

CEA-R-3348 - SCHOTT Roger, FROMENT Gérard,  
PINSON Jean, GENTY Claude

### DOSAGE DU TRITIUM PAR COMPTAGE

Sommaire. - Le comptage du tritium par chambre d'ionisation est une méthode simple, rapide et précise pour déterminer la teneur en tritium d'un mélange gazeux quelconque.

Nous avons préféré utiliser la méthode de détermination relative par rapport à un étalon car, dans le cas d'une détermination absolue, les constantes sont connues avec une trop grande incertitude.

L'efficacité de la chambre a été étudiée en fonction de la variation de la pression d'argon à l'intérieur de la chambre et du volume total de cette dernière.

L'étalonnage s'est révélé linéaire dans le domaine de mesures qui nous intéressaient (1 à 80 millicuries).

./.

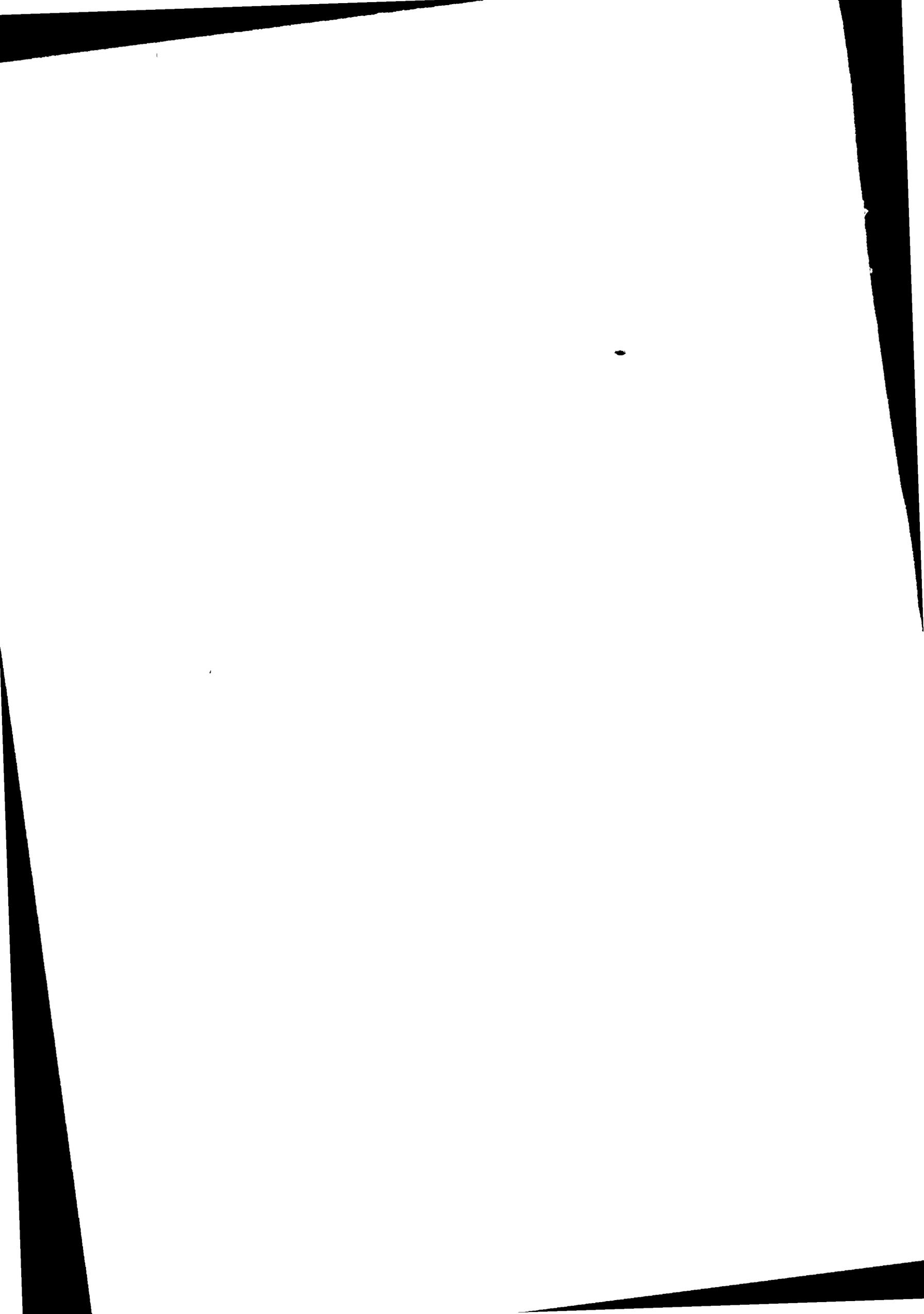
CEA-R-3348 - SCHOTT Roger, FROMENT Gérard,  
PINSON Jean, GENTY Claude

### DETERMINATION OF TRITIUM BY COUNTING

Summary. - Ionization chamber assay of tritium in any gaseous mixture is a simple, fast and accurate method.

We used the method of relative determination by comparison to a standard rather than the method of absolute assay in which case the constants are known with too little accuracy.

The efficiency of the chamber was studied in connection to the pressure inside the chamber and its total volume. The calibration is linear in the range we are taking into account (1 to 80 millicuries). The reproducibility of the method is good : 13 runs gave a coefficient of variation of 1.3%. The relative accuracy was found equal to 1.3%.



La reproductibilité de la méthode est très bonne, le coefficient de variation pour une série de 13 essais étant de 1,6 pour cent, quant à la précision relative, elle a été évaluée à  $\pm 1,3$  pour cent.

Pour terminer, nous donnons une description détaillée de l'appareillage utilisé et du mode opératoire suivi.

1968

34 p.

Commissariat à l'Energie Atomique - France

To end the paper, we describe in detail the apparatus and the ways of proceedings.

1968

34 p.

Commissariat à l'Energie Atomique - France



**DOSAGE DU TRITIUM PAR COMPTAGE**

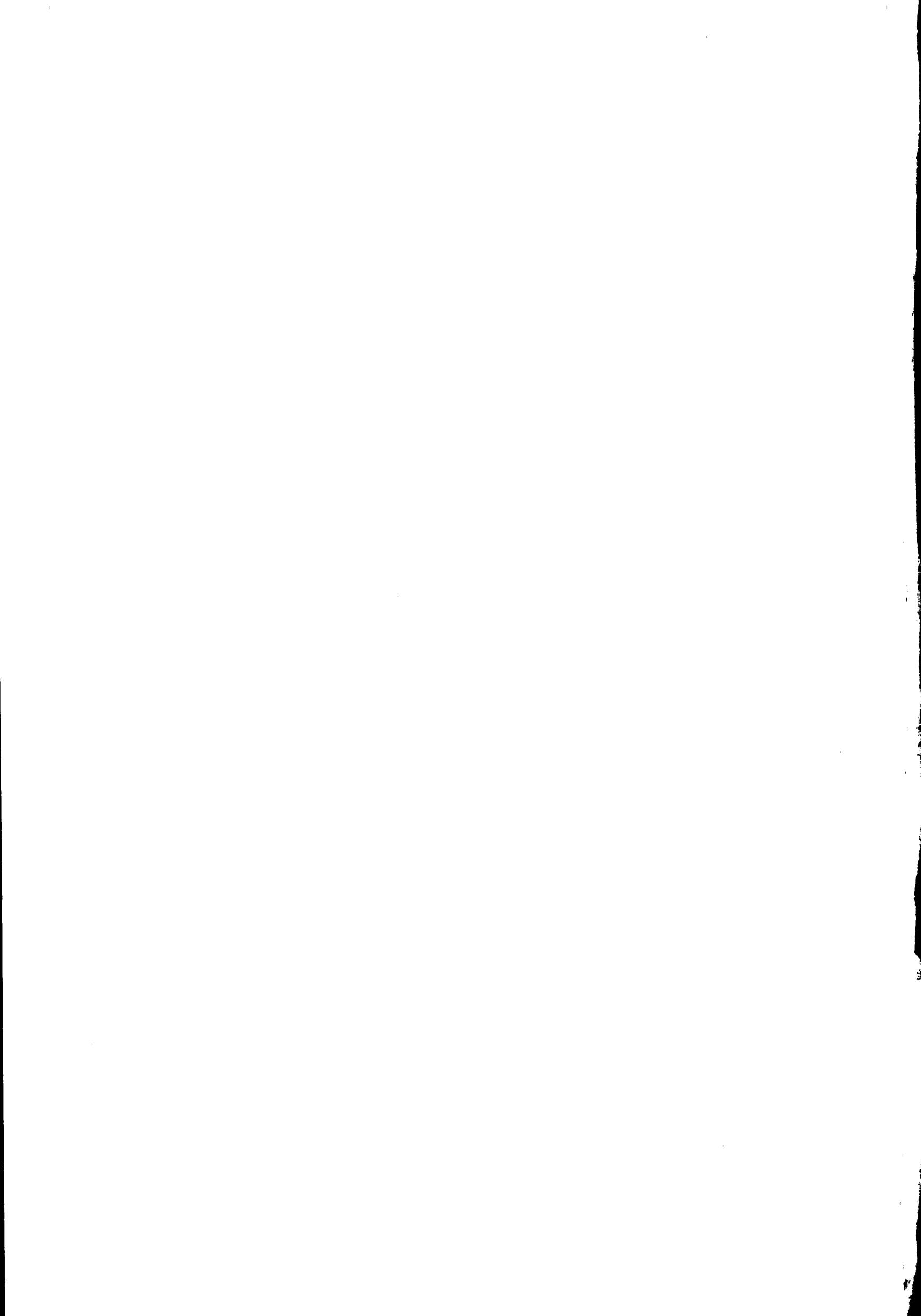
*par*

*Roger SCHOTT, Gérard FROMENT,*

*Jean PINSON, Claude GENTY*

**Centre d'Etudes de Bruyères-le-Chatel**

**Rapport CEA - R - 3348**



A partir de 1968, les rapports CEA sont classés selon les catégories qui figurent dans le plan de classification ci-dessous et peuvent être obtenus soit en collections complètes, soit en collections partielles d'après ces catégories.

Ceux de nos correspondants qui reçoivent systématiquement nos rapports à titre d'échange, et qui sont intéressés par cette diffusion sélective, sont priés de se reporter à la lettre circulaire CENS/DOC/67/4690 du 20 décembre 1967 que nous leur avons adressée, et qui précise les conditions de diffusion.

A cette occasion nous rappelons que les rapports CEA sont également vendus au numéro par la Direction de la Documentation Française, 31, quai Voltaire, Paris 7e.

#### PLAN DE CLASSIFICATION

- |   |   |
|---|---|
| 1. APPLICATIONS INDUSTRIELLES DES ISOTOPES ET DES RAYONNEMENTS  | 8. PHYSIQUE   |
|   | 8.1 Accélérateurs   |
|   | 8.2 Electricité, électronique, détection des rayonnements             |
|   | 8.3 Physique des plasmas  |
|   | 8.4 Physique des états condensés de la matière                        |
|   | 8.5 Physique corpusculaire à haute énergie                            |
|   | 8.6 Physique nucléaire  |
|   | 8.7 Electronique quantique, lasers                                    |
| 2. BIOLOGIE ET MEDECINE   | 9. PHYSIQUE THEORIQUE ET MATHEMATIQUES                                |
| 2.1 Biologie générale   |   |
| 2.2 Indicateurs nucléaires en biologie                          |   |
| 2.3 Médecine du travail   |   |
| 2.4 Radiobiologie et Radioagronomie                             |   |
| 2.5 Utilisation des techniques nucléaires en médecine           |   |
| 3. CHIMIE   | 10. PROTECTION ET CONTROLE DES RAYONNEMENTS. TRAITEMENT DES EFFLUENTS |
| 3.1 Chimie générale   |   |
| 3.2 Chimie analytique   |   |
| 3.3 Procédés de séparation                                      |   |
| 3.4 Radiochimie   |   |
| 4. ETUDES DU DOMAINE DE L'ESPACE                                | 10.1 Protection sanitaire   |
|   | 10.2 Contrôle des rayonnements  |
|   | 10.3 Traitement des effluents   |
| 5. GEOPHYSIQUE, GEOLOGIE, MINERALOGIE ET METEOROLOGIE           | 11. SEPARATION DES ISOTOPES   |
| 6. METAUX, CERAMIQUES ET AUTRES MATERIAUX                       | 12. TECHNIQUES  |
| 6.1 Fabrication, propriétés et structure des matériaux          | 12.1 Mécanique des fluides - Techniques du vide                       |
| 6.2 Effets des rayonnements sur les matériaux                   | 12.2 Techniques des températures extrêmes                             |
| 6.3 Corrosion   | 12.3 Mécanique et outillage   |
| 7. NEUTRONIQUE, PHYSIQUE ET TECHNOLOGIE DES REACTEURS           | 13. UTILISATION ET DEVELOPPEMENT DE L'ENERGIE ATOMIQUE                |
| 7.1 Neutronique et physique des réacteurs                       | 13.1 Centres d'études nucléaires, laboratoires et usines              |
| 7.2 Refroidissement, protection, contrôle et sécurité           | 13.2 Etudes économiques, programme                                    |
| 7.3 Matériaux de structure et éléments classiques des réacteurs | 13.3 Divers (documentation, administration, législation, etc...)      |

