CHAMBRES A FISSION MINIATURES POUR LES MESURES DES TAUX DE FISSION DANS LES RÉACTEURS DE RECHERCHE

M. GUERY et A. JARRIGE

Département des Etudes de Piles, C. E. N. Saclay

(Reçu le 19 novembre 1970)

Résumé. — Après quelques généralités, notamment sur la technologie, les dépôts fissiles, et la forme du spectre d'impulsions, on décrit des réalisations récentes : chambre de petit diamètre, chambre plate à faible absorption, et chambre à haute température. On termine par un aperçu des applications.

Abstract. — After some generalities, specially about technology, fissile coatings, and shape of the pulse spectrum, some recent realizations are described : small diameter chambers, low absorption chamber, and high temperature chamber. Finally, a brief survey of applications is given.

1. Introduction. — Les détecteurs d'activation ont été pendant longtemps le principal moyen pour faire des mesures neutroniques ponctuelles au sein des réacteurs.

Le phénomène fondamental dans un réacteur nucléaire étant la fission, et non l'activation de corps normalement absents dans une pile (or, manganèse, dysprosium, etc...), le plus logique semble d'avoir un détecteur basé sur la fission, ce qui permet de connaître le taux de réaction d'un corps fissile déterminé placé en un endroit précis d'un milieu multiplicateur.

Pour cela, on peut : soit irradier une petite quantité de matière fissile et mesurer ensuite sa radioactivité, soit compter directement les fissions au moment où elles se produisent.

La chambre d'ionisation à fission à impulsions, à remplissage gazeux, convient bien à ce dernier type de mesures, à condition d'être suffisamment miniaturisée et fiable.

2. Généralités. — **2.1 ASPECTS TECHNOLOGIQUES.** — Les métaux utilisés sont essentiellement l'acier inoxydable, l'inconel, le titane, et, si on veut une faible absorption neutronique par les parois, le zircaloy (l'aluminium et le béryllium sont également intéressants à ce point de vue, mais se soudent moins bien).

— Pour les isolants en contact avec l'atmosphère de la chambre, on choisit toujours des céramiques : alumine frittée, rubis ou saphir synthétique, et quelquefois stéatite ou stumatite. Le verre est mauvais : il résiste mal aux rayonnements, absorbe trop de neutrons s'il contient du bore, et s'il n'en contient pas il est fragile.

— Les traversées étanches isolantes sont constituées d'un isolateur en alumine, auquel sont brasées les pièces conductrices en titane, ou en « Kovar ».

— Les soudures sont : soit des soudures à l'arc en atmosphère d'argon, sans métal d'apport, soit des brasures. La soudure à l'étain et les collages sont prohibés.

— Toutes les pièces doivent être méticuleusement propres avant leur montage. On les nettoie à la cuve à ultrasons, en présence d'agents tensio-actifs, et on les dégaze sous vide secondaire, à une température supérieure à la température d'utilisation.

Les céramiques peuvent subir des traitements spécifiques supplémentaires : sablage à la poudre d'alumine, séjour dans l'eau bidistillée bouillante, passage au four, dans l'air, à 1 000 °C.

2.2 LES DÉPÔTS DE MATIÈRE FISSILE. — D'habitude, une seule électrode est recouverte de matière fissile, sauf si on recherche une sensibilité très élevée.

On ménage au bord de l'électrode une zone sans dépôt, dont la largeur est environ double de la distance inter-électrodes, pour que, l'ionisation ayant lieu dans un champ électrique non perturbé, la collection des charges soit complète.

On peut classer les dépôts préparés en 3 catégories :

a) des dépôts fissiles aux neutrons thermiques : $^{235}_{92}\text{U}$ (sous forme d'uranium enrichi à 93 % en $^{235}_{92}\text{U}$).

$^{233}_{92}\text{U}$, $^{239}_{94}\text{Pu}$, $^{241}_{94}\text{Pu}$

b) des dépôts fissiles aux neutrons rapides : $^{238}_{92}\text{U}$ (sous forme d'uranium appauvri, contenant 400 p. p. m. de $^{235}_{92}\text{U}$).

