

PRÉSIDENCE DU CONSEIL
COMMISSARIAT A
L'ÉNERGIE ATOMIQUE

Chambre d'ionisation à fission pour la mesure des faibles flux de neutrons lents

par

J. WEILL et J. P. DUCHENE

Rapport CEA n° **870**

1958

CENTRE D'ÉTUDES
NUCLÉAIRES DE SACLAY
SERVICE DE DOCUMENTATION
Boite postale n° 2 - Gif-sur-Yvette (S.-et-O.)

WEILL J., DUCHENE J. P.

Rapport CEA 870.

Chambre d'ionisation à fission pour la mesure des faibles flux de neutrons lents.

Sommaire. — La chambre d'ionisation décrite est destinée à la mesure des flux de neutrons lents d'intensité moyenne ou faible, en présence éventuelle de flux gamma très importants. La capture d'un neutron lent par un matériau fissile, en l'occurrence ^{235}U , donne naissance à des fragments de fission, particules de grande énergie qui ionisent le gaz contenu dans la chambre.

Les neutrons sont détectés grâce aux impulsions de potentiel, sur l'électrode collectrice de la chambre, provenant de la collection des ions produits par les fragments de fission.

Une chaîne de mesure comprenant un préamplificateur, un amplificateur 2 Mc, un discriminateur, une échelle électronique avec numérateur ou intégrateur permet le comptage des impulsions.

Les caractéristiques générales sont :
sensibilité aux neutrons : 0,07 choc/n/cm².s,
sensibilité aux rayons γ : nulle jusqu'à
 $3 \cdot 10^4$ R/H,
bruit de fond α à la tension normale de
discrimination : 0,04 chocs/s,

H. T. de fonctionnement : — 500 V,
capacité : 40 μF ,
hauteur moyenne d'impulsion : 8 mV,
limites d'emploi : de quelques neutrons à
 10^6 n/cm².s.

Cette chambre peut être utilisée dans tous les cas où l'on doit mesurer de faibles flux de neutrons lents, surtout en présence de flux gamma intenses, par exemple pour le contrôle des concentrations de Pu dans une usine d'extraction, ou pour le démarrage des réacteurs.

1958

11 pages

WEILL J., DUCHENE J. P.

Report CEA 870.

Fission ionisation chamber for the measurement of low fluxes of slow neutrons.

Summary. — The ionisation chamber described is designed for the measurement of slow neutron fluxes of average or low intensity, in the presence, eventually, of very high gamma fluxes.

The capture of a slow neutron by a fissile material, in this case ^{235}U , gives rise to fission fragments, high-energy particles which ionise the gas contained in the chamber.

The neutrons are detected by virtue of the potential impulses, on the collecting electrode of the chamber, deriving from the collection of the ions produced by the fission fragments.

The impulses are counted by means of a measuring system consisting of a preamplifier, a 2 Mc amplifier, a discriminator and an electronic scale with numerator or integrator.

The general characteristics are as follows :
sensitivity to neutrons : 0.07 kicks/n/cm².s,
sensitivity to γ rays : zero up to $3 \cdot 10^4$ R/H,
 α background at the normal discrimination
voltage : 0.01 kicks/s,
working H. T. : — 500 V,

capacity : 40 μF ,
average height of impulse : 8 mV,
limits of use : from several neutrons to
 10^6 n/cm².s.

This chamber may be used in all cases where low fluxes of slow neutrons must be measured, especially in the presence of high gamma fluxes, for example in the checking of Pu concentrations in an extraction plant or for the starting up of reactors.

1958

11 pages

- Rapport C.E.A. n° 870 -

Département d'Electronique
Groupement d'Electronique Générale

CHAMBRE D'IONISATION A FISSION POUR LA MESURE
DES FAIBLES FLUX DE NEUTRONS LENTS

par

J. WEILL et J.P. DUCHENE

R.58-1838/SR

- Juillet 1958 -

CHAMBRE D'IONISATION A FISSION POUR LA MESURE DES FAIBLES FLUX DE NEUTRONS LENTS

INTRODUCTION

La chambre à fission présentée ici est destinée à la mesure des flux de neutrons lents d'intensité moyenne ou faible, en présence de rayonnement gamma très élevé.

