

# Études expérimentale et analytique des relations entre l'énergie et le parcours développable d'une particule chargée dans un détecteur visuel plastique

J. Ralarosy, J. Tripier, R. Stein, G. Remy, M. Debeauvais

## ▶ To cite this version:

J. Ralarosy, J. Tripier, R. Stein, G. Remy, M. Debeauvais. Études expérimentale et analytique des relations entre l'énergie et le parcours développable d'une particule chargée dans un détecteur visuel plastique. Journal de Physique, 1971, 32 (10), pp.733-742. 10.1051/jphys:019710032010073300. jpa-00207130

## HAL Id: jpa-00207130 https://hal.science/jpa-00207130v1

Submitted on 4 Feb 2008

**HAL** is a multi-disciplinary open access archive for the deposit and dissemination of scientific research documents, whether they are published or not. The documents may come from teaching and research institutions in France or abroad, or from public or private research centers. L'archive ouverte pluridisciplinaire **HAL**, est destinée au dépôt et à la diffusion de documents scientifiques de niveau recherche, publiés ou non, émanant des établissements d'enseignement et de recherche français ou étrangers, des laboratoires publics ou privés.

### ÉTUDES EXPÉRIMENTALE ET ANALYTIQUE DES RELATIONS ENTRE L'ÉNERGIE ET LE PARCOURS DÉVELOPPABLE D'UNE PARTICULE CHAR-GÉE DANS UN DÉTECTEUR VISUEL PLASTIQUE

J. RALAROSY, J. TRIPIER, R. STEIN, G. REMY et M. DEBEAUVAIS

Laboratoire de Physique Corpusculaire, Centre de Recherches Nucléaires de Strasbourg

(Reçu le 11 mars 1971, révisé le 7 mai 1971)

**Résumé.** — On étudie dans le makrofol le seuil d'enregistrement des traces d'ions lourds ainsi que les longueurs de trace développables. Les conditions physicochimiques de développement restant invariantes, on cherche des relations entre le temps d'attaque chimique t et la perte d'énergie spécifique critique  $I_s$ . On donne des expressions analytiques empiriques du seuil  $I_s$  et de la longueur développable L, en fonction de la perte spécifique d'énergie I de l'ion incident, pour différents temps d'attaque chimique t.

Abstract. — Registering threshold and visualizable ranges of heavy ion tracks are studied in makrofol. As physical and chemical conditions of etching are invariant, relations between etching time t and critical energy loss rate  $I_s$  are determined. Empirical fits for the threshold  $I_s$  and for the visualizable range L, in function of the energy loss rate I of the incoming ion are given, for different etching times t.

I. Introduction et généralités. - A. Les Détec-TEURS VISUELS SOLIDES ET LES INTERACTIONS NUCLÉAIRES. - Le présent travail constitue un complément dans l'étude des réactions nucléaires induites sur des noyaux très lourds par des particules de haute et moyenne énergies. Dans cette étude, nous nous intéressons plus particulièrement aux émissions de particules lourdes. L'utilisation d'un détecteur approprié devrait nous permettre de préciser les mécanismes des interactions à énergies élevées et plus spécialement les interactions de fission et de fragmentation [1], [2], [9], [10], [11], [12], [13]. Le choix d'un détecteur visuel plastique s'avère très commode pour l'étude de telles interactions [3], [4], [5], [6], [7], [8]. Parmi les caractéristiques essentielles d'un détecteur visuel solide, la notion de « seuil » est primordiale. Cette notion de « seuil », sur laquelle nous allons revenir par la suite, est encore très mal définie actuellement et il n'y a encore aucune unité de point de vue sur ce sujet dans la littérature [14], [15], [16], [17], [18], [19], [20]. Tout ce que l'on peut retenir d'une façon certaine, c'est que les particules légères rapides ne sont pas enregistrables dans le polymère le plus sensible connu jusqu'à ce jour, à savoir la nitrocellulose. Par conséquent, si l'on ne s'intéresse qu'à l'émission de particules lourdes et si l'expérience envisagée nécessite un flux intégré élevé de particules légères incidentes (10<sup>10</sup> à 10<sup>14</sup>), le choix d'un détecteur visuel est tout indiqué, le bruit de fond étant réduit au minimum du fait, qu'en général, les traces de ces particules légères ne sont pas révélables dans les conditions habituelles de développement chimique. Rappelons que les émulsions nucléaires sont très peu exploitables lorsque le flux intégré de particules dépasse  $10^{6}$ /cm<sup>2</sup>.

B. LES DIFFÉRENTES ÉTAPES DANS LA FORMATION ET LA VISUALISATION DE L'IMAGE LATENTE. - Depuis les premiers travaux de Silk et Barnes [21] en 1959 et de Price et Walker [22] en 1962, l'utilisation des détecteurs visuels s'est développée d'une façon très rapide dans des domaines scientifiques très divers. Malheureusement la littérature est encore peu abondante quant à la méthodologie de ces détecteurs. On compte un grand nombre de ces types de détecteurs, dans lesquels on sait visualiser les traces avec des conditions de développement chimique plus ou moins variées, mais on ignore encore le mécanisme fondamental de la formation de ces traces. Les hypothèses concernant ce mécanisme ont été nombreuses [17], [23], [24], [25], [26], [42], [43], [45], mais aucune ne s'est avérée absolument satisfaisante. On peut distinguer trois stades dans le processus permettant la visualisation d'une trace.

— Un premier stade dans lequel la particule incidente produit des interactions primaires avec le milieu traversé (électrons-électrons, noyau-noyau).

— Un deuxième stade dans lequel les électrons secondaires du milieu ou éventuellement des vibrations locales ou propageantes (par exemple type phonons) [27] créent des défauts irréversibles dans le matériau détecteur au voisinage immédiat de la trajectoire de la particule.

— Un troisième stade qui est celui du développement chimique au cours duquel on rend visible la trajectoire de la particule.

