $\bar{V}_{LE}$ est la vitesse d'élargissement moyenne de la trace d'une particule incidente d'énergie E .

— du temps t_r nécessaire au rongement de l'épaisseur l_1 du matériau, pour que la particule n'ait plus qu'une énergie E_M .

FIG. 8. — Variation du diamètre des traces de particules α d'incidence normale en fonction du temps de développement par une solution de KOH (4N) à 60°C .

La mesure a été faite pour les particules α et pour une attaque chimique par de la potasse quatre fois normale à 60°C . Il a fallu au préalable déterminer t_a et $\bar{V}_{LE}$; la figure 8 donne les valeurs des diamètres d des traces de particules α d'incidence normale selon le temps de développement t . L'instant d'apparition t_a est représenté sous la forme d'un rectangle hachuré de façon à tenir compte des incertitudes sur le temps et le diamètre minimal observable. La vitesse d'élargissement des traces $\bar{V}_{LE}$ est égale à la moitié de la pente de la partie linéaire de la courbe $d(t)$ correspondant à l'énergie E .

La courbe $t_r(E)$, représentée sur la figure 9, peut être divisée en trois régions :

— un palier entre 0 et 3 MeV. Le fait que t_r ne soit pas nul signifie sans doute que $\bar{V}_{LE}$ ne représente pas exactement la vitesse d'élargissement de la trace au début de l'attaque chimique; cela s'explique bien si l'on admet l'existence d'un temps d'incubation lorsque le processus chimique commence, comme l'a observé DEBEAUVAIS [9].

- une zone dite « de transition » entre 3 et 4 MeV où t_r se met à croître,
- au-delà de 4 MeV, une zone où t_r augmente fortement.

FIG. 9. — Variation de t_r en fonction de l'énergie des particules α .

Dans cette troisième région, la différence entre les temps $(t_r)_2$ et $(t_r)_1$ associés respectivement aux énergies E_2 et E_1 de la particule ($E_2 > E_1$) correspond, aux incertitudes expérimentales près, à la durée d'attaque chimique nécessaire pour enlever une couche de matériau dans laquelle l'énergie de la particule passe de E_2 à E_1 . Ceci n'est plus vrai dans la zone de transition. C'est pourquoi, nous avons choisi pour valeur de E_M , 4 MeV, qui est la limite supérieure de la zone de transition.

III - UN EXEMPLE D'APPLICATION DU TRIACÉTATE DE CELLULOSE : LA SPECTROSCOPIE DES PARTICULES

A partir des courbes de la figure 8, on peut établir une correspondance entre le diamètre d des traces des particules α et leur énergie; c'est ce que nous avons représenté sur la figure 10. Au-dessus de 2 MeV, la relation est linéaire et il est possible de discriminer en énergie les particules avec une résolution d'environ 500 keV.

FIG. 10. — Variation du diamètre des traces de particules α en fonction de leur énergie pour différents temps de développement par KOH (4N) à 60 °C.

Une amélioration peut être obtenue en augmentant la durée de l'attaque chimique puisque la pente des droites $d(E)$ croît avec t . On a donc intérêt à prendre un temps de développement aussi grand que possible tout en restant compatible avec la gamme d'énergie explorée et une bonne définition de la trace. En effet, si le développement est trop prolongé, la trace « pâlit » et les mesures deviennent délicates.

Cette méthode, qui a déjà été utilisée avec différents matériaux [11] [12] [13] [14], devrait rendre de nombreux services dans le domaine de la spectroscopie.

BIBLIOGRAPHIE

- [1] BLANC D. Les Détecteurs Solides de Traces, *Radioprotection* : 1970, 5, 1 p. 37-78 - 1970, 5, 2, p. 115-146 - 1970, 5, 3, p. 201-228.
- [2] MONNIN M. Les Détecteurs Solides de Traces, *Radioprotection*, 1967, 2, 2, p. 105-117.
- [3] CHAPUIS A.M., FRANCOIS H., NICOMÈDE-GÉRARD N. Contrôle de l'enrichissement de l'uranium en uranium 235 avec les traces laissées par les particules alpha dans le nitrate de cellulose, 1969, 4, 3, p. 203-214.
- [4] VAREILLE J.C. Thèse Doctorat de Spécialité, N° 722, 1972, Limoges.
- [5] BENTON E.V. Thèse, 1968, Stanford.
- [6] SOMOGYI G., VARNAGY M., MEDVECHY L. The Influence of the etching parameters on the sensitivity of plastics, *Rapport Conf. Int. Détecteurs Visuels Solides*, 1969, Clermont-Ferrand III, p. 86-99.
- [7] BLANFORD G.E., FAIN J., MONNIN M., MONTRET M., TOUZERY C. Calibration of plastic detectors for low energy cosmic rays. *Rapport Int. Conf. Nuclear Photography. Solid State Track Detectors*, Bucarest 1972.
- [8] BLANFORD G.E. Thèse, 1971, Washington.
- [9] DEBEAUVAIS M., RALAROSY J., RÉMY G., STEIN R., TRIPIER J. Quelques applications récentes de nos connaissances expérimentales dans l'interaction des particules chargées avec les détecteurs plastiques. Quelques applications en découlant au Laboratoire de Physique Corpusculaire de Strasbourg. *Rapport Conf. Int. Photographie Corpusculaire et Détecteurs Visuels Solides*, 1970, Barcelone, 1, p. 147-165.
- [10] WEFEL J.P. Thèse, 1971, Washington.
- [11] SOMOGYI G., SCHLENK B. The application of solid-state track detectors for measuring alpha particle angular distributions in nuclear reactions, *Rapp. Conf. Int. Détecteurs Visuels Solides*, Clermont-Ferrand, 1969, VIII, p. 27-40.
- [12] SOMOGYI G. A New Method for measuring the particle energy according to the diameters of the holes in solid state nuclear track detectors, *Atomki Közlemenyek*, 1966, 8, p. 218-224.
- [13] SOMOGYI G., SCHLENK B., VARNAGY M., MESKO L., VALEK A. Application of Solid state track detectors for measuring angular distributions of alpha particle groups from nuclear reactions, *Nucl. Instr. and Meth.*, 1968, 63, p. 189-194.
- [14] MEYERBROCKER M. Alpha particles of natural radioactivity in air measured by cellulose nitrate plastic detectors, *Rapport Conf. Int. Détecteurs Visuels Solides*, Clermont-Ferrand, 1969, VI, p. 5-10.