

Caractérisation des Distributions Spatiales des Flux de Neutrons à l'aide des Détecteurs Solides de Traces Nucléaires

Reçu le 08/04/2006 – Accepté le 25/12/2006

Résumé

Une technique de caractérisation de la distribution spatiale du flux de neutrons du canal neutronographique du réacteur nucléaire NUR est présentée. Cette technique est basée sur la visualisation dans un détecteur solide de traces nucléaires des impacts des particules chargées issues des réactions nucléaires induites par les neutrons dans un convertisseur boré des neutrons en particules chargées.

Mots clés : Détecteurs Solides de Traces Nucléaires, Réacteur Nucléaire, Détection des Neutrons, Flux de neutrons.

Abstract

A technique of characterising the spatial distribution of the neutron flux of NUR's nuclear reactor neutron radiography channel is presented. This technique is based on the visualisation in a nuclear tracks detector of the charged particles impacts issued from nuclear reactions induced by neutrons in a borated neutron-charged particles converter.

Key words : Solid State Nuclear Track Detectors, Nuclear Reactor, Neutron Detection, Neutron Flux.

A. SEGHOOR ^a
F.Z. SEGHOOR ^a
B. SAICHI ^b

^a Centre de Recherche Nucléaire d'Alger.
02, Bd Frantz Fanon. B.P.
399. 16000 Alger. Algérie.

^b Centre de Recherche Nucléaire de Draria.
Seballa. Draria. Alger.
Algérie.

ملخص

يعرض هذا البحث تقنية تحديد تغيرات التدفق النيوتروني لقناة التصوير النيوتروني بالمفاعل النووي نور.

ترتكز هذه التقنية على تبيان آثار الجزيئات المشحونة داخل كاشف الآثار النووية التي تصدرها محولات النيوترونات إلى جزيئات مشحونة بواسطة تفاعلات نووية تحدث للنيوترونات مع عنصر البور.

الكلمات المفتاحية كاشف الآثار النووية ؛ مفاعل نووي ؛ كشف النيوترونات ؛ التدفق النيوتروني .

L'intérêt premier des réacteurs nucléaires de recherche réside dans la disponibilité des neutrons en densité neutronique importante et en distributions énergétiques variées qui ne peuvent être reproduites par les autres sources de neutrons telles les générateurs de neutrons et les sources isotopiques [1]. En effet, produits par réaction de fission dans le coeur du réacteur, les densités neutroniques atteignent facilement des ordres de grandeurs de l'ordre de 10^{13} n/cm² s pour un réacteur de puissance 1 MW. De plus, les neutrons de fission présentent des distributions énergétiques lisses et continues [2] pouvant couvrir des gammes d'énergies allant de quelques centièmes d'électrons-volts, aux alentours de 0.025 eV pour les neutrons thermiques, à quelques millions d'eV pour les neutrons rapides.

L'utilisation des neutrons produits dans les réacteurs nucléaires dans les expériences de physiques nucléaires, sciences des matériaux et sciences du vivant est rendue possible grâce à des canaux d'irradiation disposés dans la structure du réacteur. Chaque canal d'irradiation est caractérisé par les distributions spatiales et énergétiques des flux de neutrons qui y règnent. Lorsque les irradiations aux neutrons nécessitent d'importantes surfaces d'exposition, il est généralement exigé que les distributions spatiales sur ces surfaces ne présentent pas de variations importantes afin que les résultats des irradiations ne soient pas perturbés par la non homogénéité du flux de neutrons. Tel est le cas de la neutronographie, où la qualité des images exprimées en contraste et pouvoir de résolution, est intimement liée à l'homogénéité du flux de neutrons sur toute la surface de l'objet exposé [3].

D'un point de vue conceptuel, la neutronographie est une technique de radiographie où les rayonnements incidents sont des neutrons. Le principe consiste en la visualisation de la variation de l'intensité du champ de rayonnements lorsqu'un objet est intercalé entre le faisceau incident et le détecteur ou film photographique [4,5,6].

Dans les années quarante, un intérêt prononcé a été orienté vers les techniques de photographie nucléaire et corpusculaire pour les études des propriétés des particules élémentaires et de l'interaction des rayonnements avec la matière [7]. Ces techniques sont basées sur la visualisation des trajectoires des particules dans la matière et la méthode de la photographie corpusculaire des émulsions a apporté à la physique nucléaire une moisson de découvertes de nouvelles interactions et de nouvelles particules [8].

