

Zeitschrift: Helvetica Physica Acta
Band: 25 (1952)
Heft: I-II

Artikel: Diffraction des neutrons lents par les poudres microcristallines d'UO₂ et de CeO₂
Autor: Verdaguer, F. / Sánchez del Rio, C. / Keller, R.
DOI: <https://doi.org/10.5169/seals-112301>

Nutzungsbedingungen

Die ETH-Bibliothek ist die Anbieterin der digitalisierten Zeitschriften. Sie besitzt keine Urheberrechte an den Zeitschriften und ist nicht verantwortlich für deren Inhalte. Die Rechte liegen in der Regel bei den Herausgebern beziehungsweise den externen Rechteinhabern. [Siehe Rechtliche Hinweise.](#)

Conditions d'utilisation

L'ETH Library est le fournisseur des revues numérisées. Elle ne détient aucun droit d'auteur sur les revues et n'est pas responsable de leur contenu. En règle générale, les droits sont détenus par les éditeurs ou les détenteurs de droits externes. [Voir Informations légales.](#)

Terms of use

The ETH Library is the provider of the digitised journals. It does not own any copyrights to the journals and is not responsible for their content. The rights usually lie with the publishers or the external rights holders. [See Legal notice.](#)

Download PDF: 15.03.2025

ETH-Bibliothek Zürich, E-Periodica, <https://www.e-periodica.ch>

Diffraction des neutrons lents par les poudres microcristallines d'UO₂ et de CeO₂

par F. Verdaguer, C. Sánchez del Río, R. Keller et A. Kind.

(15 IX 1951.)

Résumé. Des mesures de transmissions ont été effectuées avec des neutrons monocinétiques dans les poudres microcristallines d'UO₂ et de CeO₂. L'étude théorique des courbes de sections efficaces en fonction de la longueur d'onde associée aux neutrons permet de déterminer la valeur et le signe de l'amplitude de diffusion de l'uranium et du cérium.

Introduction.

La moyenne de la section efficace totale, prise sur toutes les orientations d'un cristal, telle qu'on la trouve dans une poudre cristalline, présente un saut brusque chaque fois que la distance réticulaire d'un système de plans est égale à un multiple entier de la demi-longueur d'onde associée aux neutrons. Nous avons le même phénomène que celui de la diffraction des rayons X par la méthode DEBYE-SCHERRER. L'étude de la section efficace totale permettra, si la structure réticulaire est connue, de déduire des données intéressantes sur la diffusion des neutrons lents par les noyaux atomiques.

D'autre part, l'effet de diffraction diminue au fur et à mesure que la longueur d'onde devient plus courte, et pour des neutrons suffisamment énergétiques (pratiquement de l'ordre de 1 eV) on peut admettre une additivité des sections efficaces des différents noyaux.

Les premières considérations théoriques sur la transmission d'une poudre de microcristaux non orientés ont été faites par HALPERN, HAMMERMESH et JOHNSON¹⁾ et par WEINSTOCK²⁾, et les premières mesures par FERMI, STURM et SACHS³⁾ avec de la poudre de Be et de BeO. D'autres auteurs ont publié des mesures réalisées suivant cette direction⁴⁾, et la possibilité d'une orientation des cristaux a aussi été envisagée⁵⁾.

Dans le présent travail nous discutons des mesures semblables effectuées sur l'UO₂ et le CeO₂ avec le sélecteur de vitesses de l'Institut de Physique de l'Université de Genève⁶⁾.

Méthode expérimentale et résultats.

