

Compteurs de Geiger à comptage interne contenant de la vapeur d'eau tritiée

R. Meunier, M. Bonpas, J.P. Legrand

► **To cite this version:**

R. Meunier, M. Bonpas, J.P. Legrand. Compteurs de Geiger à comptage interne contenant de la vapeur d'eau tritiée. *J. Phys. Radium*, 1955, 16 (2), pp.148-151. <10.1051/jphysrad:01955001602014801>. <jpa-00235106>

HAL Id: jpa-00235106

<https://hal.archives-ouvertes.fr/jpa-00235106>

Submitted on 1 Jan 1955

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.

COMPTEURS DE GEIGER A COMPTAGE INTERNE CONTENANT DE LA VAPEUR D'EAU TRITIÉE

Par R. MEUNIER, M. BONPAS et J. P. LEGRAND,
Commissariat à l'Énergie atomique.

Sommaire. — La théorie du fonctionnement des compteurs à mélange de remplissage formé de gaz rare et de vapeur organique, exposée antérieurement [7], laisse prévoir que l'on peut ajouter une deuxième vapeur organique sous certaines conditions, sans troubler le fonctionnement du compteur.

La vapeur d'eau a été choisie comme vapeur additionnelle. Les mélanges de remplissage fournissent une nouvelle méthode de comptage du tritium, d'une grande simplicité. Des exemples montrent que la concentration minima en tritium mesurable, d'un échantillon d'hydrogène dans un compteur de volume égal à 20 cm³ est de 10⁻¹⁴.

Le comptage du tritium. — Le seul isotope radioactif de l'hydrogène, d'un intérêt considérable comme traceur, est le tritium ou hydrogène de masse 3. Malheureusement le comptage du tritium est difficile, car ce radioélément n'émet que des rayons β dont l'énergie maxima est de 17,95 keV [1] et l'énergie moyenne de 5,69 keV [2]. Les β ont donc un parcours très faible et ils sont absorbés par les parois les plus minces. La période du tritium est assez longue, 12,41 ans [3] et, en conséquence, l'activité des sources est généralement faible. Un comptage avec un rendement voisin de 100 pour 100 est donc désirable. La méthode du comptage interne permet d'atteindre ce but; le tritium est introduit sous forme de gaz dans un compteur de Geiger [4]. Il fait partie du gaz de remplissage et dans tout le volume sensible du compteur toute désintégration provoque une impulsion. Les difficultés de cette méthode sont bien connues et sont de même nature que celles que l'on rencontre lors du comptage du ¹⁴C, l'adjonction d'un gaz quelconque au remplissage d'un compteur de Geiger a les effets les plus néfastes sur les caractéristiques du compteur. Généralement le comptage se fait en utilisant l'hydrogène radioactif pour le remplissage du compteur [4], [5], [6]. Le tritium à mesurer se trouve toujours sous forme d'eau, à un moment de l'expérience, et il faut d'abord opérer une réduction complète de l'eau tritiée, car une séparation isotopique

pourrait facilement entraîner des erreurs. L'échantillon d'eau tritiée est donc perdu au cours de cette opération et ceci élimine la possibilité de refaire le comptage, sans recommencer par la réduction qui est la partie la plus longue et la plus fastidieuse de la mesure.

Le comptage de la vapeur d'eau. — Nous avons essayé de nous débarrasser de cette opération et d'utiliser directement de la vapeur d'eau comme adjonction au gaz de remplissage d'un compteur Geiger autocoupeur.

Il est admis que la vapeur d'eau a un effet particulièrement néfaste sur les caractéristiques des compteurs contenant de l'argon et une vapeur organique. L'expérience confirme l'impossibilité d'introduire de l'eau dans les compteurs conventionnels.

Cependant à la lumière de la théorie modifiée du fonctionnement des compteurs Geiger telle que nous l'avons exposée récemment [7], nous déduisons aisément qu'un mélange de remplissage contenant un gaz rare, une vapeur organique et de la vapeur d'eau sera autocoupeur, c'est-à-dire que le compteur possédera un palier et ne sera pas le siège d'impulsions parasites en choisissant la vapeur organique d'après les conditions suivantes :

$$1^{\circ} E_{i\text{org.}} < E_{i\text{H}_2\text{O}} < E_i ;$$

$$2^{\circ} E_{i\text{org.}} < E_{\text{exc}};$$

3° Absorption par la vapeur organique des photons d'énergie eE_{exc} ;