Les phénomènes véritables au cours de chacun de ces trois stades sont suffisamment complexes pour qu'on puisse s'en faire une idée précise et valable pour tous les ions utilisés, dans une gamme d'énergie très large. Néanmoins, dans un domaine d'utilisation restreint, il est possible, expériences à l'appui, de trouver des relations semi-empiriques entre diverses données physiques afférentes, d'une part à la particule, d'autre part au milieu traversé [28], [11], [29], [13], [32], [30], [20], [18]. Nous avons montré dans un précédent travail [28] qu'en ce qui concerne les deux premiers stades d'interaction (interaction primaire et interaction secondaire) l'hypothèse des rayons delta [24], [25], [17] constitue une base de travail valable pour l'ensemble des résultats. Nous avons signalé dans ce travail [28] qu'il n'est pas toujours possible de visualiser le parcours total de l'ion dans le détecteur (\*). Le problème de la visualisation de la trajectoire est celui du troisième stade qui correspond à celui du développement chimique.

C. CHOIX DES PARAMÈTRES ET BUT DE CE TRAVAIL. — Sans tenir compte des différentes hypothèses relatives au mécanisme de formation des traces, on peut noter que la condition de visualisation de la trajectoire dans les détecteurs solides est fonction de plusieurs paramètres. Ces paramètres peuvent être répartis en trois classes différentes [39] :

1) les paramètres propres à la particule, à savoir sa masse A, son nombre atomique Z et sa vitesse  $\beta$ ;

2) les paramètres propres au détecteur, à savoir sa constitution atomique, sa structure moléculaire et la notion de seuil (à définir plus précisément) ;

3) les paramètres physico-chimiques et thermodynamiques, définissant les conditions d'irradiation et de développement : pression, température et milieu ambiant, concentration et température du réactif chimique développant, temps de développement chimique.

Suivant la nature du problème étudié, on peut jouer sur ces différents paramètres [31], [32], [33], [34], [40], [41].

Le détecteur utilisé est le makrofol (polycarbonate de 44'-dioxydiphényl 2.2 propane ( $C_{16}H_{14}O_3$ )n. Le but de l'étude est de trouver des relations analytiques entre l'énergie et le parcours développable d'un ion lourd, à partir de données expérimentales. On fixera un certain nombre de paramètres, en particulier, on laissera invariants les paramètres de la classe 3) à l'exception du temps de développement chimique et on définira ainsi la notion de seuil.

II. Etudes expérimentales. — A. PROBLÈME. — Soit un ion de nombre atomique Z et de masse A. Cet ion arrive sur la surface d'une feuille de makrofol avec une vitesse  $\beta$ , pénètre dans la feuille de makrofol et s'arrête au sein de sa masse.

1) Quel est le chemin réellement parcouru par l'ion ?

2) Quelle est la longueur du parcours que l'on peut visualiser lorsqu'on fait varier le temps d'attaque chimique, les paramètres thermodynamiques et physicochimiques étant fixés ?

B. MÉTHODE UTILISÉE. — On expose une feuille de makrofol au faisceau d'ions d'un accélérateur. Pour un ion donné, on fait varier l'énergie incidente, soit en agissant sur l'accélérateur, soit en interposant des absorbants ralentisseurs (makrofol) devant la feuille à irradier. On procède ainsi pour différents ions lourds. Le chemin réel R parcouru par un ion peut être déterminé par évaluation de l'épaisseur limite d'absorbant et, éventuellement avec l'aide d'une émulsion nucléaire. Quant au parcours développé L, il est obtenu par la mesure au microscope de la trace visualisée, pour un temps d'attaque chimique donné.

C. DISPOSITIF EXPÉRIMENTAL. — Pour effectuer les irradiations, on dispose d'un appareil constitué (Fig. 1) :



FIG. 1. — Dispositif expérimental.

— d'un plateau circulaire tournant P [35] disposé perpendiculairement au faisceau et comportant sur une couronne douze fenêtres équidistantes. Une cale porteéchantillon E faisant un angle de 20° avec l'axe du faisceau est placée derrière chaque fenêtre. Le mouvement circulaire du plateau est commandé à distance (clavier C et moteur M). De cette façon, il est possible de faire passer une fenêtre après l'autre dans une position déterminée. Devant chaque fenêtre, on peut loger perpendiculairement au faisceau, des feuilles minces d'absorbant (3 à 20  $\mu$ );

— d'une boîte contenant d'une part un jeu amovible d'absorbants épais (50 à 300  $\mu$ ) permettant d'importants ralentissements variables et, d'autre part le quaitz servant à l'alignement et au réglage du profil du faisceau.

Les absorbants utilisés sont des feuilles d'épaisseurs calibrées de makrofol.

<sup>(\*)</sup> Ce phénomène a été aussi signalé par J. Peter (Orsay) avec des traces d'Al et autres métaux (Colloque privé de la RCP, Paris, 6-7 octobre 1970).

D. PRÉPARATION DE L'ÉCHANTILLON. — Le porteéchantillon est un rectangle de 3 pouces sur 1. Dans les expériences que nous avons effectuées, nous avons étudié comparativement le makrofol, la nitrocellulose et l'émulsion nucléaire. Les résultats obtenus pour la nitrocellulose ne seront pas mentionnés ici. Nous avons découpé des morceaux d'égales dimensions (3 pouces  $\times 1/3$ ) dans une feuille de chacun des détecteurs sus-énumérés. Nous avons collé sur le porteéchantillon, côte à côte, la petite bande M de makrofol, la petite bande E d'émulsion et la petite bande N de nitrocellulose (Fig. 2). De cette façon, on peut com-



FIG. 2. — Dispositions des échantillons à irradier.

parer directement des traces très voisines, donc d'énergie voisine, dans l'émulsion nucléaire et les deux polymères. Même si le faisceau n'est pas énergétiquement très homogène, la variation de l'énergie des ions entre deux points très voisins est très faible. L'émulsion nucléaire nous fournit certains renseignements utiles dont, entre autres, l'énergie.

E. IRRADIATION. — On branche l'ensemble du dispositif expérimental directement sur le tube de sortie de l'accélérateur. Donc l'irradiation se fait sous vide secondaire et à une température voisine de la température ambiante, sans tenir compte de l'élévation locale de température au point d'impact du faisceau sur les échantillons. Cette précision sur des conditions thermodynamiques nous semble importante, car certains auteurs, dont Monnin [16], [33], ont souligné l'incidence de la composition et de la pression du milieu ambiant sur la formation et la révélation des traces.