- Rapport CEA-R-3348 -

Centre d'Etudes de Bruyères-le-Chatel  
Service de Chimie  
Section de Chimie Analytique

#### DOSAGE DU TRITIUM PAR COMPTAGE

par

Roger SCHOTT, Gérard FROMENT, Jean PINSON,  
Claude GENTY

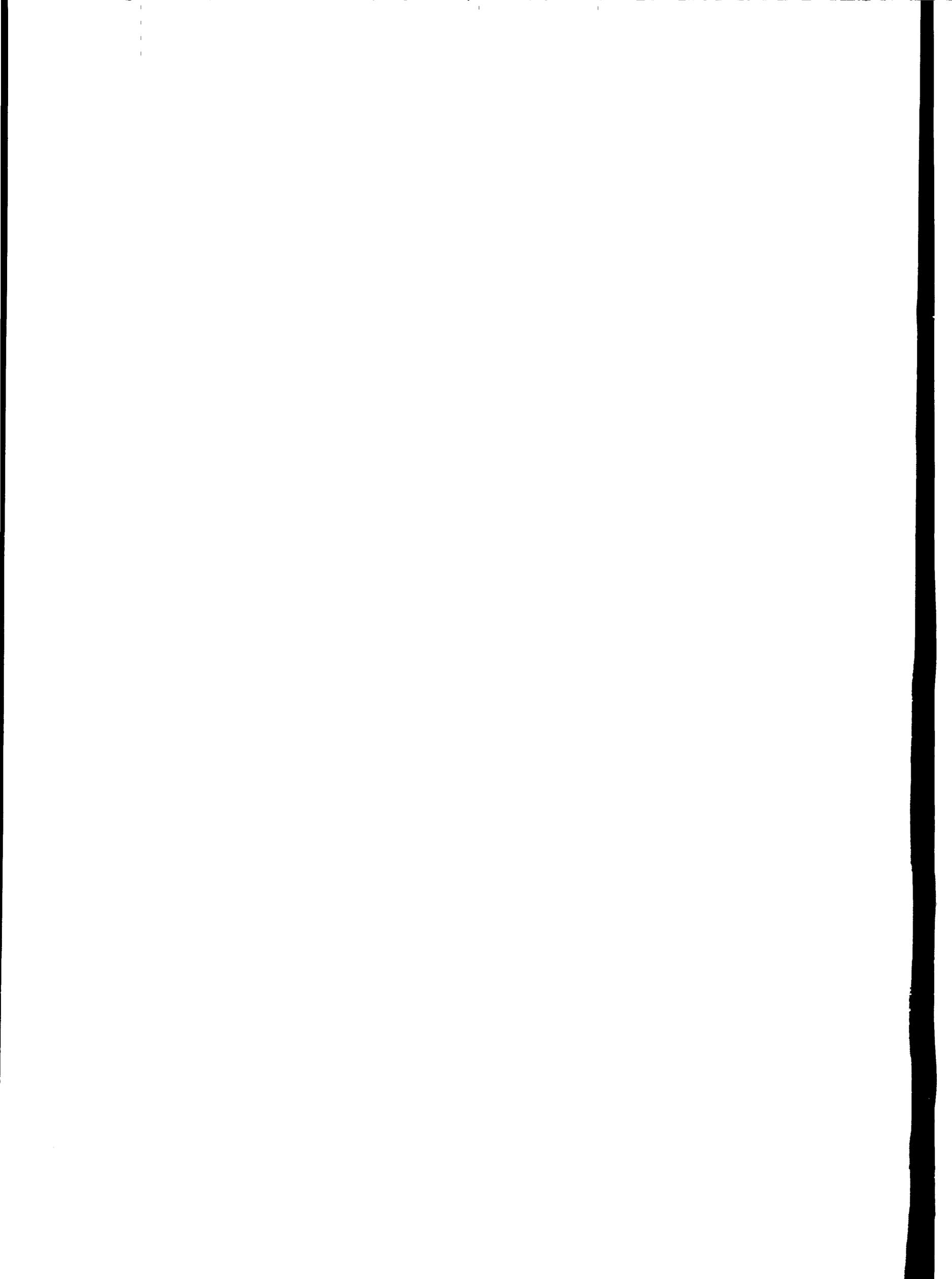
avec la collaboration de :

Claude BESNARD, Jean-Claude GAUDICHAU,  
Jean-Pierre RIGAL

- Février 1968 -

*Les rapports du COMMISSARIAT A L'ENERGIE ATOMIQUE sont, à partir du n° 2200, en vente à la Documentation Française, Secrétariat Général du Gouvernement, Direction de la Documentation, 31, quai Voltaire, PARIS VIIème.*

*The C.E.A. reports starting with n° 2200 are available at the Documentation Française, Secrétariat Général du Gouvernement, Direction de la Documentation, 31, quai Voltaire, PARIS VIIème.*



## TABLE DES MATIERES

### I - INTRODUCTION ET RAPPELS BIBLIOGRAPHIQUES

### II - LA CHAMBRE D'IONISATION

- 1° - Principe
- 2° - Description et caractéristiques
  - a) Description
  - b) Qualités essentielles
  - c) Domaine d'application

### III - MESURE DU COURANT : L'ELECTROMETRE A LAME VIBRANTE

- 1° - Généralités
- 2° - Principe

### IV - CHOIX DE LA METHODE

- 1° - Méthode de calcul
  - a) Détermination absolue
  - b) Détermination relative
- 2° - Choix de la méthode

### V - ETUDE EXPERIMENTALE

- 1° - Principe de la manipulation
- 2° - Variation de l'efficacité en fonction de la pression d'argon régnant dans la chambre
- 3° - Variation de l'efficacité en fonction du volume total de la chambre
  - a) Description
  - b) Mesures
- 4° - Etalonnage
- 5° - Décontamination de la chambre d'ionisation

**6° - Reproductibilité et précision de la méthode**

**a) Reproductibilité**

**b) Précision de la mesure**

**VI - REALISATIONS PRATIQUES**

**1° - Appareillage**

**2° - Mode opératoire**

**a) Prélèvement des échantillons**

**b) Comptage proprement dit**

**VII - CONCLUSION**

**REFERENCES**

## DOSAGE DU TRITIUM PAR COMPTAGE

### I - INTRODUCTION ET RAPPELS BIBLIOGRAPHIQUES

Dans le cadre des activités tritium du service CHIMIE, la Section de Chimie Analytique a été amené à mettre au point les techniques susceptibles de permettre une analyse quantitative des mélanges hydrogène - deutérium - tritium.

Nous nous sommes en premier lieu orientés vers la méthode du comptage qui ne permet pas de distinguer les différentes espèces radioactives présentes mais qui peut donner rapidement une valeur assez précise de la teneur globale en tritium. La difficulté d'application de ces méthodes au cas du tritium vient de la faible énergie des rayons  $\beta$  émis et l'on est obligé de l'introduire dans le compteur soit à l'état gazeux, soit à l'état de composé gazeux.

De nombreux travaux ont été effectués en vue d'élaborer des méthodes de détection et de mesure du tritium, mais la majorité d'entre eux ne concerne que des activités très faibles (de l'ordre du microcurie). C'est ainsi que les compteurs à scintillation sont plus spécialement utilisés dans le cas des solutions liquides et des suspensions, de l'eau tritiée, des matières organiques et biologiques.

Les compteurs Geiger-Muller et les compteurs proportionnels s'adaptent plus particulièrement au dosage du tritium gazeux provenant de la réduction de l'eau tritiée, de la combustion des matières biologiques et organiques, de l'extraction par chauffage sous vide de certains métaux irradiés. Cette méthode permet également de doser le tritium comme impureté dans les gaz (hélium, ...) ou dans l'atmosphère.

Ces deux catégories de compteurs ne sont pas utilisables avec des quantités importantes de tritium. Lorsqu'on est en présence d'échantillons gazeux à forte teneur en tritium, la chambre d'ionisation constitue un moyen adéquat pour l'analyse de ce dernier. Or le problème qui nous a été posé n'était pas un problème de traces, mais celui de l'analyse de mélanges gazeux où la concentration du tritium pouvait varier de 1 à 100 %. Parmi les nombreux auteurs qui ont travaillé sur les chambres d'ionisation, seul un nombre relativement restreint a abordé ce problème des concentrations en tritium supérieures à 1 %.

En 1950, WILZBACH et VAN DIKEN [1] ont utilisé un électromètre à lame vibrante pour la détection du tritium dans une chambre d'ionisation.

MATTEW, en 1951, a utilisé la chambre d'ionisation pour le dosage de tritium dans des domaines de concentrations comprises entre quelques ppb et 0,1 %. [2]

WILZBACH, VAN DIKEN et KAPLAN ont repris la détermination du tritium par mesure de courant ionique au moyen de l'électromètre à lame vibrante, pour des quantités de tritium allant de  $0,7 \cdot 10^{-6}$  à 25 millicuries). [3 et 4]

FINKELSTEIN et LESIMPLE [5] ont utilisé une chambre d'ionisation préalablement étalonnée pour doser le tritium dans l'eau tritiée, après transformation de cette dernière en acétylène.

En 1956, TOLBERT [6] a effectué une étude pratique de la chambre d'ionisation en fournissant de nombreux détails techniques dont nous nous sommes partiellement inspirés dans nos travaux.

BRIERE, [7] en 1958, a publié une intéressante étude sur le comportement et les performances des électromètres à lame vibrante.

## II - LA CHAMBRE D'IONISATION

### 1° - Principe de la chambre d'ionisation

Un gaz soumis à l'action d'un rayonnement est susceptible de s'ioniser. Les électrons produits à la suite de cette ionisation sont recueillis par une électrode portée à une tension positive par rapport à la paroi de la chambre. Ce mouvement électronique vers l'électrode fait apparaître un courant électrique continu qui est fonction de l'intensité du champ radioactif et par conséquent de la quantité de gaz radioactif présente.

L'ionisation d'un gaz passant dans une source radioactive est fonction de l'énergie du rayonnement émis et du potentiel d'ionisation du gaz. Par exemple, le carbone 14 émet des radiations  $\beta^-$  ayant une énergie moyenne de 45 keV. Ces particules  $\beta^-$  peuvent ioniser l'air en produisant chacune 1500 électrons. En revanche les radiations  $\beta$  du tritium ne forment que 150 électrons chacune, avec de l'air, étant donné que l'énergie moyenne des particules émises est environ 10 fois moindre que celle du carbone 14. Mais le nombre d'électrons produits dans l'argon par une radiation  $\beta$  du tritium est de 215. D'où l'intérêt, avec une source radioactive donnée, de prendre un gaz de potentiel d'ionisation le plus bas possible.

### 2° - Description et caractéristiques d'une chambre d'ionisation

#### a) description

La chambre d'ionisation proprement dite est constituée par une enceinte métallique sphérique ou cylindrique et par une électrode axiale faisant saillie à l'intérieur de cette enceinte (cf fig. 1). La paroi de la chambre joue le rôle de cathode et est portée à un potentiel de l'ordre de -100 à -300 volts, l'électrode centrale ou anode est reliée à la masse par l'intermédiaire du préamplificateur, elle est maintenue à sa base par un disque en quartz qui l'isole du reste de la chambre.

Comme il n'est pas recommandé de soumettre cet isolant de quartz à une forte tension, on l'entoure d'une coquille métallique reliée à la masse et isolée de la paroi de la chambre.

D'une part, il est nécessaire d'avoir une tension assez élevée entre la paroi de la chambre et l'électrode axiale afin d'obtenir un recueil rapide des électrons et d'éviter ainsi la recombinaison avec les ions positifs formés en même temps qu'eux. D'autre part, cette tension ne doit pas être non plus trop forte sinon les électrons subiraient une accélération trop grande et pourraient, de ce fait, produire des électrons secondaires par choc avec des atomes non ionisés, ce qui entraînerait une indication trop élevée à l'électromètre. En général, l'intervalle dans lequel peut varier cette différence de potentiel couvre plusieurs centaines de volts (fig. 2).