4° a. Absorption par la vapeur organique ou la vapeur d'eau des photons d'énergie :

$$e(E_i - E_{i(\text{rg.})}),$$

$$e(E_i - E_{i\text{H}_2\text{O}}),$$

$$e(E_{i\text{H}_2\text{O}} - E_{i\text{org.}});$$

b. Sinon :

$$e_i - E_{i\text{org.}} < \Phi,$$

$$e_i - E_{i\text{H}_2\text{O}} < \Phi,$$

$$e_{i\text{H}_2\text{O}} - E_{i\text{org.}} < \Phi;$$

c. Absorption par la vapeur organique des photons d'énergie :

$$e(E_{\text{exc}} - E_{i(\text{rg.})}),$$

$$e(E_{\text{exc}} - E_{i\text{H}_2\text{O}});$$

d. Sinon :

$$E_{\text{exc}} - E_{i(\text{rg.})} < \Phi,$$

$$E_{\text{exc}} - E_{i\text{H}_2\text{O}} < \Phi;$$

5° a. Absorption par la vapeur organique des photons d'énergie :

$$e(E_{i\text{org.}} - \Phi);$$

b. Sinon :

$$E_{i\text{org.}} < 2\Phi.$$

L'analyse des courbes d'absorption et des potentiels d'ionisation des gaz rares [8] des vapeurs organiques [9], [10], [11], [12], [13] et de la vapeur d'eau [15] montre que l'on peut satisfaire à toutes ces relations en choisissant l'argon et le métadi-méthyl-benzène, ou le paradiméthylbenzène comme gaz de remplissage du compteur. Nous avons, en effet :

$$E_i = 15,7 \text{ V},$$

$$E_{\text{exc}} = 13,5, 14, 14,9,$$

$$E_{\text{met}} = 10,5,$$

$$E_{i\text{H}_2\text{O}} = 12,7,$$

$$E_{i\text{vap. org.}} = 8,48, 8,53,$$

$$3 < \Phi < 4 \text{ V}.$$

Les vapeurs organiques considérées ont des systèmes de bandes d'absorption dans les régions 4 à 4,8 V, 5,4 à 7,2 V ainsi que pour les valeurs supérieures à leur potentiel d'ionisation 8,48-8,58 V.

Description des expériences. — COMPTEURS. — Les compteurs utilisés étaient du type « néogamma » à cathode métallique de molybdène ou de nickel enfermée dans un tube de verre. La cathode avait un diamètre intérieur de 18 mm et une longueur totale utile de 75 mm. Le fil de tungstène avait un diamètre de $9/100^{\text{e}}$ de millimètre ou de $15/100^{\text{e}}$.

REMPLISSAGE. — L'argon utilisé était spécialement purifié par passage sur de la tournure d'uranium chauffée à 270° et par deux distillations fractionnées. L'argon était stocké dans des ballons en verre Pyrex dégazés pendant plusieurs jours à 500°. Toutes les vannes à vide étaient des vannes à mercure, ce qui élimine les possibilités de fuite et les ennuis causés par les graisses à vide au contact de vapeur organique. Les liquides organiques étaient soigneusement purifiés. La pureté extrême de l'argon et de la vapeur organique sont des conditions impératives.

Une microfuite, comme il s'en rencontre fréquemment à l'endroit des soudures du verre Pyrex suffit à détériorer complètement les caractéristiques des compteurs, même lorsqu'elle n'empêche pas d'obtenir un vide de $0,5 \cdot 10^{-6}$ mm de Hg. Les vapeurs de mercure provenant des pompes à diffusion de mercure, des manomètres, de la jauge de McLeod

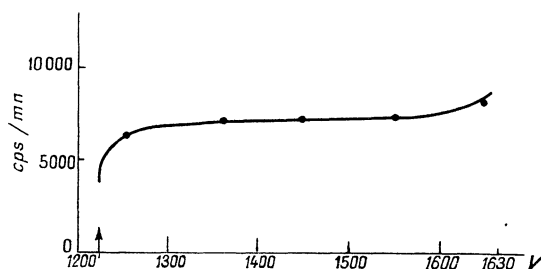


Fig. 1. — Compteur à cathode de nickel rempli à l'eau lourde. Remplissage : Métaxylène, 5,5 mm Hg; Argon. 108 mm Hg; Eau lourde, 14,5 mm Hg.

et des vannes à mercure n'étaient pas éliminées du compteur.

L'état métastable 2^3Po du mercure, 4,7 V, à vie longue de 10^{-2} s, n'entraîne pas d'impulsions parasites dans notre cas [16]; en effet, les diméthylbenzènes possèdent une bande d'absorption dans la région 2600 Å [12], [13], [14] qui correspond à l'énergie de l'état métastable du mercure. Avant tout remplissage, le compteur était laissé sous vide de 10^{-5} mm Hg à 350° pendant quelques heures. Le remplissage s'opère à la tension de vapeur saturante, à une température inférieure ou égale à la température ambiante pour l'eau tritiée et égale à la tension de vapeur à 20° pour la vapeur organique. L'argon complète le remplissage jusqu'à la pression de 100 mm de Hg.