Connaissant l'épaisseur totale des absorbants et mesurant le parcours résiduel dans l'émulsion, on peut tracer la courbe d'absorption en fonction de l'énergie de la particule incidente. F. EXPLOITATION DES ÉCHANTILLONS IRRADIÉS. — On découpe les échantillons en petites tranches numérotées 1, 2, 3, ... n, ... (Fig. 3). Les numéros servent à répérer les positions des tranches par rapport à l'émulsion nucléaire. On développe l'émulsion nucléaire.

	1	
	2	
	3	
	:	
	• •	
- 1		
	Μ	Ε
	<b>M</b> :	Ε
	M : n	E

FIG. 3. - Dispositions des échantillons à irradier.

Chaque tranche de makrofol va subir une attaque chimique, toujours dans les mêmes conditions thermodynamiques mais pendant des temps différents. Le bain de réactif chimique est une solution de NaOH à 5 N chauffée à 60 °C. On choisit la tranche 1 de makrofol ; on l'attaque d'une façon continue pendant le temps  $t_1$  et l'on observe les traces. On en fait de même pour la tranche 2, pendant le temps  $t_2$ , ainsi que la tranche n pendant le temps  $t_2$ , ainsi que la tranche n pendant le temps  $t_n$ . On obtient de cette façon les longueurs développées en fonction du temps d'attaque pour une énergie donnée.

Nous avons opéré de cette façon pour un certain nombre d'ions.

G. MESURES. — Dans chaque cas, nous avons mesuré les longueurs de 200 traces d'ions dans le makrofol et dans l'émulsion nucléaire. Les distributions de longueur sont pratiquement gaussiennes dans l'un et l'autre détecteur. L'écart standard moyen est généralement plus faible dans le makrofol que dans l'émulsion nucléaire. Cela se conçoit aisément car le makrofol est constitué uniquement d'éléments légers (H, C, O). Même quand l'épaisseur d'absorbant de makrofol est relativement grande, on ne note qu'une très légère augmentation de l'étalement des spectres de longueur. Les valeurs numériques que nous présentons représentent les valeurs moyennes des longueurs mesurées ; les barres d'erreur correspondent aux erreurs statistiques (écarts standard).

Quand on effectue les mesures, il faut tenir compte du rongement de surface qui est un facteur non négligeable, surtout si le temps d'attaque est assez grand. Sur la figure 4, nous présentons pour le makrofol la courbe de rongement de surface en fonction du temps d'attaque chimique, dans les conditions des expériences. Les mesures ont été corrigées de ce facteur.



FIG. 4. — Courbe de rongement.

III. Etudes analytiques des résultats expérimentaux. — A. IONS UTILISÉS. — Dans le tableau I, nous donnons une liste des ions obtenus et leurs énergies maximales.

#### TABLEAU I

Energ	gies	Accélérateurs
5,3	MeV	Source de Po <sup>210</sup>
102,5	MeV	Karlsruhe
12	MeV	Heidelberg
84	MeV	Orsay
25,4	MeV	Heidelberg
115	MeV	Orsay
51	MeV	Heidelberg
50	MeV	Heidelberg
265	MeV	Dubna
$\sim 50$	MeV	Heidelberg
(spectre tr	ès large	e)
180	MeV	Dubna
	Energy 5,3 102,5 12 84 25,4 115 51 50 265 $\sim$ 50 (spectre tr 180	Energies 5,3 MeV 102,5 MeV 12 MeV 84 MeV 25,4 MeV 115 MeV 51 MeV 50 MeV 265 MeV ~ 50 MeV (spectre très large 180 MeV

B. PARCOURS D'ABSORPTION. — Soit  $R(\beta)$  le chemin réellement parcouru par un ion de masse A et de nombre atomique Z qui pénètre dans une feuille de makrofol avec la vitesse  $\beta$  et s'arrête dans sa masse. Nous avons établi la relation suivante [28] :

$$R(\beta) = \frac{A}{Z^2} \left[ R_{\alpha}(\beta) - R_{\text{ext}}^{\alpha}(\beta) \right] + R_{\text{ext}}^{\text{ion}}(\beta)$$

où  $R_{ext}^{\alpha}(\beta)$  et  $R_{ext}^{ion}(\beta)$  sont respectivement les extensions de parcours d'une particule  $\alpha$  et de l'ion considéré ayant la même vitesse  $\beta$ .  $R_{\alpha}(\beta)$  est le parcours d'une particule  $\alpha$  de vitesse  $\beta$  dans le détecteur considéré. En utilisant la fonction  $C_Z(\beta)$  déterminée par Barkas [36] pour exprimer les extensions de parcours dans l'émulsion, nous avons obtenu, pour le makrofol [28]:

$$R(\beta) = \frac{A}{Z^2} \left[ R_{\alpha}(\beta) - 1.6(2^{8/3} - Z^{8/3}) C_Z(\beta) \right]$$

Nous appellerons par la suite « parcours d'absorption » ce chemin parcouru  $R(\beta)$ .

Sur la figure 5, nous reproduisons deux cas d'études



FIG. 5. — Courbes « Parcours-Energie » de l'oxygène 16 et de l'azote 14.

particulières effectuées avec les ions  $O^{16}$  et  $N^{14}$ , pour donner une idée de la précision à laquelle on peut s'attendre. Les barres d'erreur représentent les écarts standards des distributions des longueurs mesurées.

En abscisse : les épaisseurs d'absorbant ;

En ordonnée : les énergies résiduelles déduites des parcours dans les émulsions nucléaires.

La courbe « Parcours-Energie » est déduite de la « courbe d'absorption ».

C. OBSERVATION DES TRACES DÉVELOPPÉES. — Quand on observe les échantillons de makrofol irradiés puis développés chimiquement pendant un temps déterminé, trois éventualités peuvent se produire :

1) il n'y a aucune trace visible,

2) on observe des traces dont la longueur est inférieure au parcours d'absorption,

3) on observe des traces dont les longueurs sont égales au parcours d'absorption (après correction du rongement de surface).

Ces observations nous ont conduits à définir la notion importante de « seuil ».