#### b) Qualités essentielles d'une chambre d'ionisation

Une bonne chambre d'ionisation doit remplir trois conditions :

- l'isolant en quartz de l'électrode centrale doit posséder une résistance élevée ( $> 10^{18} \Omega$ ).
- le bruit de fond doit être faible. Il dépend des rayons cosmiques (dont la contribution est considérée comme constante) et de la radioactivité résiduelle sur la paroi de la chambre, provenant des comptages précédents. Pour éviter cette contamination on prendra des matériaux exempts de plomb, calcium ou magnésium, à cause du bruit de fond important que ces derniers peuvent produire. Les métaux de transition comme le fer et le cuivre et l'acier inox conviennent le mieux à cet effet.
- la chambre d'ionisation doit avoir une bonne efficacité. Cette dernière est fonction du gaz de remplissage et de la géométrie de la chambre. Celle-ci devra être assez grande pour que la majeure partie de l'énergie provenant des radiations soit absorbée par le gaz de remplissage et non par les parois.

#### c - Domaine d'application des chambres d'ionisation

Les chambres d'ionisation conviennent parfaitement pour les gaz radioactifs émetteurs de  $\beta^-$  mous et difficilement décelables par les autres mesures de radiations. Pour l'analyse de produits organiques solides ou liquides ( $^{14}\text{C}$ ) et de l'eau tritiée, une transformation préalable en  $^{14}\text{CO}_2$  dans le premier cas, en  $\text{T}_2$  gazeux dans le second cas, est nécessaire.

L'application de la méthode des chambres d'ionisation dépend donc :

- de la conversion de la substance radioactive initiale en gaz qui pourra être introduit dans la chambre
- de la non contamination de la chambre : le corps radioactif ne doit pas être adsorbé sur les parois, ni réagir chimiquement.

### III - MESURE DU COURANT : L'ELECTROMETRE A LAME VIBRANTE

#### 1° - Généralités

Initialement on reliait l'électrode axiale à un électroscope à feuille d'or ou à un amplificateur à courant continu. Néanmoins il est préférable de convertir le signal continu en alternatif avant de l'amplifier, afin d'augmenter la sensibilité de la mesure. Le gain de sensibilité qui résulte de la conversion du signal et de son amplification tient à deux facteurs :

- a) les amplificateurs à courant alternatif sont par nature plus stables que les amplificateurs à courant continu.
- b) le bruit, c'est-à-dire, les fluctuations électriques du fond dues au hasard, a tendance à y être réduit au minimum.

## 2° - Principe

L'électromètre à lame vibrante ou condensateur dynamique réalise la conversion du signal et son amplification. Un condensateur  $C_V$  est constitué par deux plateaux métalliques, l'un fixe, l'autre vibrant à 450 hertz. Le signal continu d'entrée est appliqué au plateau fixe. Comme l'autre plateau oscille, l'intensité du champ électrique entre les armatures du condensateur fluctue et le signal continu est converti en signal alternatif de fréquence égale à celle de la vibration.

Ce signal, ainsi modulé, passe à travers un condensateur et une résistance jusqu'au premier étage du tube électronique du circuit d'amplification de haut gain, lequel est accordé à la fréquence de modulation. Après cette amplification le signal est rectifié et introduit dans l'enregistreur. Afin de réduire au maximum certains facteurs comme l'instabilité de l'amplificateur et le bruit de fond du condensateur dynamique, on envoie une contre réaction à l'armature alimentée en continu. Cette contre réaction peut-être suffisante pour "annuler" le signal continu d'entrée, comme la contre réaction ne consomme qu'une faible fraction de la puissance de sortie, l'amplitude du signal de sortie n'en sera pas affectée de façon notable et peut servir, après rectification, à faire marcher un enregistreur classique (fig. 3).

Un tel système est capable de déceler des courants de l'ordre de  $10^{-17}$  ampère, soit une activité de  $1,7 \cdot 10^{-3}$   $\mu\text{Ci}$

Il existe deux méthodes fondamentales pour utiliser l'électromètre à lame vibrante. La première consiste à relier directement l'électrode centrale à la borne d'entrée de l'électromètre, de sorte que l'électrode n'est reliée au circuit que par l'intermédiaire des deux capacités  $C_V$  et  $C_C$ . De cette manière, au fur et à mesure que les électrons se déchargent sur l'anode son potentiel augmente proportionnellement au nombre d'électrons recueillis. Ceci se manifeste sur l'enregistreur par une dérive constante dans le temps (fig. 4). La pente de cette dérive est directement proportionnelle à l'activité régnant dans la chambre d'ionisation. Cette méthode sera utilisée de préférence dans le cas de la mesure de courants de très faible intensité. Connaissant la capacité  $C$  de l'électromètre et la valeur de la tension  $V$  donnée par l'électromètre, on en déduit le nombre de charge  $Q = CV$ , et partant, la teneur en tritium.

Dans la seconde méthode on branche une résistance étalon élevée entre l'électrode centrale et le circuit de contre réaction. Le courant produit par le mouvement des électrons traverse cette résistance, de sorte qu'une tension d'équilibre est atteinte sur l'électrode centrale. Cette tension  $V$  sera fonction du courant produit et de la valeur de la résistance utilisée. Dans ce cas l'enregistreur tracera un diagramme débutant par une ligne courbe pour arriver finalement à un palier d'équilibre. La hauteur du palier est directement proportionnelle à la radioactivité à l'intérieur de la chambre (fig. 5).

Cette dernière méthode sera utilisée pour la mesure de courants plus importants et dans le cas d'une circulation de gaz. Nos expériences ayant toujours mis en jeu une quantité appréciable de tritium - 50  $\mu$ Ci au minimum - nous n'avons pas été amenés à utiliser la première méthode. Signalons que les deux méthodes ne peuvent être étudiées avec la même chambre : en effet, une seule introduction tant soit peu importante (50 mCi par exemple) contamine assez la chambre pour que le bruit de fond qui en résulte empêche de refaire des mesures sur des quantités de l'ordre du  $\mu$ Ci ou moins.

#### IV - CHOIX DE LA METHODE

##### 1° - Méthode de calcul

On déduit de la loi classique de décroissance radioactive la relation entre la constante radioactive  $\lambda$  et la période  $\theta$  :

$$\lambda = \frac{0,693}{\theta}$$

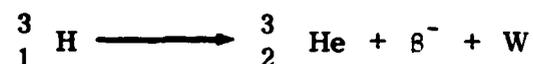
Pour un atome gramme de tritium, il se désintègre par seconde  $\lambda N$  atomes,  $N$  étant le nombre d'Avogadro, ce qui représente une activité  $a$  (exprimée en curies si  $\theta$  l'est en secondes).

$$a = \frac{\lambda N}{3,7 \cdot 10^{10}} \text{ Ci}$$

L'activité de 1  $\text{cm}^3$  de tritium ramené aux conditions normales de température et de pression sera :

$$a' = \frac{\lambda N}{3,7 \cdot 10^{10} \cdot 11200}$$

Par ailleurs, l'équation de la réaction de désintégration du tritium s'écrit :



$W$  étant l'énergie moyenne du rayonnement émis.

Si  $E$  est l'énergie nécessaire pour produire une paire d'ions dans l'argon, une désintégration conduira à la formation de  $p = \frac{W}{E}$  paires d'ions.

Pour 1  $\text{cm}^3$  de tritium, nous aurons à chaque instant sur l'électrode centrale un courant :

$$i = \frac{dq}{dt} = \frac{3,7 \cdot 10^{10} \times 1,59 \cdot 10^{-19}}{11200} \cdot a \cdot p \text{ ampère}$$

$$\text{soit } i = 5,926 \cdot \frac{W}{E \cdot \theta} \text{ ampère}$$

Si  $v_o$  est le volume en centimètre cube de tritium introduit dans la chambre et R la résistance affichée, la tension théorique  $U_o$  sera :

$$U_o = R \cdot v_o \cdot i$$

$$\text{soit} \quad U_o = 5,926 \cdot \frac{R \cdot v_o \cdot W}{\theta \cdot E} \quad \text{volts} \quad (1)$$

Deux principes de manipulation distincts peuvent alors être envisagés :

a) Détermination absolue

On effectue une détermination absolue, sans étalonnage préalable, de la quantité de tritium présente dans la chambre, en utilisant les valeurs des constantes R,  $\theta$ , W et E. Le volume  $v_o$  sera pour l'instant supposé connu avec exactitude. La résistance R est donnée par le constructeur (de  $10^7$  à  $10^{11}$  ohms), nous verrons ultérieurement qu'elle peut s'écarter sensiblement de la valeur indiquée. Une mesure soignée permettrait d'obtenir une incertitude maximale de  $\frac{\Delta R}{R} = 10^{-2}$ .

Les valeurs adoptées pour  $\theta$  (8, 9, 10, 11, 12, 13) W (9, 10, 14, 15 et 16) et E (17, 18) sont les suivantes :

$$\theta = 12,37 \pm 0,10 \text{ an}$$

$$W = 5640 \pm 60 \text{ eV}$$

$$E = 27,7 \pm 0,8 \text{ eV}$$

Il faut noter toutefois que les valeurs de  $\theta$  et de W ne sont pas indépendantes, les auteurs précisant lors de la détermination de W, la valeur  $\theta$  retenue. Il est bien évident que dans le cas d'une détermination calorimétrique de la valeur W, une erreur sur  $\theta$  entraîne pour W une erreur de même signe. La précision du rapport  $\frac{W}{\theta}$  est souvent bien meilleure que les précisions individuelles de W et  $\theta$  :

$$\Delta \left( \frac{W}{\theta} \right) < \Delta W + \Delta \theta$$

L'incertitude relative sur  $U_o$  est égale à :

$$\frac{\Delta U_o}{U_o} = \frac{\Delta R}{R} + \frac{\Delta E}{E} + \frac{\Delta \frac{W}{\theta}}{\frac{W}{\theta}}$$

Nous avons adopté pour le rapport  $\frac{W}{\theta}$  la valeur (9, 10, 14, 15, 16) :

$$\frac{W}{\theta} = 457 \pm 2 \text{ eV} \cdot \text{an}^{-1}$$

ce qui nous donne pour  $\frac{\Delta U_o}{U_o}$  une incertitude :

$$\frac{\Delta U_o}{U_o} = 4,5 \cdot 10^{-2}$$

A cette incertitude il y aurait lieu d'ajouter l'erreur sur l'estimation du volume réel de la chambre, c'est-à-dire du volume formé par la chambre et par les canalisations et l'éprouvette contenant l'échantillon gazeux à analyser. La détermination de ce volume atteindrait facilement 1 à 2 %. Nous voyons donc que la méthode absolue ne constitue pas une méthode très précise, car déjà au départ la mesure est entachée d'une erreur de 5 à 6 %, erreur à laquelle il faudra ajouter l'erreur de la mesure proprement dite (lecture de pression, volume des éprouvettes, lecture de la tension).

#### b) Détermination relative

On effectue un étalonnage au moyen de tritium étalon de pureté connue, la valeur des constantes  $W$ ,  $E$ ,  $\theta$  et  $R$  ainsi que les incertitudes relatives aux volumes morts de l'appareillage et à l'efficacité de la chambre n'interviennent plus dans le résultat final.

##### 2° - Choix de la méthode

Le titre du tritium étalon étant connu avec une bonne précision ( $\pm 1$  à  $\pm 2$  %), nous avons choisi d'utiliser la détermination relative qui nous a semblé la méthode la plus sûre. Toutes les études mentionnées par la suite se rapportent à cette dernière méthode. Nous avons néanmoins déterminé une valeur de l'efficacité de nos chambres d'ionisation. Cette valeur n'est pas la valeur réelle de l'efficacité puisque nous n'avons pas tenu compte des volumes morts, nous avons simplement calculé la tension théorique  $U_0$  correspondant à une quantité de tritium connue (cf formule 1) et nous l'avons comparée à la tension effectivement lue  $U$  sur l'électromètre. Le rapport  $U/U_0$  constitue une indication de la réponse de la chambre et nous nous en sommes servis comme point de comparaison lorsque nous avons étudié l'influence de la variation des différents paramètres sur cette dernière.