C'est une chambre d'ionisation à impulsion dans laquelle les neutrons sont détectés grâce à la fission de l'uranium-235 qui donne naissance à des particules ionisantes de grande énergie, les "fragments de fission".

Ces derniers ionisent le gaz contenu dans la chambre et la collection des charges produites, détermine une impulsion de potentiel sur l'électrode collectrice, impulsion qui est amplifiée et enregistrée par un dispositif électronique approprié.

GENERALITES

Les fragments de fission sont des particules lourdes, fortement chargées (environ 20 charges élémentaires au début de leur parcours) et d'une énergie moyenne de l'ordre de 80 MeV).

Ils sont donc particulièrement ionisants et permettent une détection relativement aisée des neutrons.

Toutefois le matériau fissile émet un rayonnement naturel qui peut constituer un bruit de fond gênant.

Les particules alpha sont très ionisantes, celles émises par l'uranium ont une énergie supérieure à 4 MeV.

Cependant la discrimination de deux impulsions provoquées respectivement par un fragment de fission et par une particule alpha qui auraient tout leur parcours dans le gaz de la chambre est très facile.

L'uranium-235 étant introduit dans la chambre sous forme de dépôt, il faudra tenir compte du fait que l'épaisseur du dépôt de matériau fissile doit être réduite à quelques mg/cm^2 de ^{235}U car un F.F.* est totalement absorbé dans $10 \text{ mg}/\text{cm}^2$. Les F.F.* prenant naissance dans l'épaisseur du dépôt auront un parcours plus réduit dans le gaz et par suite une hauteur d'impulsion qui peut être de l'ordre de celle d'une particule alpha émise à la surface du dépôt.

Mais la plus grande difficulté provient des "empilements alpha", c'est-à-dire de la superposition de plusieurs impulsions de particules alpha.

Il peut se produire ainsi des impulsions d'amplitude comparable à celle des impulsions des F.F.*. Ce phénomène dépend bien entendu de l'intensité de l'émission alpha ; négligeables dans l'uranium naturel les empilements alpha deviennent importants dans l'uranium enrichi.

Cependant, il est possible d'éliminer en partie les effets de rayonnements alpha du matériau fissile.

En effet, d'une part les alpha de l'uranium ont un parcours dans l'argon TPN un peu supérieur à celui des F.F.*, d'autre part l'ionisation spécifique ne varie pas de la même façon pour les F.F.* que pour les particules alpha.

L'ionisation spécifique est plus forte au début du parcours des F.F. alors que c'est l'inverse pour les particules alpha.

Donc, pour mieux différencier les F.F.* des particules alpha, il ne faut pas utiliser tout leur parcours dans le gaz de la chambre, mais fixer un intervalle entre les électrodes très inférieur au parcours des particules.

En général on adopte un espace inter-électrode de 4 à 5 mm qui semble optimum lorsque la chambre est remplie d'argon à la pression atmosphérique, cet espace étant inversement proportionnel à la pression du gaz.

Les flux de rayon gamma de grande intensité peuvent aussi constituer un bruit de fond gênant.

Les électrons émis par les rayons gamma dans les matériaux de la chambre ont une densité d'ionisation très faible comparée à celle des F.F. et des particules alpha.

* F.F. : fragment de fission.

Il n'y a pas de problème au sujet de la différenciation des impulsions individuelles dues aux rayons gamma.

Mais dans des flux très intenses il peut se produire des empilements, comme dans le cas des particules alpha.

Pour réduire ce phénomène il convient de ne pas utiliser une pression de remplissage trop élevée.