D. PERTE SPÉCIFIQUE D'ÉNERGIE ET NOTION DE « SEUIL ». — En général, on a appelé jusqu'à présent « seuil » la valeur critique  $(dE/dx)_c$  de la perte spécifique d'énergie d'un ion en dessous de laquelle la trace de l'ion ne peut être visualisable. Cette valeur critique, qui est caractéristique du détecteur, a été souvent représentée par une droite horizontale sur le graphique de la perte spécifique d'énergie des ions en fonction de leur vitesse (ou de leur énergie par nucléon). Dans la littérature, on trouve des valeurs sensiblement différentes suivant les auteurs. Fleischer, Price et Walker [19] avaient préféré définir une zone de transition représentée par une bande horizontale relativement large plutôt que de tracer une droite, avant d'introduire le critère de la perte d'énergie par ionisation primaire [45].

Nos expériences ont montré que la notion de « seuil » peut être liée aux conditions de développement chimique. Pour un matériau donné, si les paramètres thermodynamiques et physico-chimiques sont invariants, le seuil horizontal n'est atteint qu'au bout d'un temps très long. Rappelons que le développement chimique a pour effet de dissoudre une zone du matériau entourant le corps de la trace ; cette dissolution n'est pas instantanée.

E. PERTE SPÉCIFIQUE D'ÉNERGIE DANS LE MAKROFOL. — Nous calculons d'abord la perte d'énergie par interactions électroniques, la contribution de la perte d'énergie par chocs nucléaires élastiques étant négligeable, sauf en fin de parcours [37], [28].

Utilisons la formule de Bethe :

$$\frac{dE}{dx} = 4 \pi m r^2 c^2 \rho N \frac{z}{M} \frac{Z_{eff}^2}{\beta^2} \times \left( Log \frac{2 m c^2 \beta^2 \gamma^2}{\overline{I}} - \beta^2 - S \right)$$

dans laquelle :

$$r = \frac{e^2}{mc^2} = 2,82 \times 10^{-13} \,\mathrm{cm}$$
,

N: nombre d'Avogrado,

- $\rho$ : masse volumique du matériau détecteur,  $\rho = 1.2 \text{ g/cm}^3$  pour le makrofol,
- M/z: rapport entre la masse moléculaire et le nombre d'électrons par molécule du matériau détecteur. Pour le makrofol

$$(C_{16}H_{14}O_3)n, M/z = 1,8955,$$

valeur calculée sur la base du monomère en prenant aussi les électrons de la couche K en considération,

- $Z_{\rm eff}$  : charge efficace de la particule incidente,
  - $\beta$ : vitesse efficace de la particule incidente en unité c,

$$\gamma = \frac{1}{\sqrt{1-\beta^2}},$$

- S : est un paramètre de correction représentant, soit l'effet d'écran, soit l'effet de densité,
- I: potentiel moyen d'ionisation du makrofol.

On détermine le potentiel moyen d'ionisation  $\overline{I}$  à partir de la relation

$$\operatorname{Log} \overline{I} = \sum_{k} f_k \operatorname{Log} I_k$$

où  $I_k$  est le potentiel d'ionisation et  $f_k$  le nombre fractionnaire d'électrons du k-ième atome.

Les valeurs des  $I_k$  sont celles proposées par Sternheimer [38]; elles sont légèrement plus élevées que celles obtenues par interpolation à partir des valeurs données par Segré [37] pour certaines substances. Le calcul nous donne :

$$\bar{I} = 70.8 \text{ eV}$$
.

La formule de Bethe appliquée au makrofol donne alors, pour un ion non relativiste :

$$-\frac{\mathrm{d}E}{\mathrm{d}x} = 0,447 \frac{Z_{\mathrm{eff}}^2}{\beta^2} \left[\log_{10} 14,43 \times 10^3 \beta^2 - \beta^2\right]$$

en MeV/cm.

Pour calculer la charge efficace  $Z_{eff}$ , nous utiliserons la formule de Papineau [36]

$$Z_{\rm eff} = Z \left[ 1 - \exp\left( -\frac{125\,\beta}{Z^{2/3}} \right) \right]$$

pour les ions de nombre atomique moyen ( $\leq 20$ ) et la formule statistique de Thomas-Fermi

$$Z_{\rm eff} = 137 \frac{\beta}{Z^{1/3}}$$

pour les ions plus lourds.

Dans la zone des très faibles vitesses, au voisinage de la fin de la trace, il faut faire la correction due à la perte d'énergie par chocs élastiques nucléaires. Nous avons calculé cette contribution dans le cas du makrofol [28] et nous avons trouvé que :

$$\eta = \frac{I_{\rm n}}{I_{\rm e}} = 1,53 \times 10^{-8} \frac{Z^{4/3}}{\beta^2}$$

où  $\eta$  est le rapport entre la perte spécifique d'énergie due aux chocs élastiques et la perte spécifique d'énergie due aux interactions électroniques. La perte spécifique totale d'énergie est donc :

$$\left(\frac{\mathrm{d}E}{\mathrm{d}x}\right)_{\mathrm{totale}} = I_{\mathrm{T}} = I_{\mathrm{e}}\left(1 + 1.53 \times 10^{-8} \frac{Z^{4/3}}{\beta^2}\right)$$

Cette correction a pour effet de relever la partie de la courbe  $(dE/dx)_{électr.}$  au voisinage de l'abscisse zéro.

F. VALEUR CRITIQUE  $I_R$  DE LA PERTE SPÉCIFIQUE D'ÉNERGIE AU-DESSUS DE LAQUELLE LA TRACE D'UN ION PEUT ÊTRE INTÉGRALEMENT VISUALISÉE. — Développons chimiquement une feuille de makrofol irradiée jusqu'à ce que la trace soit visualisée dans sa totalité. Pour savoir si la trace est entièrement développée, on observe la variation de sa longueur en fonction du temps d'attaque. Si la visualisation totale est atteinte, la longueur mesurée (corrigée du rongement de surface) reste constante lorsqu'on prolonge l'attaque chimique.

Pour chaque ion et pour chaque énergie, nous avons noté les temps nécessaires au développement total. Sur le graphique des pertes spécifiques d'énergie, nous plaçons les points représentant les ions étudiés (Fig. 6).



FIG. 6. — Temps de visualisation intégrale.