Souvent le compteur présente un palier de 350 V rectiligne, mais en pente, une adjonction d'argon ramène la pente à une valeur inférieure à 2 pour 100 (fig. 1). La présence d'une impureté, telle que des traces d'air, se traduit par un palier court de moins de 200 V, à pente croissant rapidement en fonction de la surtension. Le mélange des gaz n'est complet qu'au bout de quelques heures, ce que l'on peut vérifier en suivant les variations du taux de comp-

tage du compteur après remplissage avant de le sceller.

La présence de vapeur d'eau dans le compteur élève le seuil de fonctionnement du compteur qui peut passer de 1000 à 2000 V. Le grand nombre de rotations et de vibrations des molécules polyatomiques accroît la probabilité pour un électron accéléré par le champ de ne pas conduire à l'ionisation en donnant seulement un choc inélastique, au fur et à mesure que la pression de vapeur d'eau croît. Si l'eau se condense, des défauts d'isolement apparaissent dans le compteur, on peut y remédier par chauffage.

Discussion de la méthode. — Cette méthode a l'avantage d'être simple, rapide et reproductible, car l'échantillon d'eau étudié peut servir à plusieurs remplissages et mesures indépendantes. La séparation isotopique à l'évaporation simple est en effet très faible. La méthode est précise, car la quantité de vapeur d'eau déterminée par sa tension de vapeur saturante est connue avec une bonne précision. Le rendement du compteur dans son volume sensible est égale à 100 pour 100, comme nous l'avons vérifié en étudiant d'une part un tel compteur en zone proportionnelle, et d'autre part en mesurant la variation de son rendement pour les rayons γ en fonction de sa teneur en vapeur d'eau.

La stabilité des compteurs remplis à la vapeur d'eau est remarquable. Plusieurs compteurs conservés pendant trois mois, ne montrent aucune variation dans leurs caractéristiques, ni dans leurs taux de comptage, qui allaient de 15 000 à 1 impulsions/mn, à l'exception de la faible décroissance du tritium pendant cette durée.

Un comptage de 10^7 impulsions ne modifie pas leur palier.

La décontamination de l'installation se fait aisément. Il suffit de la laisser sous vide voisin de 10^{-5} mm Hg pendant quelques heures, pour que l'activité d'un compteur rempli à nouveau, à blanc, ne dépasse pas $1/100^e$ de l'activité initiale. Des rentrées d'air non desséché, suivi de pompage décontaminent complètement l'installation.

Mesures effectuées et limite de sensibilité. — Nous avons fait des mesures sur de l'eau de concentration isotopique en tritium comprise entre 10^{-14} et 10^{-8} . L'eau tritiée a été produite en irradiant le sel hydraté $\text{LiNO}_3 \cdot 3\text{H}_2\text{O}$ à la pile de Châtillon.

On peut penser qu'une grande partie des noyaux de tritium se combine avec les radicaux libre OH provenant de la dissociation de l'eau de cristallisation par le rayonnement de la pile. Nous avons donc extrait l'eau de cristallisation par distillation à chaud, en atmosphère oxydante (oxygène ozonisé). La première distillation nous fournit $0,8 \pm 0,1 \text{ cm}^3$ d'eau. Une deuxième extraction fut faite après

adjonction d'un peu d'eau au sel déshydraté, ainsi qu'une troisième, qui donnèrent respectivement 3,2 et $2,2 \text{ cm}^3$ d'eau. L'activité de la première fraction fut mesurée après dilution de 14 mg dans 377 mg d'eau distillée. Les mesures donnèrent les valeurs suivantes :

| Température. | Activité à la minute. | A (fig. 2). | Concentration. |
|-----------------|-----------------------|------------------|----------------------------|
| — 4° | 8 500 \pm 100 | 1,2 . 10^{-12} | 2,75 . 10^{-6} |
| — 10° | 5 100 \pm 100 | 2,0 . 10^{-12} | 2,75 . 10^{-6} |
| — 10° | 4 900 \pm 100 | 2,0 . 10^{-12} | 2,64 . 10^{-6} |
| — 18° | 1 800 \pm 100 | 4,2 . 10^{-12} | 2,05 . 10^{-6} |
| — 10° | 5 500 \pm 100 | 2,0 . 10^{-12} | 2,96 . 10^{-6} |
| Moyenne | | | 2,60 \pm 0,3 . 10^{-6} |

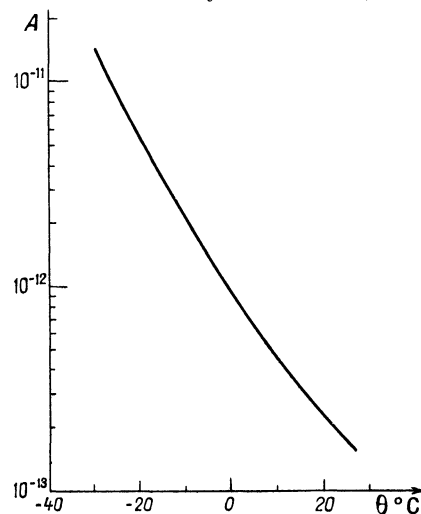


Fig. 2. — Concentration en tritium de l'eau contenu dans un compteur mégagamma de 18 cm^3 de volume utile

$$C = 3,97 \cdot 10^{-12} \frac{\tau}{f(\theta)}$$

La courbe donne la valeur A telle que $C = A\tau$ (τ , taux de comptage à la minute).