La marche des mesures ainsi que les corrections du temps de vo sont essentiellement celles décrites sous réf.⁶). Nous avons fait deux séries de mesures :

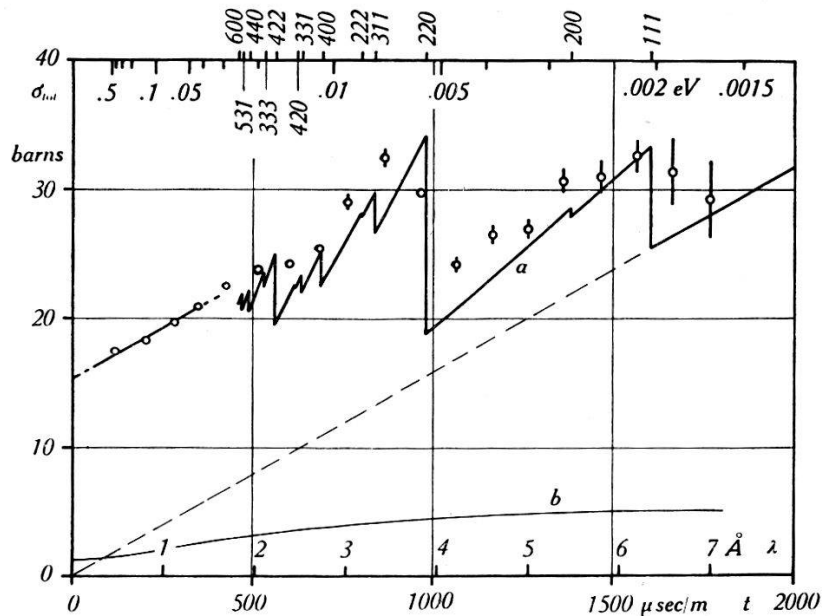


Fig. 1.

- a* Courbe théorique de la section efficace totale de l' UO_2
b Correction due à 1,8⁰/₁₀₀ d'eau.
 ◊ Valeurs expérimentales corrigées par rapport à l'eau.

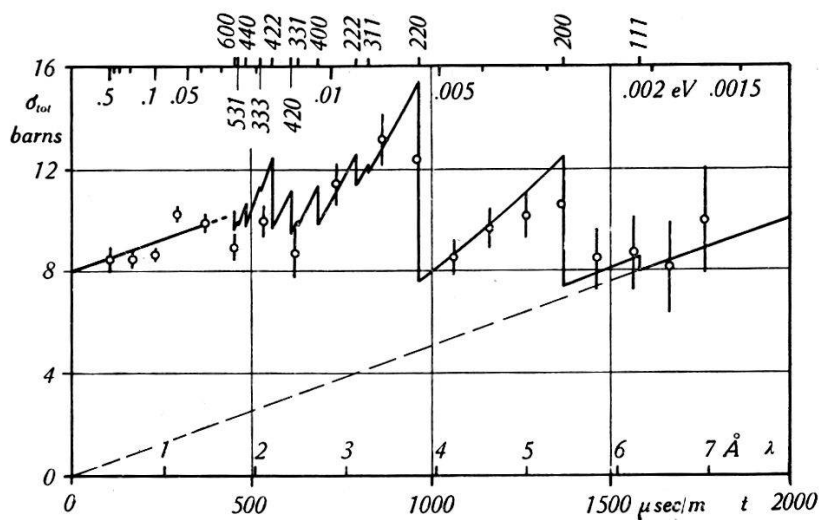


Fig. 2.

Mesure et calcul de la section efficace totale du CeO_2 .

a) Le modérateur de neutrons entourant la source n'est pas refroidi. Son épaisseur est de 5 cm. Distance compteur-modérateur = 3,00 m. Période de pulsation de la source = 4000 μsec . Domaine de mesure: 100 à 800 $\mu\text{sec/m}$.

b) La couche extérieure du modérateur, soit 2 cm d'épaisseur, est refroidie avec de l'oxygène liquide. Epaisseur totale de la paraffine = 5 cm. Distance compteur-modérateur = 2,50 m. Période de pulsation de la source = 5000 μ sec. Domaine de mesure: 800 à 1800 μ sec/m. Nous devons ici considérer l'erreur due aux neutrons retardés provenant d'un cycle précédent. La forme asymptotique du spectre de MAXWELL vers les grands temps de vol est en t^{-4} . Nous soustrayons donc à chaque nombre de neutrons comptés une fraction proportionnelle à $(t/5000)^4$ où t est le temps de vol en μ sec.