## V - ETUDE EXPERIMENTALE

### 1° - Principe de la manipulation

Une éprouvette  $E$  de volume  $v$  donné est remplie, sous une pression connue, d'un gaz dont on veut mesurer le titre en tritium. Cette éprouvette est ensuite adaptée sur la chambre d'ionisation qui, après avoir été soumise à un vide primaire puis remplie d'argon, est mise sous tension. On met l'éprouvette en communication avec la chambre pour permettre au tritium de diffuser dans l'argon et de l'ioniser sous l'effet de ses radiations. On lit la tension affichée lorsque l'équilibre est atteint.

### 2° - Variation de l'efficacité en fonction de la pression d'argon régnant dans la chambre

La variation de la pression d'argon régnant dans la chambre d'ionisation nous a permis d'étudier le comportement simultané de deux paramètres, à savoir l'efficacité et le temps nécessaire pour atteindre la tension d'équilibre. Nous avons effectué huit analyses avec des échantillons possédant des activités voisines les unes des autres (quelques millicuries) et en mettant dans la chambre pour chacune de ces analyses une pression d'argon différente. Nous avons constaté que lorsque cette pression passait de 5 à 60 cm de mercure, le temps nécessaire pour obtenir le palier

d'équilibre croissait de 5 à 60 minutes alors que l'efficacité augmentait moins rapidement et variait entre 70 et 85 %.

Il est intéressant d'effectuer le comptage dans le minimum de temps et avec le maximum d'efficacité, le tableau I nous montre qu'à partir d'une pression de 20 cm de mercure et jusqu'à 60 cm de mercure, l'efficacité croît faiblement - 3 % - alors que la perte de temps se chiffre à 40 minutes environ. Nous avons alors choisi les conditions suivantes pour effectuer les analyses : pression d'argon 20 cm de mercure, l'efficacité étant alors de 82 %. La figure 6 nous montre l'allure de la courbe obtenue sur l'enregistreur dans ces conditions.

En portant en abscisse la pression d'argon, en ordonnée le temps en minutes pour la courbe (1) et l'efficacité en pour cent pour la courbe (2), on obtient le diagramme représenté sur la figure 7.

Pression d'argon en cm de Hg	Efficacité en %	Temps en minute (valeur approximative)
5	70,5	5
10	77,0	10
15	79,0	15
20	81,9	20
30	82,2	30
40	84,2	40
50	84,9	50
60	84,9	60

TABLEAU I.

Variation du temps mis par le tritium pour diffuser dans la chambre et de l'efficacité en fonction de la pression d'argon.

3° - Variation de l'efficacité en fonction du volume total de la chambre

Nous entendons par volume total, le volume effectivement occupé par le mélange tritium-argon une fois la diffusion effectuée.

Les essais habituels de mesure ont été effectués avec des éprouvettes dont le volume variait entre 0,5 et 3 cm<sup>3</sup>. Il nous a semblé intéressant d'étudier le comportement de la réponse de la chambre d'ionisation en faisant varier, pour un même échantillon de tritium, le volume de détente, ceci afin de voir si la grandeur des éprouvettes pouvait influencer la valeur de l'efficacité.

a) Description

Voir figure 8.

b) Mesures

Nous avons calculé en premier lieu la tension théorique correspondant à notre échantillon de tritium préalablement dosé par spectrométrie de masse. Nous avons analysé plusieurs prises d'essai de ce tritium avec des éprouvettes classiques de 1 à 3 cm<sup>3</sup>, le volume total étant constitué par V, v et v<sub>1</sub> (figure 8). Ces mesures nous ont permis de trouver une efficacité de la chambre pour une résistance R donnée. La moyenne des mesures a donné 115,3 %, (remarquons que cette efficacité supérieure à 100 % vient du fait que la résistance utilisée ne correspond pas à la valeur indiquée par le constructeur, soit 10<sup>9</sup> Ω). Ensuite nous avons préparé une série de 10 échantillons dans des éprouvettes classiques (1 à 3 cm<sup>3</sup>), mais en rajoutant, pour chacun de ces essais, une éprouvette v<sub>2</sub> remplie uniquement d'argon, à la même pression que la chambre. En faisant varier v<sub>2</sub> de 4 à 180 cm<sup>3</sup> au fur et à mesure des 10 essais, on a noté des efficacités allant de 115 à 75 %, soit une diminution de plus d'un tiers. Nous avons tracé une courbe en portant en ordonnée l'efficacité et en abscisse le volume supplémentaire v<sub>2</sub> (figure 9), à partir des valeurs numériques reportées sur le tableau II.

v <sub>2</sub> en cm <sup>3</sup>	Efficacité en %
0	116
3,6	115
6,8	113,8
15,3	109,6
21,0	105,7
39,8	98,3
42,8	96,5
58,3	93,1
67,2	92,8
107	82,7
186	74,2

TABLEAU II

Variation de l'efficacité en fonction du volume de l'éprouvette d'argon.

Soient E<sub>0</sub> l'efficacité de la chambre déterminée pour une quantité donnée de tritium en l'absence du volume v<sub>2</sub> et E<sub>1</sub> l'efficacité obtenue pour une même quantité de tritium, le volume v<sub>2</sub> ayant été introduit dans le système de mesure.

Nous avons entre les volumes et les efficacités la relation :

$$E_0 (V + v + V_1) = E_1 (V + v + v_1 + v_2)$$

L'utilisation de la courbe de la figure 9 nous permet de calculer de façon approchée la somme  $V + v + v_1$ , on trouve  $V + v + v_1$  voisin de  $230 \text{ cm}^3$ .

L'influence de la valeur du volume  $v_1$  qui est voisin de quelques centimètres cubes est donc faible, mais pas toujours négligeable. Si deux quantités de tritium identiques sont introduites dans deux éprouvettes de volume respectif  $v_1 = 3 \text{ cm}^3$  et  $v_2 = 5 \text{ cm}^3$  l'écart relatif sur l'efficacité sera voisin de 1 %.

#### 4° - Etalonnage

Nos deux chambres d'ionisation ont été étalonnées en introduisant des quantités de tritium connues et en enregistrant la réponse. Les tableaux III, IV, V et VI résument les valeurs portées sur les diagrammes représentés par les figures 10, 11, 12 et 13. Nous avons porté en abscisse le volume de tritium pur, en  $\text{mm}^3$  TPN (température et pression normales) et en ordonnée la tension lue sur l'électromètre.

Volume de $T_2$ $\text{mm}^3$	Activité mCi	Tension lue sur l'électromètre en mV
1,90	4,88	50,6
3,85	9,89	104
5,48	14,10	143
7,98	20,50	208
9,53	24,50	248
11,85	30,40	310
13,80	35,40	376
14,35	36,90	385
18,73	48,10	508
23,80	61,20	641
30,30	77,90	818
32,50	83,50	875
36,40	93,50	980

TABLEAU III

Etalonnage de la chambre n° 1 avec la résistance  $R = 10^7 \Omega$ .

Volume en mm <sup>3</sup>	Activité en mCi	T (volts)
1,125	2,89	2,88
1,85	4,76	4,71
1,895	4,84	4,82
3,02	7,76	7,66
4,80	12,7	12,09
6,03	15,5	15,40

TABLEAU IV

Etalonnage de la chambre n° 1 avec la résistance  $R = 10^9 \Omega$ .

Volume en mm <sup>3</sup>	Activité en mCi	T (mV)
2,78	7,1	77,8
8,88	22,8	241
11,5	29,6	309
14,1	36,1	388
17,1	44,0	468
18,8	48,3	515
23,7	60,9	652
26,2	67,4	712
30,3	77,9	828

TABLEAU V

Etalonnage de la chambre n° 2 avec la résistance  $R = 10^7 \Omega$ .

Volume en mm <sup>3</sup>	Activité en mCi	T (volts)
0,404	1,04	1,58
0,890	2,29	3,50
2,86	7,35	11,05
4,93	12,7	19,1
6,80	17,5	26,2

TABLEAU VI

Etalonnage de la chambre n° 2 avec résistance  $R = 10^9 \Omega$ .

5° - Décontamination de la chambre d'ionisation

a) Essais négatifs

Après plusieurs mois de marche continue, le bruit de fond donné par la chambre d'ionisation était monté à 260 mV avec la résistance de  $10^9 \Omega$ . Dans ces conditions il devenait impossible de travailler avec la résistance de  $10^{11} \Omega$ . Nous avons procédé aux essais suivants :

- le nettoyage des joints toriques, de l'électrode centrale et de l'intérieur de la paroi de la chambre n'a donné aucune amélioration.
- la chambre est remplie d'hydrogène durant une nuit et mise sous une tension de 270 volts, le lendemain matin on fait le vide durant une heure avant de mesurer le bruit de fond : on constate une augmentation de celui-ci à 300 mV.
- un nettoyage énergique à l'acétone de la paroi interne apporte une diminution sensible mais non satisfaisante : 220 mV.
- un chauffage modéré de l'enceinte métallique de la chambre (70°C) durant 15 minutes avec pompage simultané n'apporte aucune amélioration.

b) Le seul essai concluant a été le chauffage à 350°C pendant plus de deux heures, de l'enceinte métallique de la chambre, dans une étuve ventilée à l'air. Après cet étuvage énergique, la mesure du bruit de fond est à nouveau effectuée et cette fois, nous constatons une baisse notable : 9 mV en  $10^9 \Omega$  ce qui est satisfaisant pour les quantités de tritium que nous avons à analyser.

6° - Reproductibilité et précision de la méthode

a) Reproductibilité

Nous avons effectué sur l'une des chambres une série de 13 mesures avec la même résistance de  $10^7$  ohms, avec des prises d'essai préparées à partir d'un même échantillon de tritium, dont le titre a été mesuré au spectromètre de masse. Pour chaque mesure nous avons déterminé l'efficacité. Avec les treize valeurs ainsi obtenues nous avons calculé l'écart type moyen  $\sigma_m$  puis l'intervalle de confiance  $t$  à 95 %. Les résultats sont reportés dans le tableau VII.

Efficacité $x_i$	$ \bar{x} - x_i $	$(\bar{x} - x_i)^2$
80,0	1,9	3,60
81,2	0,7	0,49
80,1	1,8	3,24
82,6	0,7	0,49
82,6	0,7	0,49
82,7	0,8	0,64
80,3	1,6	2,56
82,4	0,5	0,25
83,1	1,2	1,44
80,2	1,7	2,89
82,9	1,0	1,00
83,4	1,5	2,25
82,7	0,8	0,64

TABLEAU VII

Mesure de la reproductibilité.

$$\bar{x} = 81,9$$

$$\Sigma (\bar{x} - x_i)^2 = 19,98 \quad n = 13 \quad t_{0,95} = 2,18$$

$$\text{d'où } \sigma_m = \sqrt{\frac{19,98}{12 \times 13}} = 0,36$$

Le résultat vrai a 95 chances sur 100 d'être compris dans les limites 81,1 - 82,7.

De plus on déduit le coefficient de variation  $\frac{\sigma}{\bar{x}}$

$$\text{avec } \sigma = \sigma_m \cdot \sqrt{n} = 1,29$$

$$\text{d'où } \frac{\sigma}{\bar{x}} = \frac{1,29}{81,9} = 1,57 \cdot 10^{-2}$$

Le coefficient de variation est égal à 1,57 %.

**b) Précision de la mesure**

**- Précision de la mesure de l'efficacité**

**a) Erreur commise sur le volume introduit dans la chambre**

Soit  $v_0$  le volume de tritium pur pris dans les conditions normales de pression et de ten-

pérature. Nous avons :

$$v_0 = \frac{p \cdot v \cdot 273}{760 T} \cdot \tau$$

avec p la pression lue à la jauge McLeod (mm)

v le volume de l'éprouvette jaugée

$\tau$  le titre en tritium

T la température absolue

nous en déduisons l'erreur relative commise sur  $v_0$

$$\frac{\Delta v_0}{v_0} = \frac{\Delta p}{p} + \frac{\Delta v}{v} + \frac{\Delta T}{T} + \frac{\Delta \tau}{\tau}$$

Les manipulations se faisant en boîtes à gants ventilées, la température peut être considérée comme constante. Les éprouvettes étant jaugées au moyen de mercure, en faisant deux pesées successives sur une balance Mettler graduée en 0,1 mg, l'erreur relative sur v a été évaluée à 0,2 %. Quant à l'erreur commise sur la pression p, elle provient essentiellement de l'ajustement du niveau de mercure au trait de zéro. En effet, la lecture elle-même, qui est faite au cathétomètre (avec un vernier au 1/50<sup>e</sup> de mm), consiste à viser le niveau de mercure dans le capillaire ( $h_2$ ) et les deux traits de repère ( $h_3$  et  $h_4$ ) qui l'encadrent, puis d'interpoler. Nous considérons la lecture elle-même comme exempte d'erreur, la seule erreur provenant d'un mauvais ajustement du mercure au trait de zéro dans les colonnes de gauche (figure 14).