CARACTERISTIQUES RECHERCHEES

Divers types de chambres à fission à usage industriel ont été décrits [1][2].

Nous avons cherché à réaliser une chambre à fission répondant aux exigences suivantes :

- robustesse, résistance aux chocs et vibrations,
- résistance à la corrosion,
- tenue à des températures de 300 °C,
- encombrement raisonnable,
- simplicité de fabrication,
- faible capacité électrique de manière à obtenir des impulsions de forte amplitude.

Compte tenu de ces exigences, nous avons recherché :

a) Une bonne sensibilité aux neutrons : cette chambre est destinée à la mesure de flux d'intensité moyenne ou faible. Il est donc nécessaire qu'elle soit sensible.

Pour cela, nous avons la possibilité d'augmenter :

- soit la surface sensible,
- soit la densité superficielle du dépôt.

En augmentant la surface sensible, nous augmentons l'encombrement de la chambre et sa capacité électrique, ce qui est contraire au but recherché.

L'accroissement de la densité superficielle du dépôt entraîne une absorption plus importante des F.F. et par suite une perturbation dans les caractéristiques de la chambre.

Il faut donc rechercher un compromis entre ces deux possibilités. Nous avons adopté une surface sensible moyenne et une densité superficielle relativement forte.

b) Une sensibilité minimum aux rayons γ .

C'est là une exigence importante compte tenu du fait que la chambre est appelée à mesurer de faibles flux de neutrons en présence d'une forte activité γ .

Pour cela nous avons adopté comme pression du gaz de remplissage, la pression atmosphérique.

c) L'emploi de matériaux permettant la résistance à la corrosion et la tenue en température.

Les parois sont en acier inox. Si ce métal a une section efficace d'absorption de 0,2 barn il a d'excellentes caractéristiques mécaniques, une bonne tenue au vide, et peut être brasé à l'argent à 550 °C.

A part le verre, les isolants intérieurs à la chambre sont en steatite qui tient à des températures de l'ordre de 1000 °C et possèdent une résistivité de l'ordre de 10^8 M Ω /cm.

CONSTRUCTION

Cette chambre est constituée essentiellement par deux cylindres coaxiaux de 20 et 30 mm de diamètre recouverts sur les faces en regard de matériau fissile.

Ces deux cylindres sont en aluminium d'une part à cause de la faible section efficace de ce métal pour les neutrons, d'autre part pour une question de commodité dans la réalisation de dépôts d'uranium. Ils constituent les électrodes, le cylindre intérieur étant l'électrode collectrice et le cylindre extérieur l'électrode haute tension. Leur longueur est de 120 mm (photo 1).

Ces deux électrodes sont supportées au moyen de pièces isolantes en steatite d'un type standard, par deux plaques de base en duralumin qui sont reliées à la masse de la chambre pour constituer deux anneaux de garde.

Cet ensemble est fixé sur une platine en acier inox qui porte également un passage étanche verre-kovar par lequel se font les sorties d'électrode, terminé par un queusot de pompage en verre.

Les traversées hermétiques sont constituées par des tiges de Kovar, elles-mêmes reliées aux électrodes par des tresses de nickel soudées électriquement.

Le carter en acier inox coiffant les électrodes est brasé sur la platine. Les parois extérieures sont en acier inox pour éviter la corrosion. Les différentes parties ont été brasées par H.F. (photo 2).

DEPOTS DE MATERIAU FISSILE

1° Nature du dépôt.

On utilise de l'uranium enrichi à 46 pour cent en uranium-235. La surface sensible est de 188 cm². La masse superficielle est d'environ 3 mg/cm² de UO₂.

2° Méthode de dépôt.

(voir annexe).

METHODE DE REMPLISSAGE

Après avoir réalisé un vide de 10⁻⁶ mm Hg la chambre subit un pompage de l'ordre de 48 heures avec dégazage à 300 °C.