Les éprouvettes ont une section de $7,50 \times 20,31$ cm². La concentration en UO₂ est de 27,73 g/cm² pour le domaine entre 100 et 800 μ sec/m et de 18,91 g/cm² pour le domaine entre 800 et 1800 μ sec/m. La concentration en CeO₂ est de 10,59 g/cm² pour toutes les mesures. Nous déduisons la section efficace par molécule suivant la formule $\sigma_{\text{tot}} = 1/N \ln 1/T$ où N est le nombre de molécules par unité de surface et T la transmission. Nous obtenons finalement les résultats représentés par les fig. 1 et 2.

Discussion.

Dans les figures 1 et 2 nous remarquons distinctement les changements brusques des sections efficaces pour certaines valeurs du temps de vol. Avec la hauteur absolue de la courbe et la valeur des différents sauts nous avons suffisamment de données pour déterminer l'amplitude de diffusion de l'uranium et du cérium ainsi que la section efficace de capture. Cette dernière est donnée par l'inclinaison de la courbe à l'origine. Malheureusement l'effet de diffraction s'étend jusqu'à des énergies relativement hautes et fera apparaître une pente légèrement plus forte, d'où une capture un peu trop grande (1 à 2% au plus).

L'UO₂ et le CeO₂ appartiennent cristallographiquement au même système cubique dont la structure type est celle de la fluorine⁷).

Nous allons envisager l'expression théorique de la section efficace apparente due aux chocs élastiques seuls, déduite par WEINSTOCK²) et généralisée pour les cristaux polyatomiques par FERMI et collaborateurs³):

$$\sigma_{ap} = 9,60 \cdot 10^{-10} \sum_{b < \frac{2}{\lambda}} p F t^2 \cdot 1/b \cdot e^{-\omega b^2}$$

Elle est mise sous une forme adéquate et valable pour une molé-

cule. σ_{ap} et F sont donnés en barns, b en Å^{-1} et t en $\mu\text{sec/m}$; b est la valeur absolue du vecteur du réseau réciproque

$$b_{hkl} = \frac{1}{a} \sqrt{h^2 + k^2 + l^2}$$

où a est la dimension de la cellule et h, k, l , les indices de MILLER multipliés par l'ordre de diffraction.

L'expression du facteur de forme est pour le moment

$$F = 4 \pi \left| A_1 \sum_{x_1 y_1 z_1} \exp 2 \pi i (h x_1 + k y_1 + l z_1) + A_2 \sum_{x_2 y_2 z_2} \exp 2 \pi i (h x_2 + k y_2 + l z_2) \right|^2$$

où A_1 est l'amplitude de diffusion de l'uranium ou du cérium, A_2 celle de l'oxygène. Elles sont données par la formule

$$\sigma_a = 4 \pi A^2 \mu^2$$

où σ_a est la section efficace de diffusion du noyau libre et μ la masse réduite du neutron par rapport au noyau.

x_1, y_1, z_1 sont les coordonnées des 4 atomes d'U ou de Ce dans la cellule.

x_2, y_2, z_2 les coordonnées des 8 atomes d'oxygène,

p la multiplicité d'un système de plans,

ω une constante dépendant de la température de DEBYE du cristal.

La position des sauts de la section efficace est donnée par $t_{hkl} = 506/b_{hkl}$ en $\mu\text{sec/m}$.