Vers la fin des années cinquante, des traces de fission de l'uranium ont été observées dans un cristal de fluorure de lithium indépendamment par Young [9] d'une part et par Silk et Barnes [10] d'autre part. Ces observations marquent la naissance d'une nouvelle catégorie de détecteurs nucléaires. Basés sur la formation de traces dans les solides sous l'effet des interactions des rayonnements avec la matière, ces types de détecteur sont connus sous le nom de détecteurs solides de traces nucléaires (DSTN) [11,12].

Le principe de détection repose sur la visualisation des effets de l'interaction du rayonnement incident lorsqu'il produit une trace latente dans le détecteur. Le grand avantage de ce nouveau type de détecteurs réside dans le fait qu'ils sont insensibles aux rayonnements gamma et bêta dans la limite des dépôts et pertes d'énergies n'induisant pas des modifications structurales de l'ensemble du milieu composant le détecteur [13]. Certains matériaux répandus dans la nature possèdent cette capacité d'enregistrement des traces latentes, comme le cristal de fluorure de lithium, le mica, le zirconium et l'apatite. Leurs répartitions dans les roches et la croûte terrestre ouvrent ainsi des axes de recherches qui intéressent la géologie, la géochimie et parfois l'archéologie en procédant à la datation des roches par visualisation des traces de phénomènes nucléaires dits "fossiles" qui correspondent essentiellement aux traces latentes des produits de fission des radionucléides primordiaux [14].

Des matériaux en verre ainsi que des polymères ont été développés pour servir de détecteurs solides de traces nucléaires. On peut citer l'exemple du nitrate de cellulose CN85 ainsi que le LR115. Ce dernier est largement utilisé dans des applications de détermination quantitative des concentrations des radionucléides naturels émetteurs α [15,16,17].

Des polymères ayant des propriétés proches des verres ont remplacé l'utilisation des verres dans l'industrie de l'optique. Ainsi, les verres dits organiques utilisés en optique médicale sont à base d'un matériau polymère commercialement appelé CR-39 pour désigner le produit "Carbonate Rubber" et parfois "Columbia Resine No 39".

Vers les années quatre-vingt, il fut reconnu à ce polymère des caractéristiques de détecteur solide de traces nucléaires. Rapidement, il a été largement introduit dans la majorité des applications nucléaires grâce principalement à son prix de revient considérablement amorti par sa large utilisation dans le domaine industriel. L'utilisation du CR-39 a connu un grand succès dans le domaine des applications nucléaires ainsi que dans certains volets de la physique des ions lourds [18,19]. Composé principalement d'oxygène, d'hydrogène et de carbone sous forme de $C_{12}O_8H_{13}$, le CR-39 est parfois utilisé pour la détection des neutrons

rapides par le biais des noyaux de recul qui induisent des traces latentes [20]. Associé à des convertisseurs (n, α) dont les plus répandus sont le ^{10}B et 6Li , l'efficacité de détection du

CR-39 pour les neutrons est élargie aux neutrons de faibles énergies et sub-rapides [21].

Dans ce travail, on se propose d'utiliser les détecteurs solides de traces nucléaires pour la caractérisation des distributions spatiales du flux de neutrons dans le canal neutronographique du réacteur nucléaire NUR en utilisant le DSTN CR-39 de grandes dimensions associé à un convertisseur neutrons-particules chargées contenant du bore naturel.

Principe de la cartographie des distributions des flux de neutrons par les DSTN

Lorsque les particules chargées traversent la matière, des ionisations apparaissent le long de leurs trajectoires et forment des zones d'endommagement dans les milieux traversés.

Certains matériaux conservent les effets du désordre autour de la trajectoire des particules incidentes sous forme de zones de dommages intenses permanentes désignées par le terme de traces latentes [22]. Ces zones de dommages intenses s'étendent sur des dimensions de l'ordre du parcours des particules chargées dans les matériaux qui dépend principalement de l'énergie initiale des particules. Pour des particules légères telles que les particules α d'énergie de l'ordre de quelques MeV, le parcours ne dépasse guère les quelques μm dans la matière solide. Ce parcours est encore plus faible pour les particules plus lourdes ayant des énergies comparables.