Partant de ces positions, nous avons essayé de trouver des expressions reliant l'énergie par nucléon E/A et la perte spécifique d'énergie  $I_R$  d'un ion au temps d'attaque chimique t. Nous avons trouvé empiriquement que :

où

$$t_0 = \frac{2,7\ t}{t+343,6} + 4\ 037$$

 $I_{\rm R} = p_{\rm R} \frac{E}{A} + I_0$ 

et

$$\begin{cases} p_{\rm R} = \frac{0,83 t + 112}{t - 12,5} & \text{pour } 150 \ge t \ge 25\\ p_{\rm R} = \frac{-0,4 t + 3885}{t + 1917} & \text{pour } t \ge 150 \end{cases}$$

E/A en MeV/nucléon, I en 10<sup>3</sup> MeV/cm, t en minutes.

Ces expressions sont représentées graphiquement par un faisceau de droites. Nous pouvons faire les commentaires suivants :

a) à énergie par nucléon (ou à vitesse) égale, plus l'ion est lourd, plus vite sa trace est développée.

Par exemple, pour développer complètement les traces d'un ion  ${}^{32}_{16}$ S et d'un ion  ${}^{22}_{10}$ Ne de 4,85 MeV/ nucléon, il faut respectivement 150 et 1 700 mn;

b) à perte d'énergie spécifique égale, plus l'ion est lourd, plus il faut de temps pour développer entièrement sa trace, le parcours étant plus long.

Par exemple, pour développer la trace d'un ion  $_7^{14}$ N et celle d'un ion  $_8^{16}$ O de perte d'énergie spécifique égale à  $8.5 \times 10^3$  MeV/cm, il faut respectivement 360 et 600 mn ;

c) soit  $\beta$  la vitesse d'un ion exprimée en unités c. Nous savons que, pour une particule non relativiste,  $E/A = 469 \beta^2$  MeV/nucléon.

Considérons deux ions de vitesses  $\beta_1$  et  $\beta_2$  et de pertes spécifiques d'énergie  $I_1$  et  $I_2$ . D'après les expressions précédentes :

$$\left(\frac{\beta_1}{\beta_2}\right)^2 = \frac{p_{\rm R}(t_2)}{p_{\rm R}(t_1)} \frac{I_1 - I_0(t_1)}{I_2 - I_0(t_2)}$$

 $t_1$  et  $t_2$  étant les temps nécessaires pour développer entièrement les traces respectives des deux ions.

Si  $\beta_1 = \beta_2$ , connaissant  $t_1$  et  $t_2$ , on peut en déduire

une relation entre  $I_1$  et  $I_2$  et, partant, entre  $Z_1$  et  $Z_2$  (nombres atomiques).

Il est ainsi possible, en principe, de discriminer des ions de même vitesse, uniquement par la mesure des temps de visualisation intégrale.

Par exemple, considérons deux ions lourds d'énergie égale à 3 MeV/nucléon. Supposons que leurs traces soient développées entièrement, respectivement au bout de  $t_1 = 65$  et  $t_2 = 480$ .

$$I_1 = 2,53 I_2 - 6,16$$
.

D'après la formule de Bethe, on a

$$\frac{Z_1^*}{Z_2^*} = \left(\frac{I_1}{I_2}\right)^{\frac{1}{2}}.$$

On peut utiliser la formule de Papineau [36] pour exprimer  $Z^*$  en fonction de Z et de E/A. Les deux nombres suivants constituent une solution du problème :

$$Z_1 = 16$$
  
 $Z_2 = 10$ .

Dans le cas où il y a plusieurs solutions possibles, les longueurs des traces développées fournissent une discrimination supplémentaire.

G. VALEUR CRITIQUE  $I_s$  DE LA PERTE SPÉCIFIQUE D'ÉNERGIE EN DESSOUS DE LAQUELLE LE PASSAGE D'UN ION NE PEUT ÊTRE MIS EN ÉVIDENCE. — Déterminons le temps d'attaque chimique minimal nécessaire pour mettre en évidence le début de la trace d'une particule d'énergie et de perte spécifique d'énergie données.

L'expérience consiste à développer chimiquement des traces dans du makrofol et à noter, pour chaque ion d'une certaine énergie, le temps qu'il faut exactement pour voir apparaître le début de sa trace. La réalisation expérimentale est assez délicate du fait qu'en principe elle nécessiterait une caméra afin de suivre chronologiquement la cinétique du développement.

Dans notre laboratoire, nous avons fait des développements échelonnés pour des intervalles de temps variant de quelques minutes à quelques dizaines de minutes suivant le cas. De ce fait, les résultats sont moins précis que dans le cas de la visualisation intégrale (cf. § F).

A partir d'une dizaine de points expérimentaux nous avons cherché des expressions reliant  $I_s$  et E/A au temps de développement. Nous avons choisi une expression linéaire, par rapport à  $I_s$  et E/A de la forme

$$I_{\rm S} = I_0 + p_{\rm s} \frac{E}{A}$$

$$\begin{cases} I_0 = \frac{t + 111,5}{1,25 t - 13,8} \\ p_s = 1,4 \exp[^{-4,9 \times 10^{-4}} \times t] \end{cases}$$

 $I_{\rm s}$  et  $I_0$  en 10<sup>3</sup> MeV/cm, E/A en MeV/nucléon, t en minutes ( $\gtrsim$  12 mn).

avec

Sur le graphique (Fig. 7)  $I_s$  est représenté par un ensemble de droites dont l'ordonnée à l'origine  $I_0$  et la pente  $p_s$  sont des fonctions décroissantes du temps.



FIG. 7. — Temps d'apparition des traces.

Donc, pour un temps d'attaque chimique t donné, nous distinguons trois zones délimitées, d'une part par la droite  $I_s$  et d'autre part par la droite  $I_R$  sur le graphique des pertes spécifiques d'énergie. Sur la figure 8, nous montrons ces trois zones, pour deux temps d'attaque différents.



FIG. 8. — Les différentes zones de visualisation : nulle, partielle ou intégrale.

Dans la zone I (L = 0) on ne voit aucune trace lorsqu'on développe la feuille de makrofol irradiée. Dans la zone II (0 < L < R) on peut déceler des traces d'ion dont les longueurs varient de 0,5  $\mu$  à celles correspondant aux parcours d'absorption. Dans la zone III (L = R), on peut développer intégralement les parcours d'absorption.