L'expression de ω donnée par la formule 30 de l'article de WEINSTOCK dépend d'une température de DEBYE unique du cristal. Nous allons ici suivre l'exemple de WOLLAN et SHULL⁸⁾ pour tenir compte du fait que nous avons des cristaux à deux sortes d'atomes. A la place de $F \cdot e^{-\omega b^2}$ nous écrirons maintenant

$$4 \pi \left| A_1 e^{-\omega_1 b^2/2} \sum_{x_1 y_1 z_1} \exp 2 \pi i (h x_1 + k y_1 + l z_1) + A_2 e^{-\omega_2 b^2/2} \sum_{x_2 y_2 z_2} \exp 2 \pi i (h x_2 + k y_2 + l z_2) \right|^2$$

où ω_1 est donné par la température de DEBYE de l'U ou du Ce et ω_2 par celle de l'O. Suivant un travail de RUSSELL⁹⁾ les températures de DEBYE sont les suivantes :

pour U_3O_8 : $\Theta_U = 182^\circ \text{K}$; $\Theta_O = 800^\circ \text{K}$,

pour CeO_2 : $\Theta_{\text{Ce}} = 125^\circ \text{K}$; $\Theta_O = 800^\circ \text{K}$.

(Nous prendrons les mêmes températures pour UO_2 , inconspicuité justifiée par le fait que l'expression $e^{-\omega b^2}$ est voisine de l'unité dans le domaine important de nos mesures.)

La formule pour σ_{ap} déduite par WEINSTOCK est seulement valable pour des éléments monoisotopes de spin zéro. Les isotopes principaux de l'U, du Ce et de l'O sont des noyaux pairs-pairs, donc de spin nul. Il est probable que les deux isotopes Ce^{140} et Ce^{142} d'abondance 88,5% et 11,1% respectivement ont la même amplitude de diffusion, ce qui est généralement le cas pour les éléments¹⁰). Il nous est donc permis d'appliquer la formule de WEINSTOCK.

Selon les données cristallographiques de WYCKOFF⁷) l' UO_2 et le CeO_2 possèdent la cellule élémentaire suivante:

$$a_{\text{U}} = 5,47 \text{ \AA}; \quad a_{\text{Ce}} = 5,41 \text{ \AA}$$

$$\text{U ou Ce} \begin{cases} 0 & 0 & 0 \\ 0 & 1/2 & 1/2 \\ 1/2 & 0 & 1/2 \\ 1/2 & 1/2 & 0 \end{cases} \quad 0 \begin{cases} 1/4 & 1/4 & 1/4 & 1/4 & 1/4 & 3/4 \\ 1/4 & 3/4 & 3/4 & 1/4 & 3/4 & 1/4 \\ 3/4 & 1/4 & 3/4 & 3/4 & 1/4 & 1/4 \\ 3/4 & 3/4 & 1/4 & 3/4 & 3/4 & 3/4 \end{cases}$$

Les facteurs de forme dépendant de h, k et l prennent les valeurs selon les règles suivantes:

$$\begin{aligned} \text{pour } h, k, l \text{ impairs} & \quad F = 64 \pi |A_1 e^{-\omega_1 b^2/2}|^2 \\ \text{pour } h, k, l \text{ de diverses parités} & \quad F = 0 \\ \text{pour } h, k, l \text{ pairs} \begin{cases} h+k+l=4 \\ h+k+l \neq 4 \end{cases} & \quad \begin{cases} F = 64 \pi |A_1 e^{-\omega_1 b^2/2} + 2 A_2 e^{-\omega_2 b^2/2}|^2 \\ F = 64 \pi |A_1 e^{-\omega_1 b^2/2} - 2 A_2 e^{-\omega_2 b^2/2}|^2 \end{cases} \end{aligned}$$

Dans la table I sont représentés les différents systèmes de plans avec le facteur de forme (en omettant les exponentielles) et la multiplicité ainsi que la position des sauts pour l' UO_2 et le CeO_2 .

Le bioxyde d'uranium: Si nous traçons la courbe suivant la formule de WEINSTOCK en introduisant les valeurs connues des sections efficaces de l'uranium et de l'oxygène nous constatons un désaccord avec nos mesures. En reportant sur le même graphique la différence entre la mesure et le calcul il apparaît une courbe dont l'allure rappelle celle de la section efficace totale de l'eau. Comme il est également difficile d'obtenir l' UO_2 sec nous avons une raison suffisante pour soustraire à nos valeurs mesurées la section efficace de la quantité d'eau la mieux ajustée. Cette quantité est de 1,8⁰/₀₀. Les valeurs récentes pour l'eau sont publiées par ADAIR¹¹).