PURETE DU GAZ DE REMPLISSAGE

Dans les gaz rares parfaitement purs les électrons restent libres. Mais si ces gaz contiennent des impuretés électronégatives : oxygène, chlore, etc., ou de la vapeur d'eau, les électrons ont tendance à se fixer pour donner des ions négatifs complexes dont le mouvement est plus lent que celui des électrons libres.

Ceci nous a amené à utiliser des gaz de remplissage très purs après un dégazage sous vide très soigné.

L'argon utilisé peut être purifié sur du calcium chaud avant remplissage, mais en général on utilise l'argon S qui contient environ 10 mg/m³ de H₂O, 10⁻⁵ d'oxygène, 10⁻³ d'azote.

L'addition d'une faible quantité d'azote présente un double avantage:

a) elle permet de rendre la chambre insensible à une légère contamination

par l'oxygène ($< 0,5$ pour cent) [3] ;

b) elle améliore le temps de transit des électrons, donc le temps de montée des impulsions [4].

La chambre est remplie à la pression atmosphérique avec un mélange de 96 pour cent argon et 4 pour cent azote.

FONCTIONNEMENT (fig. 1).

La chambre fait partie d'une chaîne de mesure comprenant : préampli et ampli 2 MHz, discriminateur, échelle avec numérateur et haute tension.

Avec un gain déterminé, l'électrode HT étant à la masse, on mesure d'abord le bruit de fond de l'appareillage en fonction du seuil de discrimination (courbe A).

Ensuite, la chambre étant alimentée en HT, on trace la courbe des empilements alpha (courbe B).

Enfin en exposant la chambre à une source de neutrons on obtient la courbe de discrimination C, dont le début correspond aux signaux parasites et décroît très vite ; la partie moyenne constitue le palier où le seuil de discrimination est au-dessus des signaux parasites et au-dessus de l'amplitude des petites impulsions de neutrons ; la courbe se termine par une partie plongeante correspondant aux grandes impulsions.

Sur le palier le taux de comptage est en principe indépendant du seuil de discrimination et correspond au nombre de neutrons capturés.

En fait, le palier présente une pente.

Le point de fonctionnement de la chambre est choisi sur le palier à une valeur du seuil qui dépend du taux d'empilement alpha que l'on peut tolérer.

CARACTERISTIQUES DE LA CHAMBRE

CARACTERISTIQUES DE L'IMPULSION

Nous avons mesuré les hauteurs d'impulsion à la sortie de la chambre dont la capacité est de l'ordre de 40 p. F..

Les amplitudes sont comprises entre 5 et 12 mV. Le temps de montée est d'environ de 0,3 - 0,4 microseconde. La chambre est, en général utilisée avec un gain total de 72 000.

EMISSION ALPHA DU DEPOT

Le rayonnement alpha du dépôt est dû aux trois isotopes de l'uranium.

^{238}U de période $4,5 \cdot 10^9$ ans
 ^{235}U de période $7,10^8$ ans
 ^{234}U de période $2,69 \cdot 10^5$ ans

Comme cet uranium est enrichi, l'émission α est surtout due à ^{234}U et ^{235}U .

L'uranium contenu dans la chambre émet un total d'environ $1,3 \cdot 10^5$ particules alpha par seconde dans l'angle 2π .

La probabilité d'avoir un empilement alpha du nième ordre est donnée par la formule suivante (ROSSI et STAUB [5]) :

$$C(n) = \frac{n_0}{1 + n_0 \tau} \frac{(n_0 \tau)^{n-1}}{(n-1)!} e^{-n_0 \tau}$$

où n_0 est le nombre de particules émises dans l'ampli 2 par unité de temps, et τ le temps de résolution.

La figure 2 donne pour diverses valeurs de τ le nombre théorique d'empilements calculé d'après la formule ci-dessus.

Expérimentalement, pour un seuil de discrimination de 40 volts, point de fonctionnement habituellement choisi pour la chambre, on compte en moyenne moins de 0,01 empilement par seconde.