L'activité de la deuxième fraction fut trouvée de même égale à $2,06 \pm 0,5 \cdot 10^{-8}$ et celle de la troisième négligeable. La quantité de T_2O extraite est donc égale à $2,2 \pm 0,3 \cdot 10^{-6}$ g. L'évaluation de la quantité totale formée par irradiation de 17 g de LiNO_3 pendant 850 h dans un flux de $9,1 \cdot 10^{12} \text{ n/cm}^2$ puis pendant 1580 h dans un flux de $3,2 \cdot 10^{12} \text{ n/cm}^2/\text{h}$, conduit à une quantité de $2,4 \pm 0,3 \cdot 10^{-6}$ g de T_2O , l'erreur principale provenant de l'évaluation des flux.

La concentration en tritium d'un échantillon de l'eau lourde de Norvège destinée à Zoé, mais n'y ayant jamais été irradiée, a été trouvée de $5,35 \pm 1,65 \cdot 10^{-13}$. L'eau lourde de la Pile de Châtillon en octobre 1953 avait une concentration de $6,9 \pm 1,7 \cdot 10^{-10}$, inférieure à la quantité prévue. La formation du tritium entraîne la dissociation de la molécule d'eau lourde où la réaction nucléaire

a eu lieu, et il est probable qu'une partie a été éliminée du réacteur sous forme d'hydrogène, en même temps que le deutérium qui se dégage de l'eau soumise au rayonnement.

La sensibilité des compteurs de volume voisin de 20 cm³, du type néogamma, est limitée à la concentration de 10⁻¹⁴. Cette limite est obtenue lorsque la pression de vapeur d'eau est égale à la tension saturante à 20°, et lorsque le mouvement propre du compteur a été ramené à 4 impulsions/min

par un blindage de compteurs en anticoincidence. La courbe de la figure 2 donne la concentration C en tritium d'un compteur néogamma, rempli à la tension de vapeur saturante de l'eau à 0°, et dont le taux de comptage à la minute est τ .

L'utilisation de compteurs de plus grand volume ne présente pas d'inconvénients et reculerait la concentration limite mesurable vers 10⁻¹⁶.

Manuscrit reçu le 3 mai 1954.

BIBLIOGRAPHIE.

- | | |
|---|--|
| [1] LANGER L. M. et MOFFAT R. J. D. — <i>Phys. Rev.</i> , 1952, 88 , 689. | [8] HERTZ et KLOPPER. — <i>Z. Physik.</i> , 1925, 31 , 463. |
| [2] GHORMLEY J. A. et SWEETON F. H. — <i>Phys. Rev.</i> , 1949, 75 , 701. | [9] HAMMOND V. J., PRICE W. C., TEEGAN J. P. et WALSH A. D. — <i>Disc. Faraday Soc.</i> , 1950, 9 , 53. |
| [3] JONES W. M. — <i>Phys. Rev.</i> , 1951, 83 , 537. | [10] MORTON R. A. et STUBBS A. L. — <i>J. Chem. Soc.</i> , 1940, 59 , 1347. |
| [4] FALTINGS V. — <i>Naturw.</i> , 1953, 15 , 409. | [11] PRICE W. C. — <i>Proc. Roy. Soc.</i> , 1947, 191 , 22. |
| [5] LARS MELANDER. — <i>Acta Chem. Scand.</i> , 1948, 2 , 440. | [12] COOPER C. D. et SPONER H. — <i>Phys. Rev.</i> , 1950, 79 , 235. |
| [6] KAMEN M. D. — <i>Radioactive Tracers in Biology</i> . Academic Press, 1948. | [13] COOPER et SASTRI. — <i>J. Chem. Phys.</i> , 1952, 20 , 607. |
| [7] MEUNIER R., BONPAS M. et LEGRAND J. P. — <i>J. Physique Rad.</i> , 1953, 14 , 630. | [14] COOPER et SPONER. — <i>J. Chem. Phys.</i> , 1952, 20 , 1248. |
| | [15] PRICE W. C. — <i>J. Chem. Phys.</i> , 1935, 3 , 256. |
| | [16] JOSHI C. P. — <i>Ind. J. Phys.</i> , 1953, 36 , 393. |