$^{237}_{93}\text{Np}$, $^{232}_{90}\text{Th}$

c) des dépôts d'un corps fissile aux neutrons rapides, dopés avec une petite quantité d'un corps fissile aux

neutrons thermiques. Uranium naturel (qui est de l' $^{238}_{92}\text{U}$, dopé avec 0,71 % de $^{235}_{92}\text{U}$).

$^{238}_{92}\text{U}$ + 1 % de $^{233}_{92}\text{U}$

$^{237}_{93}\text{Np}$ + 0,5 % de $^{239}_{94}\text{Pu}$

$^{238}_{92}\text{U}$ + 1 % de $^{239}_{94}\text{Pu}$, etc...

Tous les dépôts sont faits par électrolyse, à l'exception du thorium, qui est déposé par pulvérisation cathodique.

Les masses déposées vont de 10^{-2} à 1 000 μg environ, suivant les utilisations projetées ; le plus souvent, elles sont comprises entre quelques dizaines et quelques centaines de microgrammes, pour les chambres décrites ici.

La mesure des dépôts se fait par comptage des alphas dans une chambre d'ionisation à impulsions (remplie d'un mélange A + 5 % CO_2) jusqu'à des activités d'environ 10^5 α/s en 4π stéradians. On a rapidement une estimation de la masse à 5 ou 10 % près, et, si nécessaire, en soignant les mesures, environ 1 %.

Pour les activités plus élevées (rencontrées souvent avec les dépôts de $^{233}_{92}\text{U}$ et de $^{239}_{94}\text{Pu}$) on peut prendre une chambre d'ionisation à courant, ou compter les alphas sous un angle solide faible et connu, à l'aide d'un « semicteur ». Cette dernière méthode, avec des dépôts plans, donne une précision meilleure que 0,5 %.

La connaissance de la composition isotopique est toujours indispensable, que ce soit pour l'étalonnage des dépôts, ou pour l'utilisation ultérieure de la chambre en pile, et c'est la spectrographie de masse qui résout la plupart des problèmes. Toutefois, certains émetteurs α très actifs ne sont guère mesurables par spectrographie de masse : par exemple, $^{234}_{92}\text{U}$ dans de l'uranium appauvri, ou $^{238}_{94}\text{Pu}$ et $^{241}_{95}\text{Am}$ dans le plutonium, ou $^{232}_{92}\text{U}$, toujours associé en petite quantité à l' $^{233}_{92}\text{U}$, ou encore les descendants du $^{232}_{90}\text{Th}$: on a donc recours à la spectrométrie alpha.

Sauf pour les isotopes naturels de l'uranium et du thorium, la préparation, l'étalonnage et le montage des dépôts se font dans des boîtes à gants.

2.3 LE SPECTRE DES IMPULSIONS. — La forme du spectre des impulsions délivrées par une chambre à fission dépend de nombreux facteurs : épaisseur et homogénéité du dépôt, état de surface de l'électrode recouverte, géométrie de la chambre, tension appliquée, pression de remplissage, etc...

Pour les chambres décrites ici, la tension est constante (300 V) et la pression est telle que la « bosse » des fragments de fission légers est venue se confondre avec celle des fragments lourds.

Le facteur le plus influent qui reste est l'épaisseur du dépôt (mesurée par sa masse superficielle, en milligrammes ou en microgrammes par centimètre carré).

La figure 1 montre 2 spectres, pour des masses superficielles faible et forte.

Un spectre est d'autant mieux exploitable qu'il se

FIG. 1. — Exemples de spectres d'impulsions, pour 2 dépôts d'épaisseurs différentes.

détache plus nettement du bruit de fond de basse énergie. Pour caractériser cette qualité, nous définirons le rapport suivant :

$$R = \frac{\text{Ordonnée au sommet du spectre (d'abscisse } E)}{\text{Ordonnée correspondant à l'abscisse } E/2}$$

Sur la figure 2, on a porté des valeurs expérimentales de R , en fonction de m , masse superficielle du dépôt.