On sait qu'une variation  $\Delta h$  du niveau de mercure en  $h_0$  entraîne une variation  $\frac{\Delta h}{2}$  dans le capillaire C. Or le niveau peut être ajusté à 0,1 mm près. Donc  $h_2$  sera exact à  $\pm 0,05$  mm. Si A est la pression indiquée au trait  $h_3$ , B celle indiquée au trait  $h_4$ , on aura pour valeur de la pression p :

$$p = A + \frac{(B-A) (h_2 - h_3)}{(h_4 - h_3)}$$

Si nous posons :

$$(h_2 - h_3) = h' \text{ et } (h_4 - h_3) = h \text{ on a}$$

$$p = A + \frac{(B - A) h'}{h}$$

et

$$\frac{\Delta p}{p} = \frac{(B-A) \Delta h'}{A \cdot h + (B-A) h'}$$

Nous considérons le cas le plus défavorable ou  $h' \neq 0$  donc :

$$\frac{\Delta p}{p} = \frac{(B-A) \Delta h'}{Ah}$$

Exemples :

Si p est compris entre 0,7 et 1 mm on a :

$$A = 0,7$$

$$B = 1$$

$$h = 5$$

$$\text{d'où } \frac{\Delta p}{p} = \frac{0,3 \cdot 0,05}{0,7 \cdot 5} = 0,5 \%$$

Si p est compris entre 1,5 et 2 mm

$$A = 1,5$$

$$B = 2$$

$$h = 5,5$$

$$\text{on a } \frac{\Delta p}{p} = \frac{0,05 \cdot 0,5}{5,5 \times 1,5} = 0,3 \%$$

Si p est compris entre 3 et 4 mm

$$A = 3$$

$$B = 4$$

$$h = 9$$

$$\text{et } \frac{\Delta p}{p} = \frac{0,05 \times 1}{9 \times 3} = \frac{0,05}{27} = 0,2 \%$$

Si p est compris entre 9 et 10

$$A = 9$$

$$B = 10$$

$$h = 5$$

$$\frac{\Delta p}{p} = \frac{0,05 \times 1}{5 \times 9} = \frac{0,05}{45} \approx 0,1 \%$$

Il reste l'erreur sur le titre du tritium, ce dernier est déterminé par spectrométrie de masse à  $\pm 1 \%$  au moins.

$$\text{Ce qui nous donne pour } \frac{\Delta v_o}{v_o}$$

$$\frac{\Delta v_o}{v_o} = 0,2 + 0,5 + 1 = 1,7 \%$$

L'incertitude affectant le titre de l'étalon de tritium n'entrerait pas en ligne de compte pour un étalonnage absolu.

β) Précision de la tension lue sur l'enregistreur

Dans le cas d'une mesure absolue, le calcul nous permet d'établir la correspondance entre l'unité de volume de tritium et la tension théorique  $u$  qui devrait être enregistrée pour une résistance donnée.

La tension théorique correspondant à un volume  $v_0$  sera égale à  $U_0 = v_0 u$ . La tension lue effectivement sur le diagramme de l'enregistreur est donnée par la relation  $U = \frac{1 - l_0}{l_2} \cdot s$

- avec
- 1 = hauteur du palier d'équilibre
  - $l_0$  = hauteur du palier du bruit de fond
  - $l_2$  = étendue de l'échelle
  - s = sensibilité affichée sur l'atténuateur.

Le rapport  $\frac{U}{U_0}$  est égal à l'efficacité E

$$E = \frac{1 - l_0}{l_2} \cdot s \cdot \frac{1}{v_0 \cdot u}$$

Habituellement le bruit de fond est très faible de sorte qu'on peut négliger  $l_0$  devant 1. Donc  $\frac{\Delta U}{U}$  se réduit à  $\frac{\Delta l}{l}$ . D'autre part, nous nous plaçons dans des conditions d'exploitation telles que la hauteur du palier dépasse légèrement les trois dixièmes de l'échelle (on est ainsi obligé d'opérer en sensibilité  $3 \cdot 10^n$  volts sur l'atténuateur). Nous aurons alors  $l = 80$  mm et  $\Delta l = 0,5$  mm donc

$$\frac{\Delta U}{U} = \frac{0,5}{80} = 0,6 \%$$

γ) Erreur commise sur l'efficacité

$$\begin{aligned} \frac{\Delta E}{E} &= \frac{\Delta U}{U} + \frac{\Delta v_0}{v_0} + \frac{\Delta u}{u} \\ &= 0,6 + 1,7 + \frac{\Delta u}{u} \\ &= 2,3 + \frac{\Delta u}{u} \end{aligned}$$

$u$  est déterminé à l'aide des constantes et dépend essentiellement de la précision avec laquelle on connaît la période du tritium, son énergie de désintégration, l'énergie de formation d'une paire d'ions.

Nous avons vu au chapitre III que  $\frac{\Delta V}{V}$  était de l'ordre de  $5 \cdot 10^{-2}$  si on tenait compte de la correction de volume. Donc  $\frac{\Delta E}{E} \approx 7$  à  $8 \cdot 10^{-2}$ .

- Mesure proprement dite

Le titre donné par l'analyse sera égal à :

$$\tau' = \frac{v_0'}{v}$$

$v_0'$  = volume TPN de tritium indiqué par l'analyse

$v$  = volume total TPN de gaz prélevé dans l'éprouvette livrée à l'analyse

$\frac{\Delta v}{v}$  sera égal à l'erreur sur  $v_0$  moins l'erreur sur le titre initial  $\tau$ , donc  $\frac{\Delta v}{v} = 0,7$

$\Delta v_0'$  sera la variation de volume de tritium correspondant au domaine d'erreur de la tension  $U$  sur la droite d'étalonnage, soit  $\Delta v_0' = \frac{1}{k} \Delta u$ ,  $k$  étant la pente de la droite  $U = kv$  or  $k$  est approximativement égal à 1 donc

$$\frac{\Delta \tau'}{\tau'} = 0,7 + 0,6 = 1,3 \%$$

VI - REALISATION PRATIQUE

1° - Appareillage

Nous avons utilisé deux types de chambre d'ionisation, celle du type Cary-Tolbert et une autre de conception française dont les plans nous ont été fournis par M. LESIMPLE (Département des Radio-Eléments, CEN-SACLAY) et dont la construction a été assurée par les Etablissements BRUNET et PRAMMAGIORE à VILLEJUIF. Dans les deux cas la chambre était reliée à un préamplificateur et à un amplificateur Carry modèle 31, de l'Applied Physics Corporation. Le préamplificateur était muni d'une tourelle de commutation permettant d'utiliser trois résistances étalon  $10^7$ ,  $10^9$  et  $10^{11}$  ohms. De plus, l'amplificateur était relié à un enregistreur MECI pour nous permettre de matérialiser la diffusion du tritium dans la chambre et la réalisation de l'équilibre.

2° - Mode opératoire

a) Prélèvements des échantillons

Les prises d'essai se font sur le montage représenté sur la figure 15 et constitué par une canalisation en verre reliée d'un côté à une pompe à palettes pour réaliser le vide primaire, de l'autre côté à une jauge MacLeod permettant de mesurer des pressions comprises entre  $10^{-2}$  et 10 millimètres de mercure. L'ampoule contenant l'échantillon à analyser est adaptée sur l'appareil en E, après avoir fait le vide primaire (0,4 Pascal) dans toute la canalisation ainsi que dans les éprouvettes  $e_1$ ,  $e_2$  et A (tous les robinets étant à cet effet ouverts, sauf 5 et 12) on ferme 1, 2, 3, 4, puis on détend le gaz de E dans  $e_1$  et  $e_2$  en ouvrant 5. Si la pression était trop forte dans E on détendrait une première fois dans le volume  $v$  compris entre 6 et 7, puis 6 étant fermé, on effectuerait une seconde détente à partir de  $v$  dans le reste de l'appareillage. On remonte alors le mercure dans la jauge MacLeod jusqu'au repère r et, à ce moment, on ouvre l'éprouvette A (robinet 4) afin de compenser l'augmentation de pression dans la canalisation, due à la montée du mer-

cure. Cette correction est nécessaire pour pouvoir effectuer une mesure juste de la pression. En effet, reportons nous à la fig. 16.

La valeur de la pression lue à la jauge MacLeod (type EDWARDS  $10^{-2}$  à 10 mm) est donnée par la formule :

$$P = \frac{h \cdot s (h + P)}{V}$$

avec  $h$  = différence des niveaux du mercure dans les branches 1 et 2 de la jauge  
 $s$  = section du tube capillaire 2  
 $V$  = volume connu de la jauge.

$P$  est donc la pression qui règne dans l'enceinte E du montage. Celle-ci est supposée assez grande pour que  $P$  ne varie pas lorsque le mercure passe du niveau B au niveau C dans les branches 1 et 3, lors de la mesure de la pression. Or dans nos conditions de montage, le volume de gauche E où se font les prises d'essai de gaz ne jauge qu'une centaine de centimètres cubes, alors que le volume compris entre B et C est évalué à  $14,5 \text{ cm}^3$ . Par conséquent, la pression initiale  $P$  - quand le mercure est encore en B - varie de plus de 10 % quand le mercure monte jusqu'en C, et de ce fait  $p$  devient  $p' > p$  à la fin de la mesure, cela entraîne une indication  $h$  dans le capillaire inférieure à l'indication effective.

Afin de procéder à des lectures correctes à l'aide de la jauge, nous avons rétabli la pression  $p$  qui règne dans le volume de gauche E en lui adjoignant un volume supplémentaire A égal à  $14,5 \text{ cm}^3$ . Après la séparation du mercure en B, nous ouvrons le robinet de A où règne le vide, et de ce fait lorsque le mercure est arrivé en C, la pression lue est bien celle qui règne effectivement dans l'enceinte E. Après mesure de la pression, on isole les éprouvettes  $e_1$  et  $e_2$  contenant les prises d'essais en fermant 8 et 9. On ouvre 2 et 3 pour que l'uranium pyrophorique contenu dans le four  $f$  adsorbe le tritium répandu dans la canalisation. Après adsorption on ferme 10 et 11 et on détache les éprouvettes  $e_1$  et  $e_2$  qui sont prêtes à être analysées.