La zone de dommage intense traduit la répartition de l'énergie cédée sous l'effet de l'interaction de la particule incidente. Elle délimite une étendue spatiale de longueur de l'ordre du parcours de la particule chargée incidente avec une distribution radiale entre 50 Å à 100 Å qui forme la trace latente dans le matériau [23]. Cette trace est observable au microscope électronique et peut être rendue visible au microscope optique sous l'action d'un agent chimique dont le rôle est d'agrandir l'étendue des zones endommagées [24]. Ce procédé d'attaque chimique, appelée "révélation chimique", agit de façon préférentielle le long des zones endommagées où les ruptures de liaisons moléculaires du matériau détecteur catalysent les réactions chimiques. Les surfaces du DSTN restées intactes car non traversées par les particules chargées, sont elles aussi décapées sous l'effet de l'attaque chimique. L'attaque chimique de la solution le long des trajectoires des particules chargées évolue plus rapidement que le décapage des surfaces externes non traversées par les particules incidentes; la trace latente prend alors une forme conique et prend des formes ellipsoïdale ou circulaire en fonction de l'angle d'incidence de la particule incidente par rapport à la surface du DSTN, Fig.1.

Les techniques de détection mettant en oeuvre les DSTN ont connu des applications diverses et variées dans plusieurs domaines de la recherche. Les DSTN sont largement utilisés dans le domaine de la cartographie et

trouvent des applications dans des domaines aussi variés que la biologie [25] et la datation géologique [14]. Dans ces applications, les DSTN sont utilisés directement pour la détection des particules chargées, généralement des particules α et des fragments des fissions spontanées, émises par les radio-isotopes naturels contenus dans les échantillons à analyser.

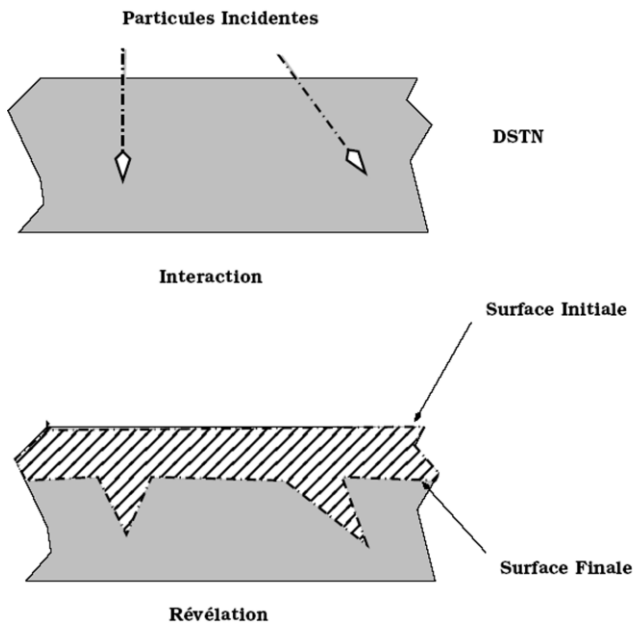
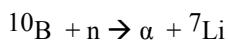


Figure 1 : Formation et développement des traces dans les détecteurs solides de traces nucléaires.

Le principe de la cartographie des distributions des flux de neutrons par les DSTN est basé sur l'utilisation d'un convertisseur neutrons-particules chargées intimement mis en contact avec un détecteur solide de traces nucléaires [26]. Les particules issues des réactions nucléaires dans le convertisseur sont mises en évidence dans le DSTN par les traces latentes qu'elles y produisent. Dans ce travail, un convertisseur boré se présentant sous forme d'une couche de bore naturel étalée sur un support en polystère a été utilisé en combinaison avec le DSTN CR-39.

L'isotope ^{10}B , d'abondance naturelle de 10 %, présente une grande section efficace de réaction pour les neutrons thermiques, $\sigma \approx 3838$ barns. La réaction nucléaire donne naissance à deux particules chargées énergétiques, α et ^7Li :



Les particules α et ^7Li sont émises dans des directions opposées et de façon isotrope pour les neutrons d'énergie thermique (~ 0.025 eV).