FIG. 2. — Variation de R en fonction de l'épaisseur du dépôt. (en microgrammes par cm^2)

Entre 10 et 1 000 $\mu\text{g} \cdot \text{cm}^{-2}$, R varie à peu près comme $m^{-3/4}$. La dispersion des points, importante, a surtout pour origines les défauts d'homogénéité du dépôt, et d'état de surface du support.

La relation $R(m)$ permet de choisir la masse d'uranium (ou d'un autre corps fissile) que l'on peut mettre dans une chambre à fission, en fonction de la valeur minimum de R qui est indispensable pour une expérience donnée ; les mesures absolues, et celles qui demandent une bonne reproductibilité, réclament un R grand ; les mesures relatives peuvent s'accommoder de R faibles.

2.4 LE GAZ DE REMPLISSAGE. — On s'impose de ne remplir les chambres qu'avec des gaz rares. Il existe des additifs qui permettent une meilleure collection électronique (CO_2 , CH_4 , N_2 ...) mais ces gaz ont l'inconvénient, soit de se décomposer sous rayonnement, soit de se combiner à chaud avec les matériaux de la chambre. Notre choix s'est porté sur l'argon. On l'utilise pur, ou additionné de 5 à 10 % d'hélium (en plaçant la chambre terminée dans une enceinte reliée à un détecteur de fuites à hélium, on s'assure ainsi de son étanchéité). La pression d'argon convenable est telle que, si la distance interélectrodes est e mm, et la pression absolue p bars, le produit ep est compris entre 4 et 6. Si ep est faible, les impulsions sont moins hautes, mais plus brèves.

La chambre est fermée par une soudure à l'arc, exécutée dans un appareil contenant le gaz de remplissage à la pression voulue [1].

Une partie des précautions de propreté énumérées en 2.1 visent à conserver la pureté initiale du gaz.

2.5 L'ÉLECTRONIQUE ASSOCIÉE. — La chaîne électronique peut avoir comme organe d'entrée un préamplificateur de charge, placé aussi près que possible de la chambre, et se terminer soit par un discriminateur et une échelle de comptage, soit par un analyseur d'amplitudes.

Pour les taux de comptage élevés, et si on ne désire pas faire de spectrométrie, on peut se servir de l'élec-

tronique « multibloc » SAIT B1 (Merlin-Gerin), sensible au courant [2]. Elle contient des circuits d'amplification, de mise en forme, de discrimination ; on lui adjoint une échelle de comptage de même rapidité. Cet ensemble n'a pas de préamplificateur. Le câble de liaison avec le détecteur (130 Ω d'impédance) peut atteindre 125 m. Le temps de résolution de cette électronique est de 60 ns.

3. Description des chambres. — **3.1 CHAMBRE DE 4 mm DE DIAMÈTRE** (Fig. 3). — Elle se présente sous la forme d'un cylindre de 4 mm de diamètre, et 23,2 mm de longueur, sortie axiale non comprise. Elle pèse environ 0,7 g.

Le dépôt fissile, de 10 mm de longueur, est réalisé sur une anode de 2,5 mm de diamètre, longue de 12 mm, démontable. La surface disponible sur l'anode pour le dépôt est de 0,78 cm^2 (il est possible de rajouter, dans un tube mince glissé à l'intérieur de la cathode, un second dépôt de 1,07 cm^2).

Le passage étanche, du type alumine-titane, a une sortie axiale flexible, qui évite d'exercer des contraintes dangereuses sur les brasures céramique-métal, et contribue à la fiabilité de la chambre.

La chambre est construite en titane mais le « zircaloy » peut être utilisé. La distance anode-cathode vaut 0,5 mm, et la chambre est remplie sous une pression d'argon de 12 bars. La capacité est environ de 5 pF.