#### b) Comptage proprement dit.

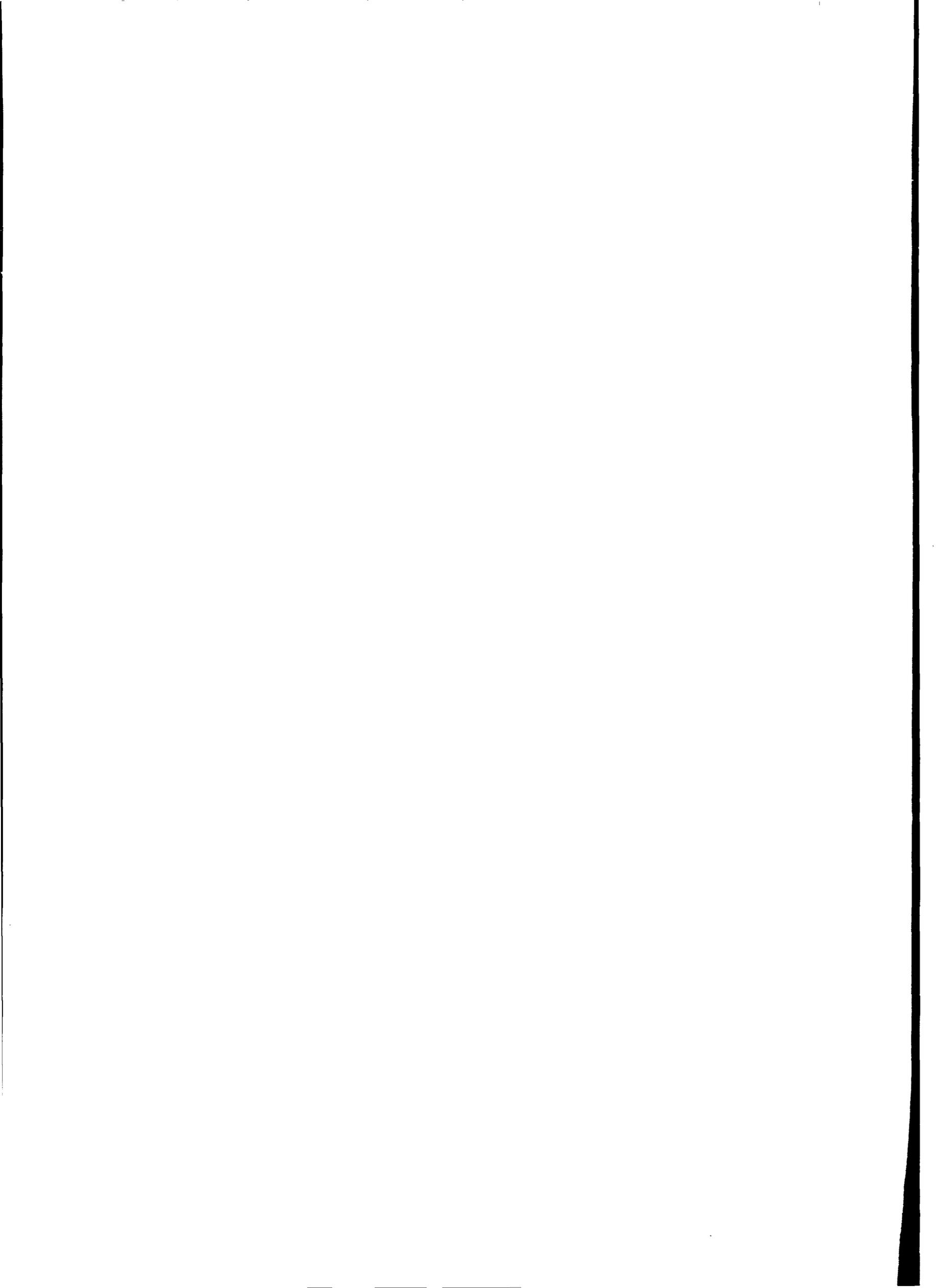
L'appareil de comptage a pour organe central la chambre d'ionisation C (cf figure 17). Celle-ci est reliée par le bas au préamplificateur (Pa) lui-même couplé à l'amplificateur (Amp) et à l'enregistreur (ces deux derniers étant situés à l'extérieur de la boîte à gants), et par le haut à une canalisation en verre permettant l'arrivée d'argon et la réalisation du vide. On adapte deux éprouvettes  $e_1$  et  $e_2$  sur le haut de la chambre et on fait le vide dans toute la canalisation y compris la chambre (les robinets 1, 2 et 3 sont fermés, tous les autres sont ouverts). Il est nécessaire de faire le vide pendant 30 minutes au moins afin d'enlever toute trace de tritium résiduel pouvant provenir des manipulations précédentes. Après cela, la chambre est purgée plusieurs fois à l'argon, en ouvrant alternativement 3 et 5. Finalement on maintient dans la chambre une pression d'argon de 20 cm de mercure (l'indication de pression est donnée par un manomètre à lame d'acier M) et on ferme 7. On branche une batterie de 270 volts de telle manière que le pôle négatif soit relié à la paroi de la chambre et le pôle positif à la masse.

La tourelle de commutation étant en position "TERRE" on règle le zéro de l'appareil sur l'amplificateur. Pour mesurer le bruit de fond, on affiche sur la tourelle la position 2, 3 ou 4 selon que l'on veut opérer avec une résistance de  $10^7$ ,  $10^9$  ou  $10^{11}$   $\Omega$ . Le choix de la résistance est fonction de l'activité de la prise d'essai.

Il suffit à présent d'ouvrir l'un des deux robinets 1 ou 2 pour permettre au tritium de diffuser dans l'argon et l'ioniser. Au fur et à mesure que la diffusion se fait, la tension aux bornes de la résistance croît jusqu'à atteindre un palier d'équilibre. La hauteur de ce palier est proportionnelle à la quantité de tritium présente dans la chambre. Lorsque l'on est sûr que le palier est atteint la mesure est considérée comme terminée. On débranche alors la pile, on refait le vide pendant une demi-heure et on reprend le même processus expérimental pour analyser la seconde éprouvette.

## VII - CONCLUSION

La méthode du dosage du tritium par comptage dans une chambre d'ionisation ne constitue pas un moyen de mesure absolue du fait de l'incertitude qui règne sur les constantes. En revanche, sa bonne reproductibilité permet de procéder à des essais de comparaison entre différents échantillons, la comparaison étant rapportée à un témoin considéré comme échantillon de référence. En étalonnant ainsi la chambre d'ionisation nous nous affranchissons des constantes, il en résulte que la précision de la méthode n'est plus fonction que de l'incertitude sur le titre du tritium de référence (2 %) et des erreurs de manipulation (1 %), soit une précision de l'ordre de 3 %.



REFERENCES

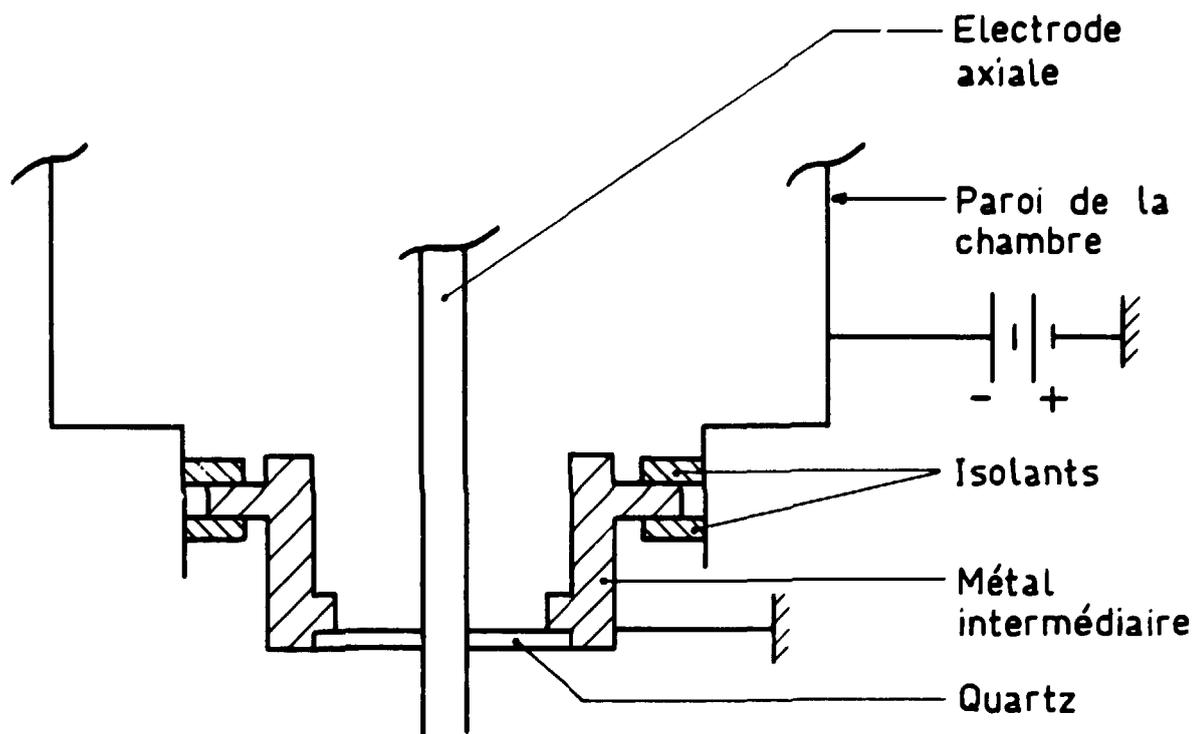
- [1] WILZBACH K. E. , VAN DYKEN A.  
AECD - 2998, ANL - WMM 708  
"The determination of tritium and carbon 14 in organic compounds".
- [2] MATTRAW H. C.  
AECD - 3821  
"An ion chamber for the determination of small amounts of tritium in other gases".
- [3] WILZBACH K. E. , VAN DYKEN AR. , KAPLAN L.  
ANL 5143  
"The determination of tritium by ion current measurement".
- [4] WILZBACH K. E. , VAN DYKEN AR. , KAPLAN L.  
"Determination of tritium by ion current measurement".  
Anal. Chem. 1954, 26, 880-3
- [5] FINKELSTEIN A. , LESIMPLE M.  
"Le dosage du tritium dans l'eau tritiée"  
J. Nuclear Energy, 1955, 2, 101
- [6] TOLBERT B. M.  
UCRL - 3499  
"Ionization chamber assay of radioactive gases"
- [7] BRIERE M.  
"Limites des possibilités de mesures de faibles activités au moyen de chambre d'ionisation".  
Rapport CEA-R-942

- [8] Période des radioéléments - tritium  
CEA-CETAMA, groupe 8 - octobre 1965
- [9] JENKS G. H., GHORMLEY J. A., SWEETON F. H.  
"Measurement of the half-life and average energy of tritium decay"  
Phys. Rev. 1949, 75, 701
- [10] JENKS G. H., SWEETON F. H., GHORMLEY J. A.  
"A precise determination of the half-life and average energy of tritium decay"  
Phys. Rev. 1950, 80, 990
- [11] JONES W. M.  
"The half-life of tritium by absolute counting"  
Phys. Rev. 1951, 83, 537
- [12] JONES W. M.  
"Half-life of tritium"  
Phys. Rev. 1955, 100, 124
- [13] M L M 1160, p 5-6  
"Half-life of tritium"
- [14] PILLINGER W. L.  
"Radiometric assay by precision calorimetry"  
TID 7615 p 90-101
- [15] POPOV M. M., GAGARINSKII V., SENIN M. D., MIKHALENKO I. P., MOROZOV M.  
"The average  $\beta$  particule energy and decay constant of tritium"  
Soviet J. Atomic Energy, 1958, 4, 393
- [16] GREGORY D. P., LANDSMAN D. A.  
"Average decay energy of tritium"  
Phys. Rev. 1958, 109, 2091
- [17] VALENTINE J. M., CURRAN J. C.  
"Energy expenditure per ion pair for electrons and  $\alpha$  particles"  
Phil. Mag. 1952, 43, 964

- [18] CURRAN S. C., COCKROFT A. L., G. M. INSCH  
"Investigations of soft radiations. Energy expenditure per ion pair for slow electrons  
in various gases"  
Phil. Mag. 1950, 41, 517.