A chaque réaction correspond deux particules chargées dont une seule est détectée par le DSTN. Pour les neutrons rapides, et conformément aux lois de la cinématique des réactions nucléaires, les particules chargées sont majoritairement émises dans la direction des neutrons incidents. Le DSTN peut alors être traversé par deux particules issues de la même réaction.

Les particules chargées qui traversent le DSTN CR-39 y produisent des traces latentes.

Afin de visualiser ces traces latentes, le CR-39 est immergé dans une solution chimique composée de NaOH ou KOH, ou dans un mélange des deux solutions, à une température entre 60° et 70° pendant des durées allant de 1 à 6 heures. Les traces agrandies sous l'action de la solution de développement deviennent visibles au microscope optique et peuvent facilement être dénombrées et analysées.

Expérimentation et exploitation

NUR est un réacteur nucléaire de type piscine, de puissance nominale 1 MW, utilisant des éléments du combustible type MTR (Material Test Reactor) enrichi approximativement à 20 %. Il utilise de l'eau légère comme fluide caloporteur pour le refroidissement du coeur et le graphite comme réflecteur des neutrons de fission. Cinq canaux sont aménagés dans la structure du réacteur pour les besoins d'irradiation aux neutrons. Un canal est spécialement conçu pour des applications d'imagerie par radiographie neutronique dite "neutronographie" qui délivre un flux de neutrons principalement thermique de l'ordre de 10^5 n/cm² s.

En vue de caractériser les distributions spatiales du flux de neutrons sur la section du canal à l'endroit de l'exposition, un dispositif comprenant un convertisseur de particules chargées contenant du bore naturel et commercialisé par Dosirad sous le nom de BN1 intimement mis en contact avec une plaque de CR-39 de dimensions 21 X 20 cm², a été fixé à la sortie du canal neutronographique de NUR, Fig.2. Le système de détection des neutrons (BN1-CR39) a été exposé aux neutrons pendant une durée de 20 minutes à une puissance de fonctionnement du réacteur de 1 MW.

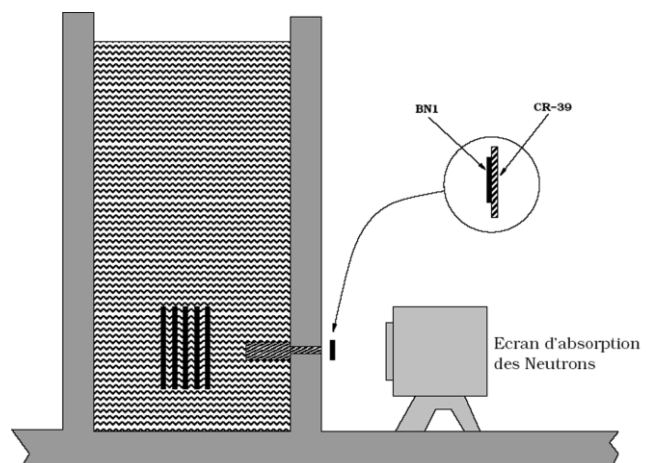


Figure 2 : Dispositif expérimental de cartographie du flux de neutrons à la sortie du canal neutronographique du réacteur NUR.

Après irradiation aux neutrons, les plaques CR-39 ont été développées dans un bain de NaOH pendant 2 heures à une température de 60° afin de rendre les traces produites par les particules chargées émises par la réaction nucléaire $^{10}\text{B}(n,\alpha)^7\text{Li}$ observables optiquement Fig.3. Les lectures de

traces sont faites à l'aide d'un microscope optique. Ces lectures ont été réalisées sur 999 points uniformément répartis sur le détecteur CR-39 et espacés de 5 mm.



Figure 3 : Traces des particules chargées issues de la réaction nucléaire $^{10}\text{B}(n,\alpha)^7\text{Li}$ observées dans le détecteur solide de traces nucléaires CR-39.

Sur la surface délimitée par les dimensions du détecteur utilisé, la répartition des traces des particules chargées dépend de la distribution spatiale du flux de neutrons. En tout point de la surface du détecteur, on peut écrire :

$$N(x,y) = N_0 \sigma \Phi(x,y) t$$

où :

$N(x,y)$: densité de traces nucléaires dans le CR-39 ;

N_0 : densité de ^{10}B dans le convertisseur BN1 ;

σ : section efficace de la réaction $^{10}\text{B}(n,\alpha)^7\text{Li}$;

$\Phi(x,y)$: flux de neutrons ($\text{cm}^{-2} \text{s}^{-1}$) ;

t : durée d'irradiation.