Les impulsions ont une durée inférieure à 100 ns.

Pour l'utiliser, on connecte la chambre à l'extrémité d'une « canne coaxiale » de 5 mm de diamètre, dont la longueur, adaptée aux expériences, peut atteindre plusieurs mètres (Fig. 4).

Une canne coaxiale de 1 m de longueur a une capacité de 40 pF environ.

Cette chambre à fission peut recevoir sans difficultés n'importe quel dépôt fissile. Elle fonctionne à température ambiante dans ses applications actuelles, mais pourrait, moyennant un dégazage approprié, aller jusqu'à 300 ou 400 °C.

FIG. 3. — Chambre de 4 mm, en titane.

FIG. 4. — Canne coaxiale pour chambre de 4 mm.

3.2 CHAMBRE-AIGUILLE, DIAMÈTRE 1,5 mm [3] (Fig. 5). — Dans ce modèle, chambre et canne coaxiale sont solidaires, et remplis du même gaz. L'ensemble a l'aspect d'une aiguille, de 1,5 mm de diamètre, et 800 mm de longueur habituellement (mais on pourrait aller jusqu'à 3 m) prolongée par une partie cylindrique de 14 mm de diamètre, terminée par une traversée étanche et une prise coaxiale. L'aiguille est flexible, et on peut, si nécessaire, l'amener à décrire des arcs dont le rayon est voisin de 50 cm.

La partie sensible est centrée à 10 mm de l'extrémité, et a au maximum 10 mm de longueur. L'anode a un

diamètre de 0,7 mm, et peut recevoir un dépôt de $0,22 \text{ cm}^2$ (on pourrait rajouter un dépôt cathodique de $0,38 \text{ cm}^2$).

L'anode est isolée par 2 pièces en rubis synthétique, dont l'entrée évasée sert à allonger les lignes de fuite ; elle est reliée à la prise par un fil de 0,1 mm, isolé dans l'aiguille par des tubes d'alumine.

L'aiguille est habituellement en incoel, et les autres pièces métalliques en acier inoxydable.

Les autres caractéristiques sont :

- capacité : 55 pF ;
- isolement, mesuré sous 500 V : $> 10^{12} \text{ ohms}$;

FIG. 5. — Chambre-aiguille, diamètre 1,5 mm.

- distance inter-électrodes : 0,3 mm ;
- remplissage : 15 bars d'argon + 0,75 bar d'hélium ;
- durée des impulsions : inférieure à 50 ns.

La chambre est extrêmement peu sensible aux gammas ; elle a pu fonctionner, avec une électronique rapide, dans une ambiance d'environ 10^9 R/h, sans que des impulsions parasites soient visibles.

Elle peut recevoir tous les isotopes, au prix de quelques difficultés de manipulation pour les forts émetteurs alpha (montage de très petites pièces en boîte à gants).

3.3 CHAMBRE A FISSION PLATE, EN ZIRCALOY (Fig. 6). — Cette chambre a l'aspect d'un boîtier cylindrique de diamètre 12 mm, haut de 5 mm, prolongé dans son axe par une partie de diamètre 4 mm (commune à la chambre décrite en 3.1) et qui se raccorde sur une canne coaxiale.

Un dépôt anodique plan de 9 mm de diamètre ($0,64 \text{ cm}^2$) est distant de 0,6 mm de la face avant de la chambre, contre laquelle on peut plaquer un détecteur d'activation, grâce à un montage en zircaloy (non décrit ici) ; le détecteur et le dépôt fissile sont ainsi pratiquement dans le même flux neutronique.

L'anode, plane, isolée par de la stéatite, est à 0,5 mm du dépôt. La chambre est remplie d'argon, à 12 bars ; la durée des impulsions est inférieure à 100 ns.

A l'exception du passage étanche (Ti et Al_2O_3), toutes les pièces métalliques sont en zircaloy ; l'extrémité de la canne coaxiale elle-même est en zircaloy.