Nous introduisons dans la formule de WEINSTOCK l'amplitude de diffusion de l'oxygène $A_2 = 0,58 \cdot 10^{-12}$ cm avec le signe positif suivant la notation de FERMI et MARSHALL¹²). Elle correspond à $\sigma_a = 3,73$ barns¹³).

Pour l'amplitude de diffusion de l'uranium nous introduisons $A_1 = 0,81 \cdot 10^{-12}$ cm correspondant à la valeur déclassée de $\sigma_d = 8,2$ barns¹⁴). On voit tout de suite qu'elle est de même signe que l'amplitude de l'oxygène. En effet, le saut provoqué par le plan (200) est beaucoup plus petit que celui du plan (220), donc $|A_1 - 2 A_2|$ doit être plus petit que $|A_1 + 2 A_2|$.

Table I.

(h, k, l)	F/64 π	p	$t_{hkl} (\mu\text{sec}/\text{m})$	
			UO ₂	CeO ₂
(111)	$ A_1 ^2$	8	1597	1580
(200)	$ A_1 - 2A_2 ^2$	6	1383	1368
(220)	$ A_1 + 2A_2 ^2$	12	978	967
(113)	$ A_1 ^2$	24	834	825
(222)	$ A_1 - 2A_2 ^2$	8	799	790
(400)	$ A_1 + 2A_2 ^2$	6	693	684
(331)	$ A_1 ^2$	24	635	628
(420)	$ A_1 - 2A_2 ^2$	24	619	612
(422)	$ A_1 + 2A_2 ^2$	24	565	558
(333)	$ A_1 ^2$	32	532	526
(440)	$ A_1 + 2A_2 ^2$	12	489	484
(531)	$ A_1 ^2$	48	468	462
(600)	$ A_1 - 2A_2 ^2$	30	461	456

Pour tracer la courbe nous prenons comme section efficace de capture de l'U la valeur déclassée de $\sigma_c = 7,2$ barns¹⁴).

Le choix de la quantité d'eau se fait ainsi: Les premiers points de la courbe de l'UO₂ corrigés par rapport à l'eau doivent se trouver sur une droite dont la pente est proportionnelle à σ_c . (Le premier point est déjà très en dehors de la résonance de capture de l'U²³⁸). L'intersection avec l'ordonnée donne la somme des sections efficaces de diffusion. Si nous déterminons cette droite par la méthode des moindres carrés, en considérant seulement les 4 premiers points, pour lesquels l'effet de diffraction est encore faible, nous obtenons une relation entre σ_c et σ_d de l'uranium. Ces deux grandeurs doivent être ajustées simultanément aux valeurs déclassées. Nous trouvons $\sigma_c = 7,4 \pm 0,4$ et $\sigma_d = 7,9 \pm 0,4$ barns.

Après avoir ainsi ajusté la courbe à la limite des très hautes énergies, nous constatons que les points mesurés se trouvent encore légèrement au-dessus de la courbe calculée. Cette différence doit provenir des chocs inélastiques non contenus dans la formule de

WEINSTOCK que nous appliquons. En particulier vers les très basses énergies ce phénomène a été observé dans le graphite mesuré par ARNOLD, MYERS et WEBER⁵⁾.