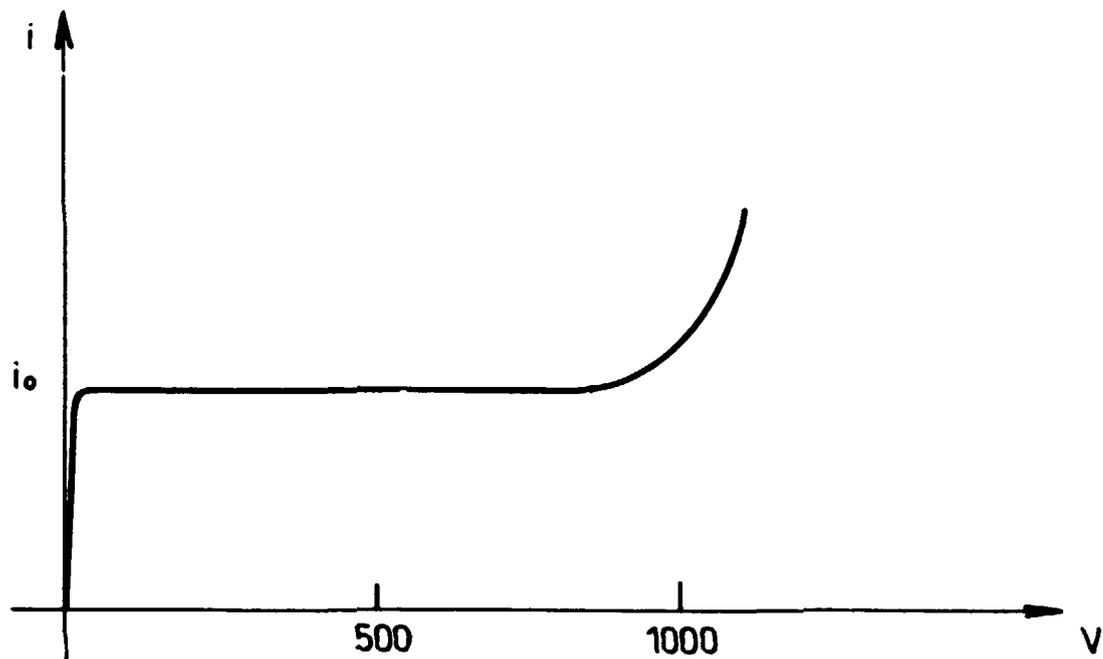
*Manuscrit reçu le 24 juillet 1967*





- Figure 1 -

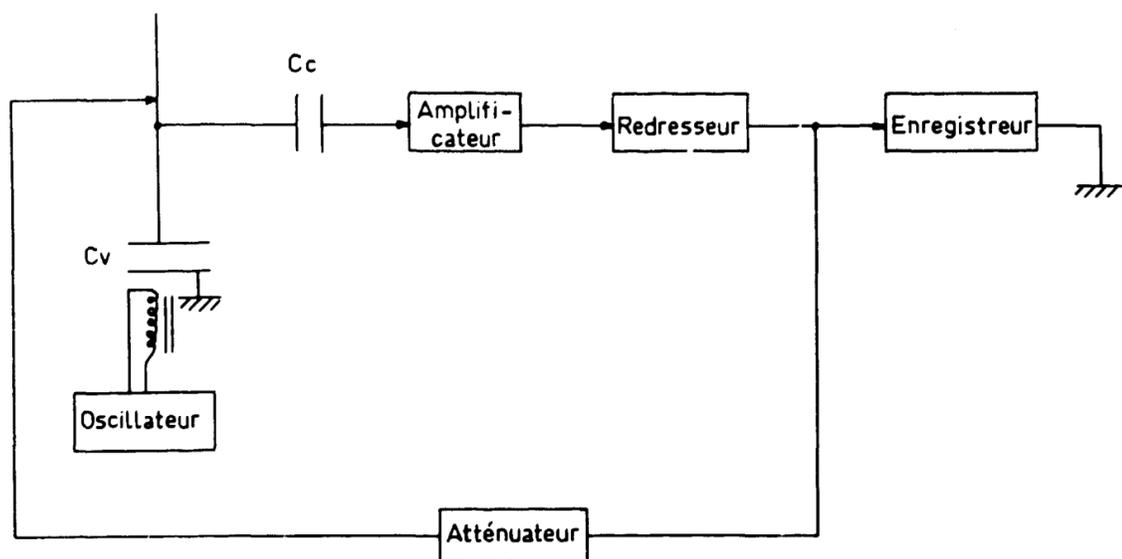
Schéma de la chambre d'ionisation



- Figure 2 -

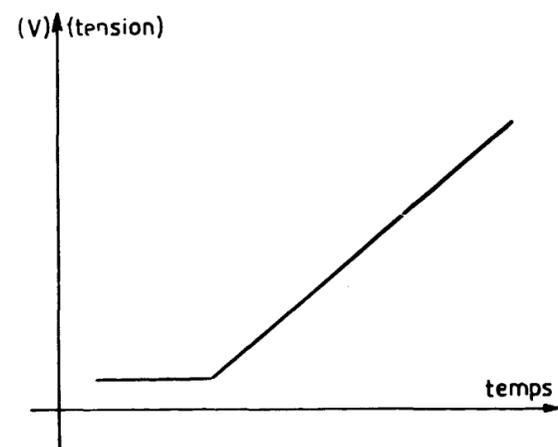
Courant d'ionisation en fonction de la tension appliquée  
(pour une même quantité de tritium)

$i_0$  : courant correspondant à tous les électrons formés.  
Cette valeur atteinte pour 50 volts reste pratique-  
ment constante jusque vers 1 000 volts.



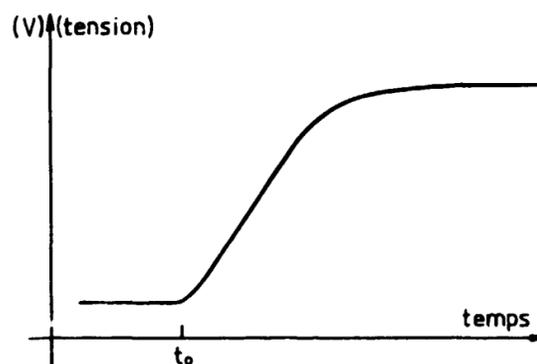
- Figure 3 -

Schéma simplifié d'un électromètre à lame vibrante



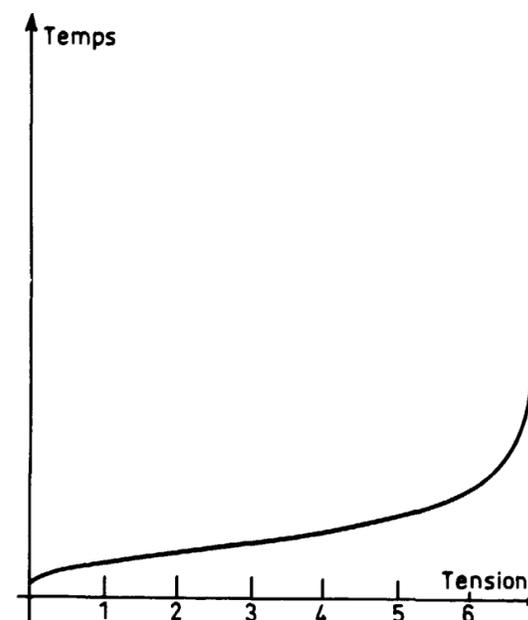
- Figure 4 -

Mesure de faibles quantités de tritium (méthode du condensateur)



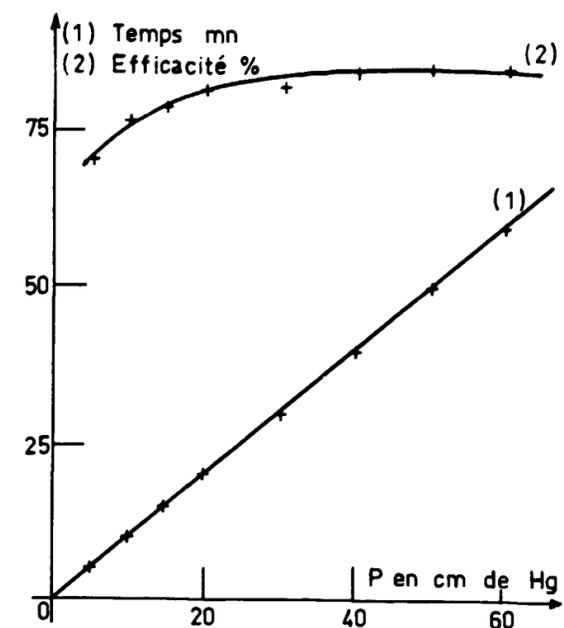
- Figure 5 -

Mesure de quantités plus importantes de tritium (méthode de la résistance)  
 $t_0$  : début de la mesure



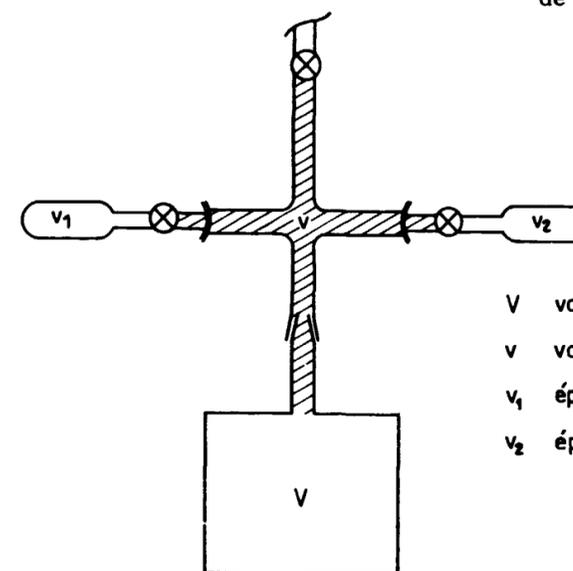
- Figure 6 -

Type d'enregistrement obtenu avec la chambre d'ionisation



- Figure 7 -

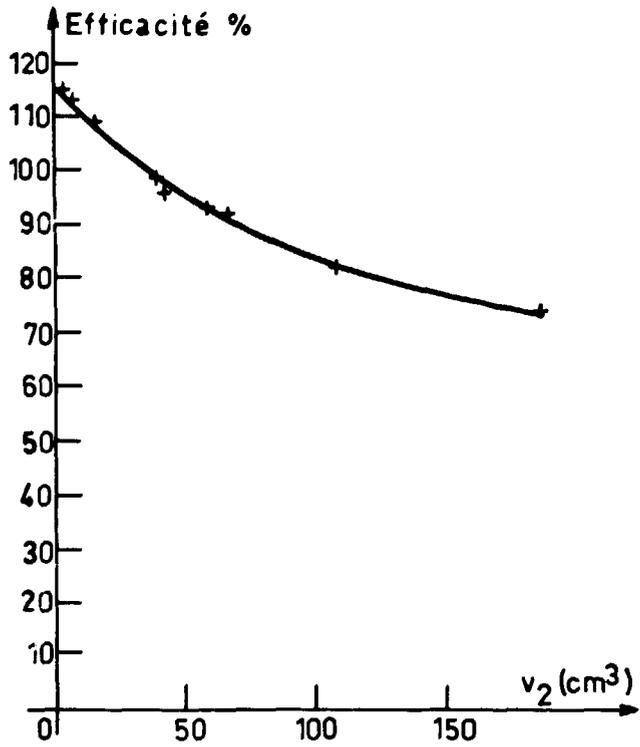
(1) Variation du temps mis par le tritium pour diffuser dans tout le volume de la chambre, en fonction de la pression d'argon.  
 (2) Variation de l'efficacité en fonction de la pression d'argon dans la chambre



V volume de la chambre proprement dite  
 v volume mort (partie hachurée)  
 $v_1$  éprouvette contenant le tritium  
 $v_2$  éprouvette remplie d'argon

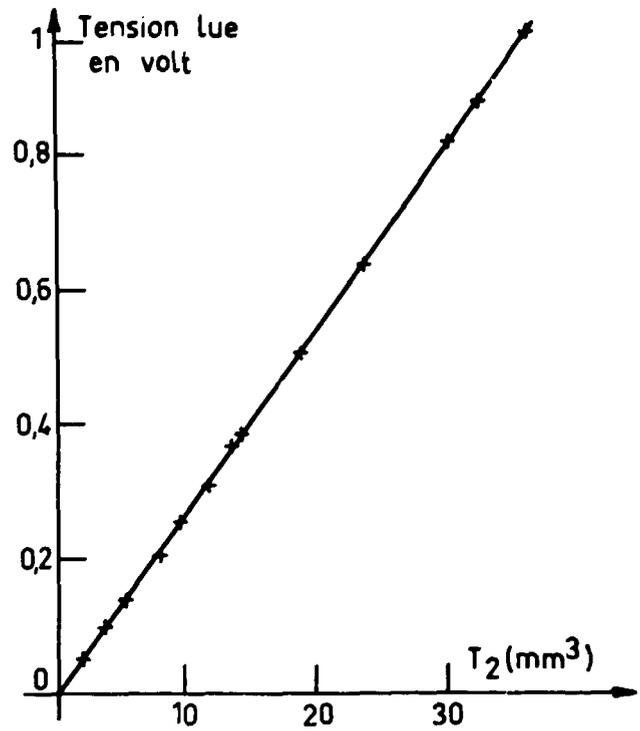
- Figure 8 -

Schéma du montage utilisé pour déterminer la variation de l'efficacité en fonction du volume total