Le dépôt plan, perpendiculaire à l'axe, est plus favorable à des mesures précises que les dépôts cylindriques, dans certains canaux de piles où les gradients de flux sont élevés.

On monte aisément n'importe quel isotope dans cette chambre.

3.4 CHAMBRE A FISSION PLATE, A HAUTE TEMPÉRATURE (Fig. 7). — C'est en vue de mesures absolues dans le réacteur à neutrons rapides RAPSODIE à Cadarache, que cette chambre a été étudiée.

Son gaz est confiné dans un petit volume étanche. Ce détail est important, pour une chambre à haute température : lorsque le volume étanche est commun à la chambre et à la canne coaxiale, le gaz subit des migrations qui dépendent de la répartition des températures, et la sensibilité est fonction de cette répartition, comme l'a signalé Barnes [4].

La chambre proprement dite a 10 mm de diamètre, et 36 mm de longueur ; elle est construite en titane ; la traversée étanche, du type alumine-titane, est prévue pour résister aux pressions élevées rencontrées à chaud.

Une canne coaxiale de 12 mm de diamètre et 7 600 mm de longueur, en acier inoxydable, enferme la chambre à une de ses extrémités ; le conducteur central est isolé par un empilement de perles et de tubes en alumine ; un ressort, dans la partie froide, rattrape les dilatations différentielles ; le tout est rempli d'argon, à 2 bars.

Toutes les pièces de la chambre sont dégazées, sous vide secondaire, à une température de 550 à 600 °C (la

FIG. 6. — Chambre plate en zircaloy.

FIG. 7. — Chambre à fission plate, à haute température.

température d'utilisation est de 450 °C) et montées en évitant de les remettre en contact avec l'air ambiant (pour l'uranium, on dispose d'une installation qui permet le montage en atmosphère d'azote).

Le dépôt, plan, de 5 mm de diamètre, est fait sur une cathode, très bien polie, pour diminuer les pertes de fragments de fission. L'espace inter-électrodes vaut 0,3 mm, et la pression d'argon 15 bars à 20 °C (soit 37 bars à 450 °C).

La durée des impulsions est de l'ordre de 50 ns. Cette chambre a été fabriquée avec des dépôts d'uranium enrichi, et de plutonium.

4. Aperçu sur les applications. — Ci-après, nous énumérons quelques applications des chambres à fissions miniatures ; la liste n'est pas exhaustive.

4.1 MONITEUR (OU TÉMOIN). — La chambre est fixe, et on mesure les variations relatives du flux neutronique pendant une expérience. Les qualités recherchées sont la sensibilité, et la stabilité. Si le flux est élevé, un dépôt fissile mince suffit ; le spectre présente une large vallée, et les dérives du seuil de discrimination sont sans importance. Si le flux est faible, il faut un dépôt épais, le spectre est dégradé, et les résultats sont sensibles aux dérives. Il faut rechercher un compromis entre la sensibilité et la qualité du spectre (cf. 2.3), et choisir une électronique stable. On peut demander aussi au moniteur d'avoir une grande dynamique, c'est-à-dire d'être linéaire jusqu'à des taux de comptage élevés ; les chambres à faible distance inter-électrodes (cf. 3.2 et 3.4) peuvent compter 10^6 impulsions/

seconde avec une correction de linéarité inférieure à 5 %.

4.2 CARTE DE FLUX. — La chambre est déplacée, pour tracer les courbes de répartition du flux, soit à l'échelle du réacteur, soit sur de petites distances pour étudier des gradients de flux élevés au voisinage d'éléments perturbateurs.

Les chambres de 1,5 mm, qui peuvent se glisser entre les plaques des éléments combustibles des piles-piscines, distantes d'environ 2 mm, permettent d'établir une carte de flux en 2 h (pile Isis, à Saclay) au lieu de 2 jours avec des détecteurs d'activation.