La connaissance de l'expression de Is peut nous fournir une méthode de discrimination des ions. En effet, en développant une feuille irradiée, on peut noter au bout de combien de temps on fait apparaître les débuts de trace. On peut alors connaître  $I_{\rm s}$  et partant la relation entre  $I_s$  et E/A. Si l'on connaît en plus E/A ou la perte spécifique d'énergie I, on peut en déduire Z graphiquement (ou par les calculs). Cette méthode présente un avantage sur celle de la visualisation totale lorsque l'ion ne s'arrête pas dans le détecteur. On peut alors imaginer un empilement de feuilles de makrofol d'épaisseurs connues. En développant les feuilles dans l'ordre et en notant les temps de développement correspondants nécessaires, il est possible par approximations successives, d'avoir une bonne détermination de Z et de E/A.

H. EXPRESSION ANALYTIQUE APPROCHÉE DU PAR-COURS DÉVELOPPABLE L EN FONCTION DE LA PERTE SPÉCI-FIQUE D'ÉNERGIE I, DANS LA ZONE  $0 \le L \le R$ . — Dans notre laboratoire, nous avons étudié la variation de la longueur de trace développée en fonction du temps d'attaque [39]. Nous avons trouvé que la vitesse moyenne de développement est pratiquement proportionnelle à la perte spécifique d'énergie I de la particule incidente si celle-ci est plus légère qu'un fragment de fission spontanée ou de fission à basse énergie. D'autres auteurs, dont Benton [17], [39] et Enge [39], [44] ont signalé les mêmes phénomènes dans d'autres détecteurs plastiques.

Partant de ce fait, il est concevable de penser que la longueur de trace développée L est proportionnelle à I. Il est alors permis d'écrire :

$$L - L_0 = kI$$

où k et  $L_0$  sont des paramètres dépendant du temps. On peut déterminer ces paramètres par les conditions aux limites :

$$I = I_{\rm S}, \qquad L = 0$$
$$I = I_{\rm R}, \qquad L = R$$

 $I_{R}$  étant l'ordonnée du point d'intersection d'une droite définie au § F avec la courbe dE/dx considérée.

$$L = R \frac{I - I_{\rm S}}{I_{\rm R} - I_{\rm S}}$$

les grandeurs  $I_{R}$  et  $I_{S}$  ayant été définies respectivement aux § F et G.

Rappelons que la perte spécifique d'énergie est maximale si la vitesse de la particule est égale à la vitesse de l'électron de Bohr. Cette valeur maximale correspond à [28] :

$$\left(\frac{E}{4}\right)_{\rm max} = 0,025 \ Z^{4/3}$$

E/A en MeV/nucléon, Z en U. M. A.

Donc, si  $I_{\rm R}$  est telle que son abscisse est supérieure ou égale à 0,025  $Z^{4/3}$  MeV/nucl., l'expression ci-dessus de L est valable.

L'expression de L en fonction de I lorsque  $I_{\rm R} < I_{\rm maximum}$  est probablement différente de celle que nous donnons plus haut, mais c'est le domaine des vitesses très faibles, donc généralement des traces courtes, sauf pour les fragments de fission spontanée ou de fission à basse énergie, lesquels ont déjà fait l'objet d'autres études particulières [28].

Si la particule incidente n'est pas relativiste, nous pouvons écrire  $\beta^2 \simeq E/469$  A. Dans la formule de Bethe, cette expression est négligeable et alors, en faisant apparaître l'énergie par nucléon, nous avons :

$$I = -\frac{dE}{dx} = 0,21 \times 10^3 Z^2 \times \left[1 - \exp\left(\frac{-5,772\sqrt{E/A}}{Z^{2/3}}\right)\right]^2 \times \frac{\log_{10} 30,77 E/A}{E/A} \text{ en MeV/cm}$$

LE JOURNAL DE PHYSIQUE. - T. 32, Nº 10, OCTOBRE 1971

Sur la figure 9, nous représentons les parcours développables de quelques ions en fonctions de l'énergie, pour un temps de développement de 90 mn. Nous avons représenté en trait plein le parcours visualisable. Pour chaque ion considéré, il y a deux points particuliers : le point de rebroussement sur la courbe d'absorption et le point sur l'axe des ordonnées. Ces



FIG. 9. — Parcours visualisable de certains ions pour t = 90 mn.

points correspondent respectivement aux pertes spécifiques d'énergie  $I_{\rm R}$  et  $I_{\rm S}$ . On remarque que plus le temps d'attaque chimique est long, plus les coordonnées de ces deux points particuliers sont grandes. Nous insistons sur le fait qu'il faut corriger les « parcours visualisables » du rongement de surface. Autrement dit, le parcours réellement visible et mesurable est celui indiqué par l'abscisse sur le graphique de la figure 9, auquel il faut retrancher la partie rongée de la trace. Par exemple, si le temps d'attaque chimique est de 90 mn et que l'angle d'incidence de l'ion est de 45°, il faut retrancher 1  $\mu$  pour avoir la longueur réellement visible.

Sur les figures 10 et 11, nous reproduisons les valeurs expérimentales obtenues pour les ions <sup>14</sup>N et <sup>16</sup>O et pour 90 mn d'attaque chimique. Les courbes semiempiriques traduisent d'une manière très acceptable les positions des points expérimentaux.

**Conclusion.**— Parmi les cinq grandeurs R, I,  $I_R$ ,  $I_S$  et L que nous venons d'étudier dans le makrofol, les deux premières ne dépendent que de l'ion alors que les autres peuvent prendre des valeurs très variées suivant les choix des paramètres. Il est souvent utile, dans les études de discrimination d'ions, d'associer entre eux des détecteurs de différentes natures. Il est alors néces-



FIG. 10. - Parcours visualisables de l'azote 14.



FIG. 11. - Parcours visualisables de l'oxygène 16.

saire de bien connaître les détecteurs utilisés et de définir pour chacun d'entre eux les cinq grandeurs précédentes. Le choix d'un détecteur est a priori fonction du problème à étudier, mais l'utilisateur devrait tenir compte de certaines qualités intrinsèques requises pour un tel choix. En effet, il faut s'assurer que le matériau dont on dispose résiste aux traitements physicochimiques auxquels il est soumis. La nitrocellulose par exemple est un détecteur très sensible, mais elle est peu recommandable pour certaines études nécessitant des traitements sévères. Elle contient une quantité assez importante de plastifiant qui migre vers les surfaces alors qu'elle absorbe assez facilement de l'eau dans sa masse. De ce fait, l'épaisseur de la feuille peut devenir très variable suivant les conditions d'attaque chimique et il est difficile d'établir une courbe standard de rongement de surface. En plus, une exposition prolongée aux ultra-violets et aux photons de faible longueur d'onde est nuisible à ce genre de détecteur. Le makrofol, par contre, n'absorbe pratiquement pas d'eau, ne contient qu'une quantité insignifiante de plastifiant, résiste facilement à des températures de 100 °C et est peu sensible à un flux moyen (~  $10^{12}$  de) photons.