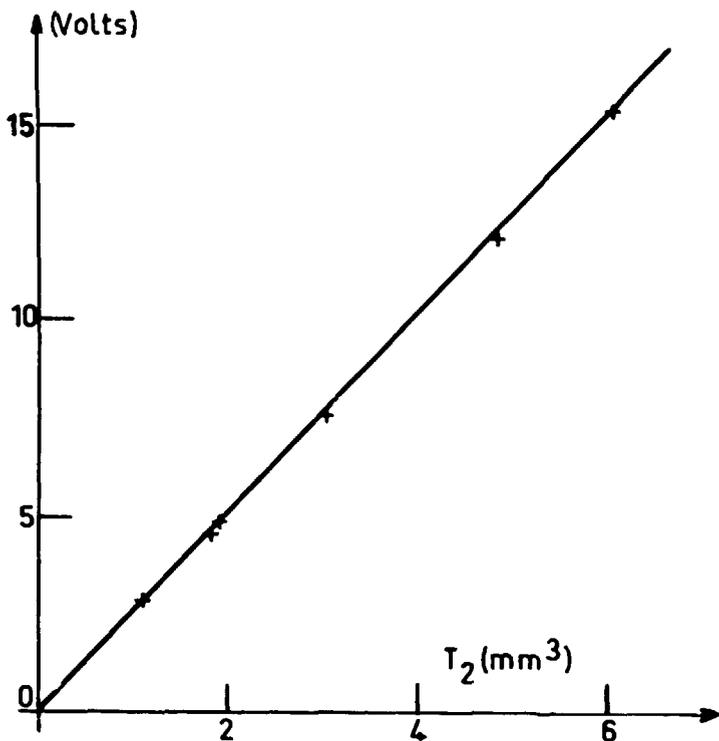
- Figure 9 -

Variation de l'efficacité en fonction du volume de détente  $v_2$



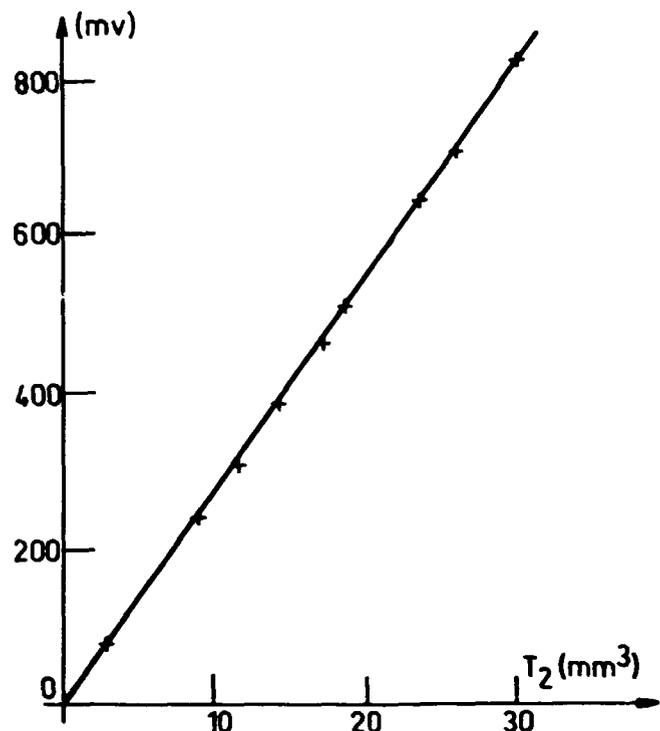
- Figure 10 -

Courbe d'étalonnage :  
 - chambre d'ionisation n° 1  
 - résistance  $R = 10^7 \Omega$



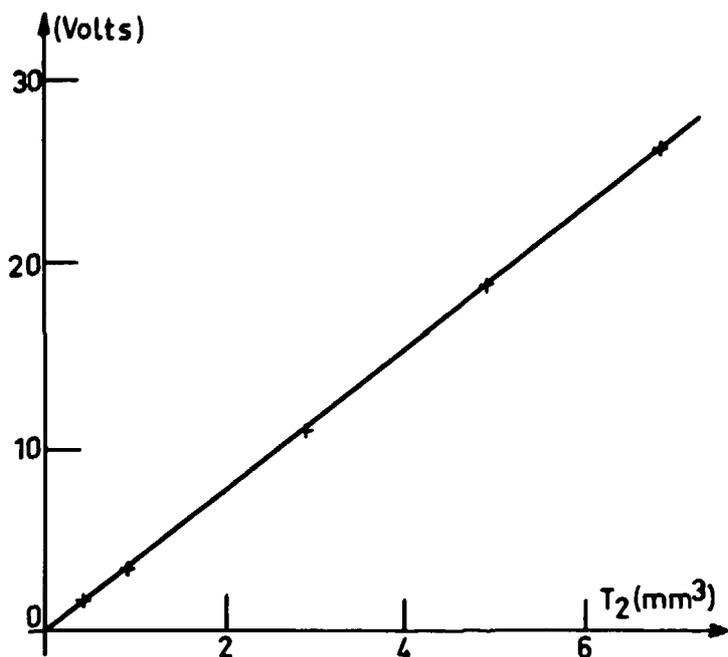
- Figure 11 -

Courbe d'étalonnage :  
 - chambre d'ionisation n° 1  
 - résistance  $R = 10^9 \Omega$



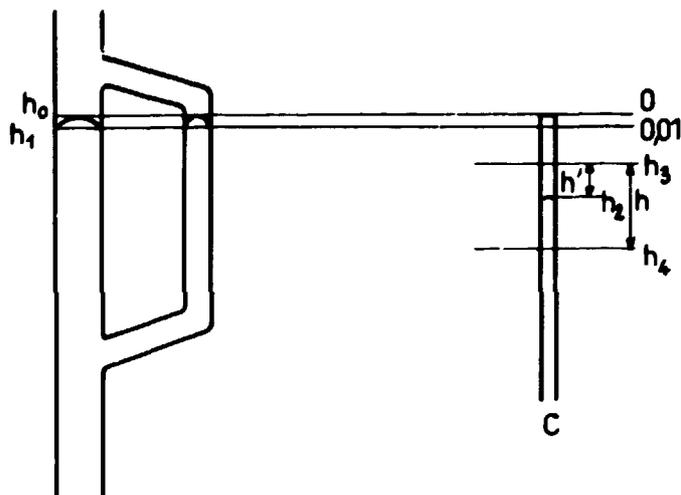
- Figure 12 -

Courbe d'étalonnage :  
 - chambre d'ionisation n° 2  
 - résistance  $R = 10^7 \Omega$



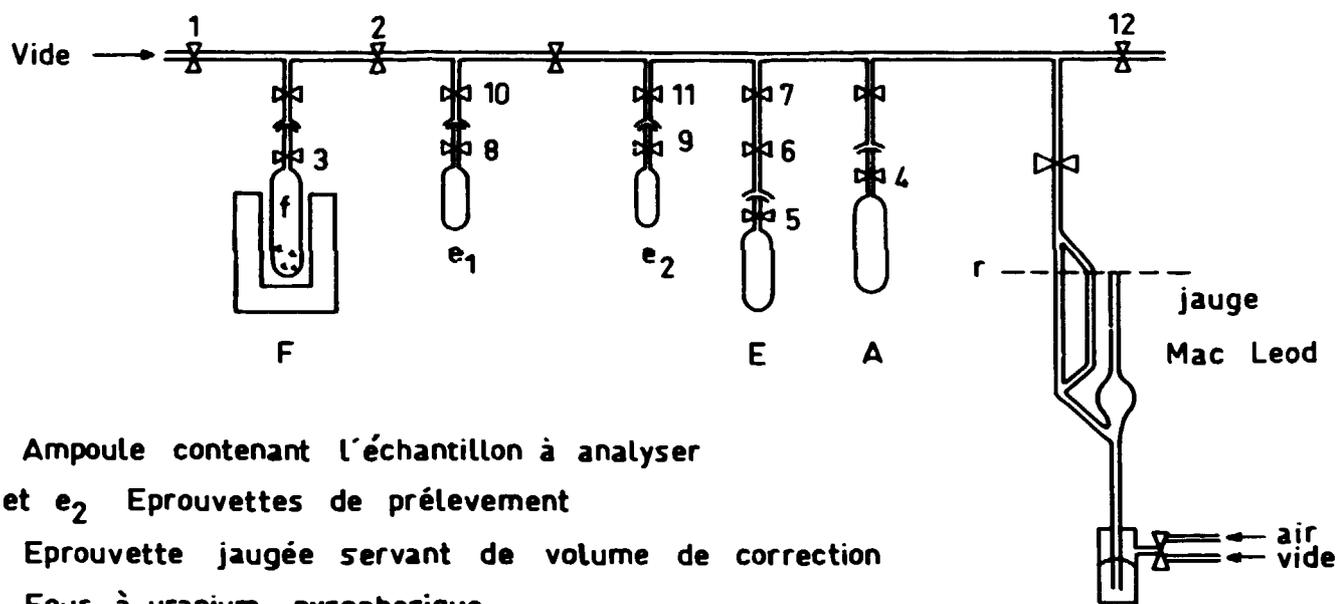
- Figure 13 -

Courbe d'étalonnage :  
 - chambre d'ionisation n° 2  
 - résistance  $R = 10^9 \Omega$



- Figure 14 -

Incertitude sur la mesure de la pression



- E Ampoule contenant l'échantillon à analyser
- $e_1$  et  $e_2$  Eprouvettes de prélèvement
- A Eprouvette jaugée servant de volume de correction
- f Four à uranium pyrophorique
- F Four électrique
- v Volume de première détente

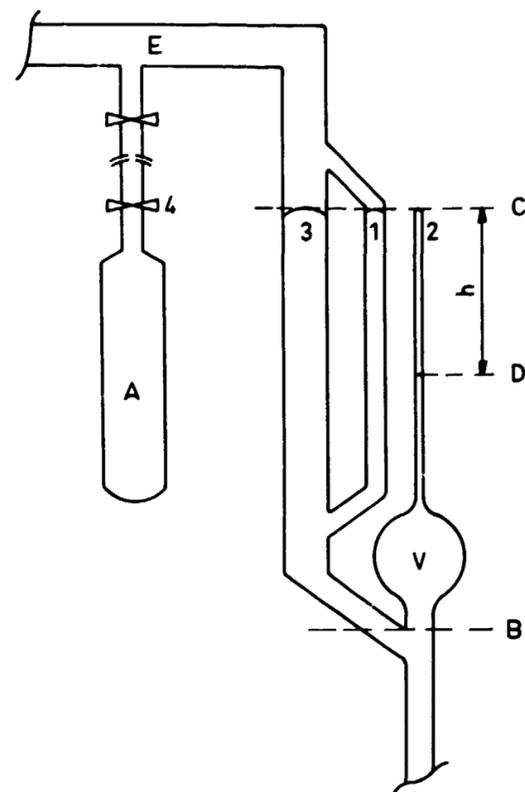
- Figure 15 -

Prélèvement des échantillons gazeux tritiés

# FIN

- Figure 16 -

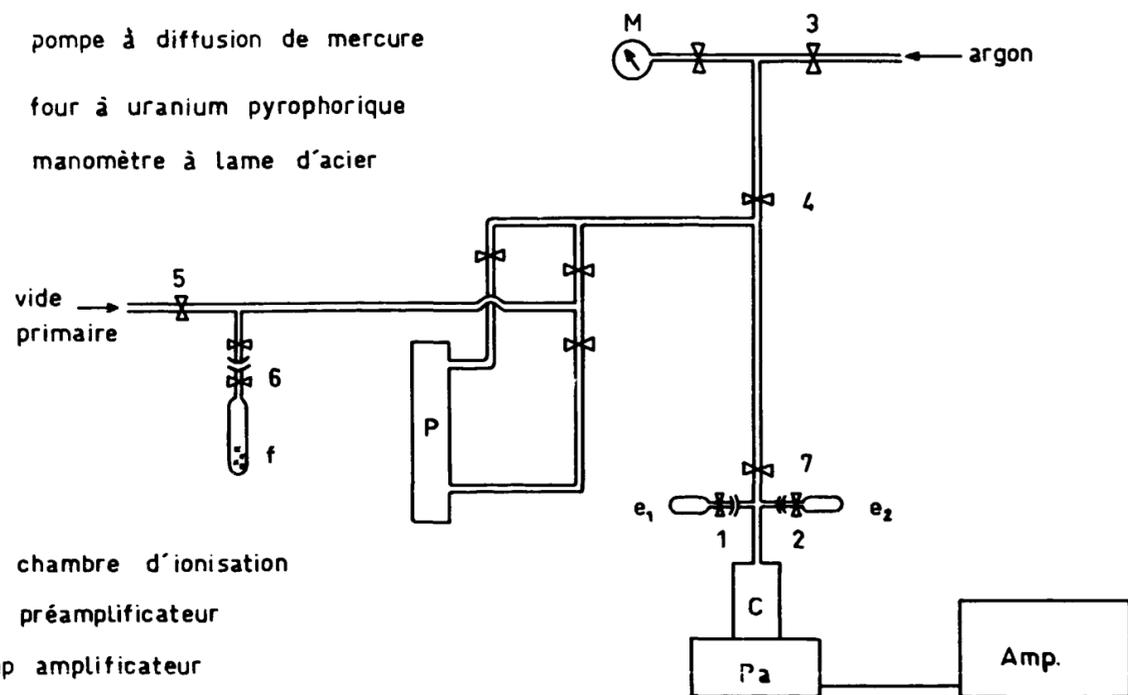
Schéma de la jauge de Mac Leod



P pompe à diffusion de mercure

f four à uranium pyrophorique

M manomètre à lame d'acier



C chambre d'ionisation

Pa préamplificateur

Amp amplificateur

- Figure 17 -

Comptage du tritium par chambre d'ionisation