4.3 INDICES DE SPECTRE. — Le rapport des taux de comptage de 2 chambres garnies de dépôts de nature différente, placées dans un même flux, dépend du spectre neutronique au point de mesure. Moyennant un étalonnage des chambres, on peut en déduire un indice de spectre (rapport de sections efficaces effectives de fission) [5].

Les chambres « dopées » (cf. 2.2) sont très utilisées pour ces mesures.

4.4 MESURES DE FLUX ABSOLUES. — Si on connaît le nombre de noyaux N et la section efficace de fission σ d'un corps déposé en couche mince dans une chambre à absorption neutronique faible, si r est le rendement de détection des fissions, très voisin de 1, et C le taux de comptage par seconde, le flux est simplement :

$$\Phi = \frac{C}{rN\sigma}.$$

Les chambres à dépôt plan (3.2 et 3.4) conviennent à ces mesures, après un étalonnage α absolu des dépôts.

4.5 MESURES DE SECTIONS EFFICACES. — C'est un problème voisin : la masse et le flux sont connus, on en déduit σ . La masse est déterminée, soit au préalable par mesures sur les alphas, soit *a posteriori*, en détruisant la chambre et en mesurant le dépôt par un procédé chimique.

4.6 MESURES DE PUISSANCE. — On met dans une chambre une petite masse m du corps fissile présent en quantité M dans la pile ; la chambre est placée à un endroit où on connaît $\frac{\Phi_m}{\Phi}$, rapport du flux moyen dans le combustible au flux au point de mesure.

La puissance, en watts, est :

$$P = \frac{C}{3,1 \times 10^{10} r} \times \frac{M}{m} \times \frac{\Phi_m}{\Phi}.$$

La méthode est applicable aux réacteurs homogènes thermiques [6], et elle peut être étendue aux réacteurs rapides, moyennant des corrections pour tenir compte

de la variation des sections efficaces en différents points du cœur et des creusements de flux dans le combustible.

L'avantage principal de la méthode est qu'elle ne fait pas intervenir la valeur absolue des sections efficaces.

5. Conclusion. — Le développement relativement récent de l'utilisation des chambres à fission en neutronique expérimentale, tant pour les expériences critiques que pour les réacteurs de puissance est dû en majeure partie à leur miniaturisation.

Leur petite dimension permet d'effectuer des mesures à l'intérieur du milieu à étudier sans lui apporter de modifications et en ne créant que des perturbations neutroniques négligeables.

La faible quantité de matière fissile nécessaire à la réalisation de ces chambres permet d'en utiliser une très grande variété, même les plus rares ; la possibilité de les utiliser jusqu'à 450 °C, la grande stabilité de leur performance qui permet des mesures précises et enfin leur souplesse de fonctionnement constituent des avantages incontestables de ce type de chambres à fission par rapport à toutes les autres techniques de mesure de flux neutroniques.

Bibliographie

- [1] GUERY (M.), Chambre d'ionisation miniature à neutrons à fission à impulsions. Brevet français n° 1 254 426 du 7/1/1960.
- [2] Bulletin d'instrumentation nucléaire n° 39. Supplément au B. I. S. T. (C. E. A.) n° 148 (mai 1970).
- [3] GAILLET (G.), GUERY (M.), Chambre d'ionisation à fission. Brevet français n° 1 595 082 du 15/6/1970.
- [4] BARNES (D.), HOLLICK (R. C.), WADE (F.), A fission chamber for operation at 850 °C. AAE, Winfrith AAEW-R 26, février 1960.
- [5] VIDAL (R.), ROBIN (M.), CARNEIRO DA SILVA (C.), Mesure de la section efficace de l'U 233 pour les neutrons thermiques. CN 26/97, 2nd International conference on nuclear data for reactor. Helsinki (15/19-6-70).
- [6] CLOUET D'ORVAL (C.), DEILGAT (E.), GUERY (M.), TACHON (J.), Etalonnage en puissance de Proserpine. Rapport C. E. A., n° 1593, 1960.