Dans les études de la fission et de la fragmentation des ions très lourds, nous développons d'une façon générale nos détecteurs toujours dans les mêmes conditions et pendant une durée bien déterminée. Or, il se présente assez souvent des fragments rapides et relativement légers qui nécessitent un temps d'attaque chimique plus poussé pour être entièrement développés. Dans les calculs de détermination de masses, il faut tenir compte de cet état de fait. On pourrait suggérer qu'il serait plus facile de prolonger la durée d'attaque chimique jusqu'au développement intégral des traces de tous les fragments. Mais cela n'est pas toujours commode pour un certain nombre de raisons. Tout d'abord, on augmente considérablement le bruit de fond car on verra apparaître tous les produits de recul et les résultats des interactions secondaires avec les noyaux de l'édifice macromoléculaire du détecteur. Ensuite, les diamètres des traces des fragments lourds vont être agrandis et l'on perdra alors en précision dans les mesures géométriques des événements. Enfin, si les particules incidentes sont elles-mêmes des ions lourds comme de l'<sup>16</sup>O, du <sup>22</sup>Ne ou de l'<sup>40</sup>A, on a intérêt à développer pendant un minimum de temps pour que les traces du faisceau ne soient elles-mêmes visibles dans le détecteur.

Nous avons abordé par le biais expérimental l'étude de l'enregistrement des traces dans le makrofol sans trop nous soucier du mécanisme exact de la formation de ces traces. Il semble que l'hypothèse des rayons delta ne soit pas aberrante. Néanmoins, il y a encore, dans les détecteurs plastiques, des phénomènes difficiles à expliquer au stade de nos connaissances actuelles. Nous avons noté en particulier un petit effet d'anisotropie dans le makrofol. Lorsque l'angle d'incidence de l'ion par rapport à la surface de la feuille est voisin de  $\pi/2$ , la longueur de trace développée est plus faible que pour une trace rasante à temps de développement égal ; la différence entre les longueurs observées est plus grande que l'incertitude due aux mesures optiques. Il semble qu'il faille corriger les résultats de mesure d'un facteur d'affinité, lequel est fonction croissante de l'angle d'incidence, pour équilibrer cet effet d'anisotropie. Dans le présent travail, la majorité des ions avaient un angle d'incidence de 45° et un certain nombre pénétraient dans le détecteur à 20°. La différence observée entre les longueurs mesurées n'est pas significative pour ces deux angles. Il serait très intéressant de connaître la cause de cette anisotropie : est-elle due à un défaut systématique d'homogénéité suivant certaines directions du fait des traitements physicochimiques subis par le matériau, ou a-t-elle une origine plus profonde qu'il faudrait chercher dans le mécanisme même de la formation des traces ?

Cette étude a été exécutée au Laboratoire de Physique Corpusculaire de Strasbourg dirigé par le Professeur P. Cüer.

Remerciements. — Nous tenons à remercier :

— le Professeur Bock et l'équipe des accélérateurs Van de Graaf de Heidelberg (Allemagne);

— le professeur Lefort et l'équipe de l'accélérateur Cevil d'Orsay ;

— le Professeur Flerov, le Docteur Perelygin et l'équipe du cyclotron à ions lourds de Dubna (U. R. S. S.);

— les Docteurs Schatz et Münzel ainsi que l'équipe du cyclotron de Karlsruhe, pour le temps qu'ils ont bien voulu nous consacrer et pour les facilités qu'ils nous ont ménagées lors des irradiations.

Nous remercions également toute l'équipe de techniciens de notre laboratoire pour leur collaboration dans la mise en œuvre des parties expérimentales et dans les mesures souvent fastidieuses des événements.

#### Bibliographie

- [1] DEBEAUVAIS (M.) et CUER (P.), C. R. Acad. Sci. Paris, 1965, 261, 2633.
- [2] DEBEAUVAIS (M.), STEIN (R.), REMY (G.) et RALAROSY (J.), C. R. Acad. Sci. Paris, 1966, 263, 398.
- [3] DEBEAUVAIS (M.), Informal European Conference of the interaction of high energy particles and complex nuclei Roros, 28.8/1.9. 1967.
- [4] DEBEAUVAIS (M.), STEIN (R.), RALAROSY (J.) and CÜER (P.), Nucl. Phys., 1967, A 90, 186.
- [5] DEBEAUVAIS (M.), STEIN (R.), REMY (G.), et RALA-ROSY (J.), Suppl. J. Physique, 1968, 29, C1-127.
- [6] STEIN (R.), REMY (G.), RALAROSY (J.), TRIPIER (J.) et DEBEAUVAIS (M.), Jourentra, Clermont-Ferrand, 6-9 mai 1969.
- [7] REMY (G.), RALAROSY (J.), STEIN (R.), DEBEAUVAIS
  (M.) et TRIPIER (J.), J. Physique, 1970, 31, 27.
- [8] REMY (G.), RALAROSY (J.), STEIN (R.), DEBEAUVAIS
  (M.) et TRIPIER (J.), Nucl. Phys., 1971, A 163, 583.