La variation spatiale de la densité surfacique des traces nucléaires sur le détecteur CR-39 est proportionnelle à la distribution spatiale du flux de neutrons. On peut alors écrire :

$$N(x,y) \propto \Phi(x,y)$$

Ainsi, une cartographie du flux de neutrons au niveau du canal neutronographique du réacteur NUR a été établie et est reportée sur la figure Fig.4.

A partir de cette figure, on peut observer que la distribution du flux de neutrons du canal neutronographique présente une répartition relativement uniforme et homogène autour

d'une valeur moyenne occupant une large surface du canal représentant au moins 76 % de la surface du canal. Une forte dépression du flux de neutrons est spatialement confinée en des points singuliers en haut de la partie gauche du canal, avec une proportion surfacique de l'ordre de 1 %. Les intensités modérément élevées des flux de neutrons par rapport à la valeur moyenne sont situées au niveau des extrémités du canal et sont facilement repérées sur les bords inférieurs et droits de la figure et représentent 23 % de la surface utile du canal neutronographique.

Par ailleurs, une des qualités exigées dans l'analyse par neutronographie est l'absence de structures du flux de neutrons sur toute la surface d'exposition aux neutrons afin que les structures apparaissant sur l'image obtenue par neutronographie soient directement associées aux modifications des structures propres à l'échantillon à analyser. La distribution du flux de neutrons du canal neutronographique du réacteur NUR, telle qu'elle apparaît sur la figure 4, permet de garantir la qualité de l'analyse par neutronographie par l'absence, à 1 % près, de structures sur toute la surface utile du canal.

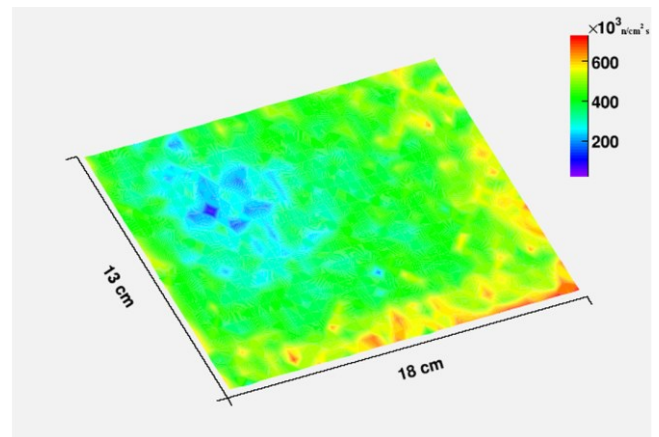


Figure 4: Distribution spatiale du flux de neutrons dans le canal neutronographique du réacteur NUR.

Conclusion

La distribution spatiale du flux de neutrons du canal neutronographique du réacteur nucléaire NUR a été établie à l'aide d'une technique de cartographie neutronique utilisant les détecteurs solides de traces nucléaires associés à un convertisseur neutrons-particules chargées.

Il a été obtenu que la distribution du flux de neutrons sur la section du canal présente une homogénéité sur une surface continue occupant la majeure partie du champ central d'exposition aux neutrons. La cartographie du flux de neutrons telle qu'établie par la présente technique, permet de garantir la qualité de l'analyse par neutronographie principalement par l'absence de structures du flux sur pratiquement toute la surface utile du canal.

REFERENCES

- [1]- Marion J.B. and Fowler J.L., "Fast Neutron Physics, Part. I.", *John Wiley & Sons.*, New-York, 1963.
- [2]- Seghour A. et Seghour F.Z., "Spectrométrie des