SENSIBILITE AUX NEUTRONS

Le nombre de fissions théoriques nous est donné par la formule suivante en supposant que le flux n'est pas atténué dans la traversée du dépôt :

$$N_F = \sigma_f \frac{N_0}{A} m S F$$

où σ_f est la section efficace de fission,
A " la masse atomique,
m " la masse/cm² de ²³⁵U,
S " la surface du dépôt,
F " le flux de neutrons,

ce qui donne dans notre cas environ 3.10^{-1} fission par n/cm²/s.

Nous avons établi la sensibilité de la chambre au neutrons en utilisant une source de Ra-Be entourée de paraffine donnant un flux de neutrons lents de $2,5.10^3$ n/cm²/s.

La sensibilité de la chambre ainsi déterminée est de l'ordre de 0,07 choc n/cm²/s.

COURBE DE SATURATION (fig. 3).

La courbe ci-contre montre que le taux de comptage de la chambre ne change pas lorsque l'on fait varier la différence de potentiel appliquée à la chambre de 300 volts à 1000 volts.

SENSIBILITE AUX RAYONS GAMMA

La sensibilité aux rayonnements gamma n'a pu être étudiée dans un flux supérieur à 3×10^4 R/H.

Elle était nulle dans ces limites.

TENUE EN TEMPERATURE

La chambre a été soumise à une épreuve de vieillissement d'une durée de 300 heures à 300 °C.

Aucune perturbation n'a été constatée aussi bien dans la sensibilité aux neutrons, que dans la longueur et la pente du palier de la courbe de discrimination.

A N N E X E

DEPOT D'URANIUM ENRICHI POUR CHAMBRES A FISSION

I - PRINCIPE

L'uranium à 46 pour cent de ^{235}U est déposé, sous forme de UO_2 , par électrolyse d'une solution de nitrate d'uranyle, tamponnée par l'oxalate d'ammonium [6].

L'épaisseur du dépôt d' UO_2 obtenue par cette méthode peut atteindre 3 mg/cm^2 et l'adhérence à cette épaisseur est encore satisfaisante.

II - COMPOSITION DE L'ELECTROLYTE

Uranium (sous forme de nitrate d'uranyle $(\text{NO}_3)_2 \text{UO}_2 \cdot 6 \text{H}_2\text{O}$ 0,02 M ou 5 g/l.

Oxalate d'ammonium 0,2 M ou 28 g/l

Eau distillée : 1 litre

PH maintenu à 8 par addition d'ammoniaque.

III - CONDITIONS DE TRAVAIL

Le bain est maintenu à une température comprise entre 80 et 90 °C. La densité de courant est fixée à 3 A/dm^2 . Le poids du dépôt est environ de 3 mg/cm^2 à l'heure.

IV - PREPARATION DES PIECES

L'aluminium est le métal sur lequel les dépôts se font le plus facilement à condition que la préparation du métal soit parfaitement exécutée.

Le métal doit être décapé pour éliminer l'alumine et le dépôt doit suivre immédiatement le décapage pour éviter la formation de l'alumine.

Le procédé de décapage le plus efficace est le sablage sous voie humide. Le sablage sera suivi d'un rinçage à l'eau courante pour éliminer les grains de sable.

V - DISPOSITION DES PIÈCES PAR RAPPORT A L'ANODE

L'anode est en graphite et sa forme est semblable à celle de la pièce disposée verticalement dans le bain. Par exemple un tube à recouvrir extérieurement sera introduit à l'intérieur d'un cylindre taillé dans un bloc de graphite.

La distance anode-cathode sera environ 1 cm et on aura intérêt à avoir un rapport anode-cathode 1.

Il est très important de ne pas agiter le bain. Après électrolyse, les pièces seront lavées à l'eau distillée et séchées en étuve ou aux rayons infra rouges.