- [9] BRANDT (R.), CARBONARA (F.), CIESLAK (E.), DAKOWSKI (M.), GFELLER (Ch.), PIEKARZ (H.), PIEKARZ (J.), RIEZLER (W.), RINZIVILLO (R.), SASSI (E.), SOWINSKI (M.) and ZAKRZEWSKI (J.), Nucl. Phys., 1967, A 90, 177.
- [10] BRANDT (R.), CARBONARA (F.), CIESLAK (E.), JARS-TORFF (I.), PIEKARZ (J.), RINZIVILLO (R.) and ZAKRZEWSKI (J.), J. Physique, 1970, 31, 21.
- [11] CASANOVA (J.), NALDA (J.), VALLE (J.), 7<sup>e</sup> Congrès International de photographie corpusculaire et de détecteurs solides, Barcelone, 6-11 juillet 1970.
- [12] JURIC (M.), ANTANASIJEVIC (R.), VUKOVIC (J.), Barcelone, 6-11 juillet 1970.
- [13] AIT-SALEM (M.), GERHARDT (H.), GONNENWEIN (F.), HIPP (H.) et PAAP (H.), Nucl. Instr. and Meth., 1968, 60, 1.
- [14] DEBEAUVAIS (M.) et CÜER (P.), C. R. Acad. Sci. Paris, 1964, 258, 1777.
- [15] DEBEAUVAIS (M.) et MONNIN (M.), C. R. Acad. Sci. Paris, 1965, 260, 4728.
- [16] MONNIN (M.), Thèse 1969, Clermont-Ferrand;
  « Etude de l'interaction des particules lourdes ionisantes avec les macromolécules à l'état solide » PNCF 68-RI 9, Clermont-Ferrand, juin 1969.
- [17] BENTON (E. V.), U. S. N. R., TR 67, July 30, 1967;
  U. S. N. R. D. L. Report TR-68-14, 1968; Jourentra, Clermont-Ferrand, 6-9 mai 1969.
- [18] BENTON (E. V.) and HENKE (R. P.), U. S. N. R. D. L., TR 1102, nov. 1966.
- [19] FLEISCHER (R. L.), PRICE (P. B.) and WALKER (R. M.), Ann. Rev. Nucl. Sci., 1965, 15, 1.
- [20] PETERSON (D. D.), Thèse 1970, Rensselaer Polytechnic Institute Troy New York.
- [21] SILK (E. Ch.) and BARNES (R. S.), *Phil. Mag.*, 1959, **4**, 970.
- [22] PRICE (P. B.) and WALKER (R. M.), *Phys. Rev. Letters*, 1962, **8**, 217.
- [23] FLEISCHER (R. L.), PRICE (P. B.) and WALKER (R. M.), J. Appl. Phys., 1965, 36, 3645.
- [24] KATZ (R.) and KOBETITCH (E. J.), *Phys. Rev.*, 1968, **170**, 401.
- [25] PFOHL (R.), MONNIN (M.) et DEBEAUVAIS (M.), C. R. Acad. Sci. Paris, 1965, **261**, 2216.
- [26] BRINKMAN (J. A.), Amer. Journ. Phys., 1956, 24, 246.
- [27] CÜER (P.), Réunion de travail sur l'enregistrement des traces des particules chargées dans les cristaux Strasbourg, 13-14 mai 1963.
- [28] RALAROSY (J.), SCHMITT (R.), MOSINSKI (G.), TRIPIER
  (J.), DEBEAUVAIS (M.), STEIN (R.) et REMY (G.), J. Physique, 1969, 30, 1.
- [29] TUYN (J. W. N.) and BRŒRSE (J. J.), Barcelone, 6-11 juillet 1970.

- [30] SOMOGYI (G.), Atomki Köl, 1967, 9, 77.
  - Somogyi (G.), VARNAGY (M.) and PETÖ (G.), Nucl. Instr. and Meth., 1968, **59**, 299.
  - SOMOGYI (G.), SCHLENK (B.), VARNAGY (M.), MESKO (L.) and VALEK (A.), Nucl. Instr. and Meth. 1968, 63, 189.
- [31] MEDVECKY (L.), Jourentra, Clermont-Ferrand, 6-9 mai 1969.
  - Somogyi (G.), VARNAGY (M.) and MEDVECKY (L.), Jourentra, Clermont-Ferrand, 6-9 mai 1969.
- [32] TRIPIER (J.), DEBEAUVAIS (M.), STEIN (R.), RALAROSY
  (J.) et MULLER (C.), Colloque de Lille (17-20 mai 1968).
  - TRIPIER (J.), DEBEAUVAIS (M.), STEIN (R.), RALAROSY (J.) et REMY (G.), JOURENTRA, Clermont-Ferrand, 6-9 mai 1969, *Radiation effects* (Scotland), 1970, 3, 221.
- [33] MONNIN (M.), Jourentra, Clermont-Ferrand, 6-9 mai 1969.
  - CHAVE (A.) et MONNIN (M.), Jourentra, Clermont-Ferrand, 6-9 mai 1969.
- [34] ENGE (W.), MOMO (L. R.) et FILZ (R. C.), Jourentra, Clermont-Ferrand, 6-9 mai 1969.
  - BEAUJEAN (R.), MEYERBRŒKER (H.) et ENGE (W.), Jourentra, Clermont-Ferrand, 6-9 mai 1969.
- [35] RALAROSY (J.), DEBEAUVAIS (M.), STEIN (R.), REMY
  (G.) et TRIPIER (J.), C. R. Acad. Sci., Paris, 1969, 269, 593.
- [36] BARKAS (W. H.), Nuclear Research Emulsions, Academic Press, 1963.
- [37] Experimental Nuclear Physics, Vol. I, Segré Editor, 1953.
- [38] STERNHEIMER (R. M.), Phys. Rev., 1966, 145, 247.
- [39] DEBEAUVAIS (M.), RALAROSY (J.), REMY (G.), STEIN
  (R.) et TRIPIER (J.), Barcelone, 6-11 juillet 1970.
- [40] ABDULLAEV (Kh.), PERELYGIN (V. P.), TETRIAKOVA (S. P.), SHADIEVA (S. P.), P. T. E. nº 6, 40 (1968).
- [41] VEPRIK (Ya. M.), PERELYGIN (V. P.), ROMANENKO (V. P.), TETRIAKOVA (S. P.), VINOGRADOV (Yu. A.) P. 13-4975, J. I. N. R., Dubna, 1970.
- [42] SEITZ (F.) and KŒHLER (J. S.), Displacement of Atoms during irradiations Sol. State Phys., Academic Press, N. Y., 1956, 2, 307.
- [43] CHADDERTON (L. T.), Radiation damage in Crystals Methuen and Co, London (1965).
- [44] ENGE (W.), BARTHOLOMÄ (K. P.), FUKUI (K.) and FILZ (R. C.), 11th International Conference on Cosmic Rays Budapest, Hungary (August 1969).
- [45] FLEISCHER (R. L.), PRICE (P. B.) and WALKER (R. M.), Phys. Rev., 1967, 156, nº 2, 155.