Le bioxyde de cérium: La poudre de CeO_2 a été séchée pendant plusieurs heures à une température de 800° . Il est peu probable qu'il reste une quantité appréciable d'eau. L'intersection de la courbe avec l'ordonnée donne une section de diffusion dont la valeur supérieure peut être fixée à 8,0 barns. Il reste donc au maximum 0,6 barns pour le cérium. D'autre part l'ajustage des sauts de diffraction fixe le σ_a également à 0,6 barns. Il n'y a donc pas de place pour l'eau. Par contre il faut admettre une capture totale de 2,3 barns, valeur supérieure à 0,65 barns comme l'indiquent HARRIS et coll.¹⁵⁾ pour le cérium. La présence d'une fraction de quelques cent-millièmes d'autres terres rares peut expliquer ce désaccord. Nous trouvons pour l'amplitude de diffusion du cérium $A_1 = 0,22 \pm 0,02 \cdot 10^{-12}$ cm avec le signe positif comme l'oxygène.

Le CeO_2 possédant la même structure cristalline que l' UO_2 , il est probable que les points mesurés dans le domaine des basses énergies devraient également être situés légèrement au-dessus de la courbe calculée. Cela reviendrait à abaisser la section efficace de capture. Mais comme la précision est insuffisante pour définir avec sûreté la pente du début de la courbe, nous ne pouvons fixer d'avance la capture et chercher un effet de diffusion inélastique.

Nous tenons à remercier la Commission Suisse pour l'Energie Atomique ainsi que M. le Professeur EXTERMANN pour les facilités qu'il nous ont données d'exécuter ce travail. Deux d'entre nous (F.V. et C.S.R.) aimeraient également remercier la JUNTA DE ENERGIA NUCLEAR, Madrid, pour son assistance.

Institut de Physique, Université de Genève.

Bibliographie.

- 1) O. HALPERN, M. HAMMERMESH et M. H. JOHNSON, Phys. Rev. **59**, 981 (1941).
- 2) R. WEINSTOCK, Phys. Rev. **65**, 1 (1944); pour le cas de la diffusion inélastique, voir aussi R. J. FINKELSTEIN, Phys. Rev. **72**, 907 (1947).
- 3) E. FERMI, W. J. STURM et R. G. SACHS, Phys. Rev. **71**, 589 (1947); voir la théorie plus détaillée dans: R. G. SACHS, Scattering of neutrons by polycrystals, AECD-2269 (1947).
- 4) L. WINSBERG, D. MENEGHETTI et S. S. SIDHU, Phys. Rev. **75**, 975 (1949); P. J. BENDT et I. W. RUDERMANN, Phys. Rev. **77**, 575 (1950); I. W. RUDERMANN, Phys. Rev. **78**, 317 (1950); W. C. KOEHLER, E. O. WOLLAN et C. G. SHULL, Phys. Rev. **78**, 640 (1950).

- 5) R. G. SACHS et V. W. MYERS, The effect of crystal orientation on the scattering of slow neutrons, MDDC 1682 (1948); G. ARNOLD et A. H. WEBER, Phys. Rev. **73**, 1385 (1948). G. P. ARNOLD, V. W. MYERS et A. H. WEBER, Phys. Rev. **75**, 217 (1949).
 - 6) R. KELLER, Helv. Phys. Acta **23**, 627 (1950).
 - 7) WYCKOFF, The structure of crystals, 1931.
 - 8) E. O. WOLLAN et C. G. SHULL, Phys. Rev. **73**, 830 (1948).
 - 9) RUSSELL, Phys. Z. **13**, 55 (1912).
 - 10) C. G. SHULL et E. O. WOLLAN, Phys. Rev. **81**, 527 (1951).
 - 11) ROBERT K. ADAIR, Rev. of Mod. Phys. **22**, 249 (1950).
 - 12) E. FERMI et L. MARSHALL, Phys. Rev. **71**, 666 (1947).
 - 13) EDWARD MELKONIAN, Phys. Rev. **76**, 1750 (1949).
 - 14) United States Atomic Energy Commission, S.P.-21 T, Dec. 4, 1950.
 - 15) S. P. HARRIS, C. O. MUELHAUSE, S. RASMUSSEN, H. P. SCHRÖDER et G. E. THOMAS, Phys. Rev. **80**, 342 (1950).
-