VI - ENTRETIEN DE LA SOLUTION

Le niveau du bain doit être maintenu constant par addition d'eau distillée. Le pH est à surveiller et doit être maintenu à 8 par addition d'ammoniaque. Le bain change de couleur au cours de l'électrolyse. De jaune clair il devient brun.

On peut avoir formation de UO_2 noir si la tension aux bornes du bain est trop élevée.

On peut également avoir formation de boues noires dues à la décomposition de l'anode de graphite si celle-ci est mal agglomérée.

VII - RENDEMENT

Avec 1 litre de solution il est possible de couvrir une surface de 10 dm².

On ne peut plus faire d'électrolyse en dessous d'une concentration de 1 g d'uranium/l.

On n'a pas intérêt à enrichir la solution en nitrate d'uranyle car la qualité du dépôt diminue avec l'augmentation des impuretés (alumine, etc.).

VIII - RECUPERATION DE L'URANIUM

L'uranium-235 est récupéré par solubilité fractionnée au moyen d'hexone (méthylisobutyl cétone). La méthode est basée sur la différence de solubilité de l'uranium et des impuretés, dans l'hexone en présence de nitrate de magnésium. Les impuretés restent en solution; l'hexone ayant à son tour plus d'affinité pour l'uranium que le nitrate de magnésium, débarasse celui-ci de tout l'uranium dissous.

L'hexone est ensuite lavée à l'eau distillée qui entraîne l'uranium. Trois ou quatre lavages suffisent pour extraire tout le nitrate d'uranyle que l'on amènera ensuite à cristallisation.

BIBLIOGRAPHIE

- [1] AVES R., BARNES D., MAC KENZIC R.B.,
J. Nuclear Energy 1954, vol. 1, 110-116
- [2] BAER W., BAYARD R.T.,
The Review of Scient. Inst. 1954,
vol. 24 n° 2, 138-140
- [3] FACCHINI U., MALVICINI A.,
Nucleonics, 1955 avril
- [4] EUGLISCH W.V., HANAU G.G.,
Canad. J. Phys., 1953, july, 31768 - 798
- [5] ROSSI B., STAUB H.,
Ionization chambers and counters p. 204
- [6] Mme KOCH,
J. Nuclear Energy, 1955, 2, 110-111