- neutrons par activation neutronique près et dans les coeurs des réacteurs nucléaires", *Alg. Rev. Nucl. Sci.*, Vol. 5, N° 1 & 2 (2003) 13-23.
- [3]- Lehmann E.H. *et al.*, "Neutron imaging - detector options and practical results", *Nucl. Instr. and Meth.*, A 531 (2004) 228-237.
- [4]- Thewlis J., "Neutron Radiography", *British Journal of Applied Physics.*, Vol. 7 (1956) 345-350.
- [5]- Klein A.G. and Werner S.A., "Neutron Optics", *Rep. Prog. Phys.*, Vol. 46 (1983) 259-335.
- [6]- Lehmann E.H., Vontobel P. and G. Frei, "Neutron Imaging- Present Status and Options with TOF Methods-TOF Neutron Imaging", *Journal of Neutron Research.*, Vol. 13 N° 1-3 (2005) 27-31.
- [7]- Powell L.F., Fowler P.H. and Perkins D.H., "The study of elementary particles by the photographic method", *Pergamon Press*, London, 1959.
- [8]- Cuer P., "Photographie Corpusculaire", Premier Colloque International de Photographie Corpusculaire, CNRS, Strasbourg, 1957.
- [9]- Young D.A., {"Etching of radiation damage in Lithium Fluoride", *Nature.*, 182 (1958) 375-377.
- [10]- Silk E.C.H. and Barnes R.S., "Examination of fission fragment tracks with an electron microscope", *Phil. Mag.*, 4 (1959) 970-971.
- [11]- Fleischer R.L., Price P.B. and Walker R.M. , "Nuclear Tracks in Solids", *University of California Press.*, Berkley, 1975.
- [12]- Durrani S.A. and Bull R.K., "Solid State Nuclear Track Dtection. Principles, Methods and Applications", *Pergamon Press*, London, 1987.
- [13]- Akber R.A. *et al.*, "Studies of structural changes produced by high doses of gamma rays in some plastic track detectors", *Nucl. Instr. and Meth.*, 173 (1980) 217-221.
- [14]- Somogyi G. and Nagy M., "Remarks on fission-track dating in dielectric solids", *Rad. Effects.*, 16 (1972) 223-231.
- [15]- Nakahara H. *et al.*, "Some basic studies on the absolute determination of radon concentration in the air by a cellulose nitrate track detector", *Nucl. Instr. and Meth.*, 171 (1980) 171-179.
- [16]- Pape A. *et al.*, "Quantitative α -particle detection in a homogeneous medium with LR115", *Nucl. Instr. and Meth.*, B 143, N°4 (1998) 557-560.
- [17]- Misdaq *et al.*, "A new method for evaluating uranium and thorium contents in different natural material samples by calculating the CR-39 and LR-115 type II SSNTD detection efficiencies for emitted α -particles", *Nucl. Instr. and Meth.*, B 171 (2000) 350-359.
- [18]- Tincknell M.L., Price P.B. and Perlmutter S., "Observation of anomalously short mean free paths of projectile fragments of 1.85 A-GeV ^{40}Ar in CR-39 etched track detector", *Phys. Rev. Lett.*, Vol. 51, N°21, (1983) 1948-1951.
- [19]- Sampsonidis D. *et al.*, "Fragmentation cross sections of ^{16}O , ^{24}Mg , and ^{32}S projectiles at 3.65 GeV/nucleon", *Phys. Rev.*, C. Vol. 51, N° 6 (1995) 3304-3308.
- [20]- Hashemi-Nezhad S.R. *et al.*, "Determination of energetic neutron spatial distribution using neutron induced nuclear recoil events", *Nucl. Instru. and Meth.*, A 493 (2002) 121-130.
- [21]- Makovicka L. *et al.*, "Detection of thermal neutrons by CR-39 using a boron implanted converter", *Radiat. Prot. Dosim.*, Vol. 23, N° 1-4 (1988) 191-194.
- [22]- Fleischer R.L. *et al.* "Track registration in various solid-state nuclear track detectors", *Phys. Rev.*, Vol. 133, N°5A (1964) 1443-1450.
- [23]- Fleischer R.L., Price P.B. and Woods R.T., "Nuclear particle track identification in inorganic solids", *Phys. Rev.*, Vol. 188, N° 2 (1969) 563-567.
- [24]- Monnin M.M., "Visualization of latent damage trails", *Nucl. Instr. and Meth.*, 173 (1980) 1-14.
- [25]- Morris K.J. and Batchelor A.L., "The location of boron-containing dust in the lung, utilising neutron-induced autoradiography techniques with a CR-39 solid state track detector", *Phys. Med. Biol.* Vol. 32, N° 11 (1987)1501-1508.
- [26]- Seghour A. *et al.*, "Neutron flux imaging with nuclear track detectors", *Radioprotection.*, Vol. 30, N° 4 (1995) 509-518.