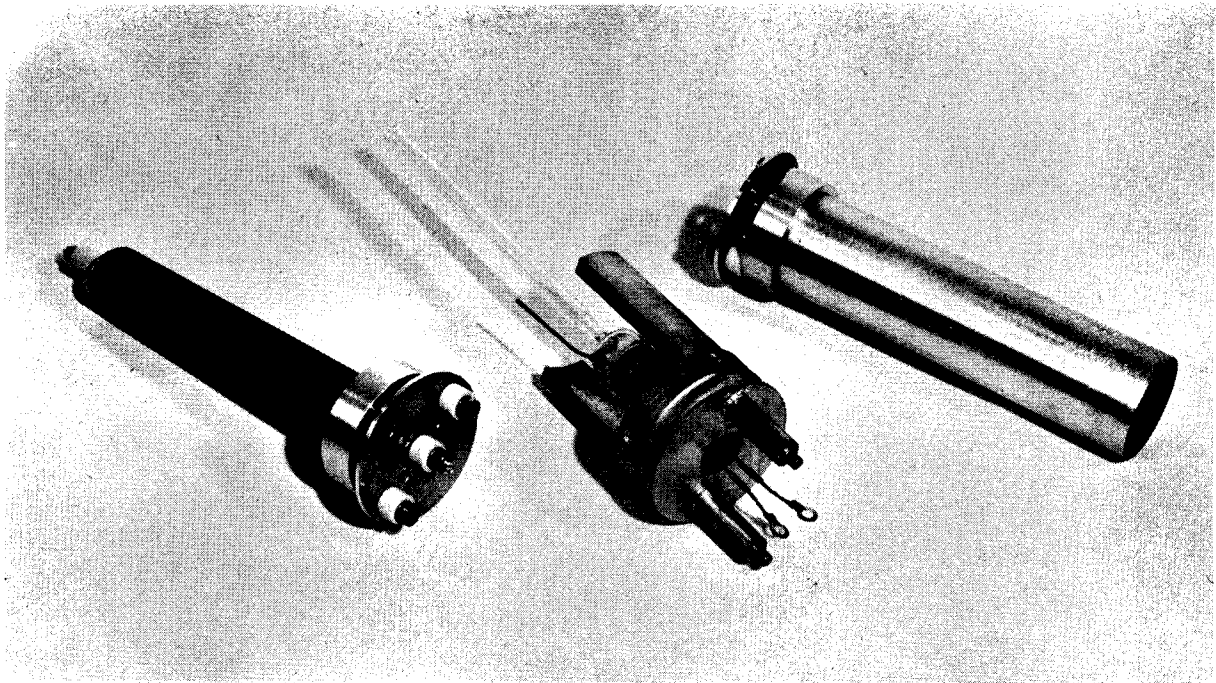


Photo 1
Electrodes démontées de la chambre à fission

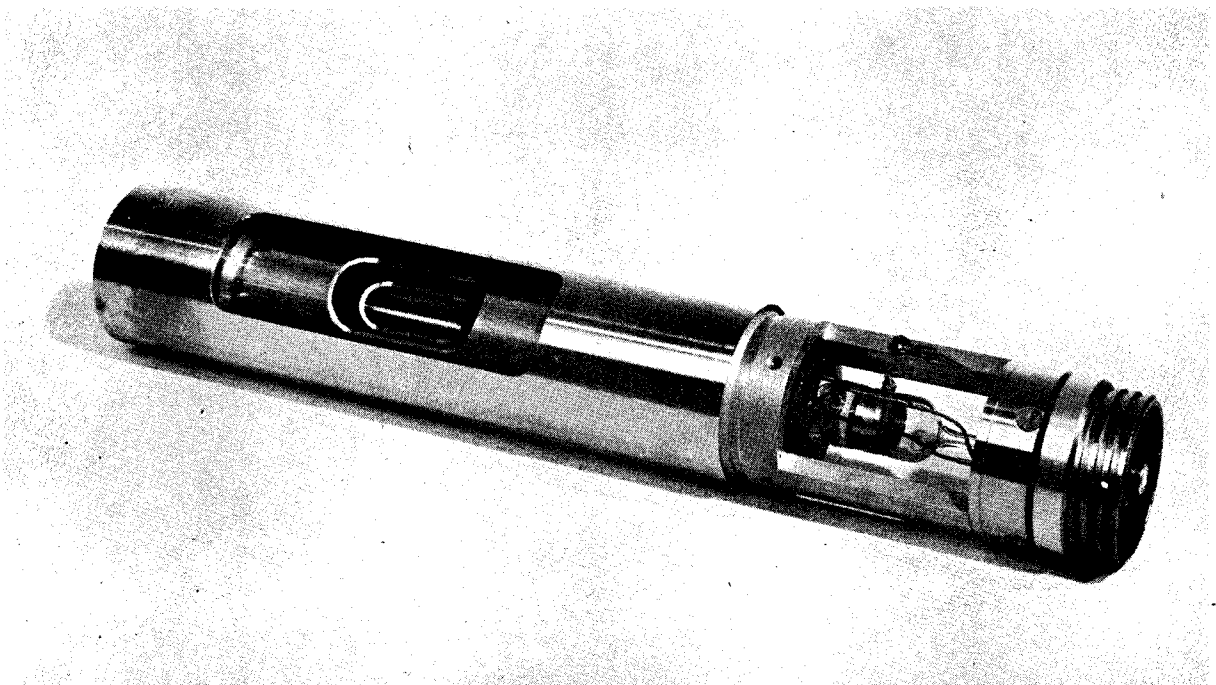
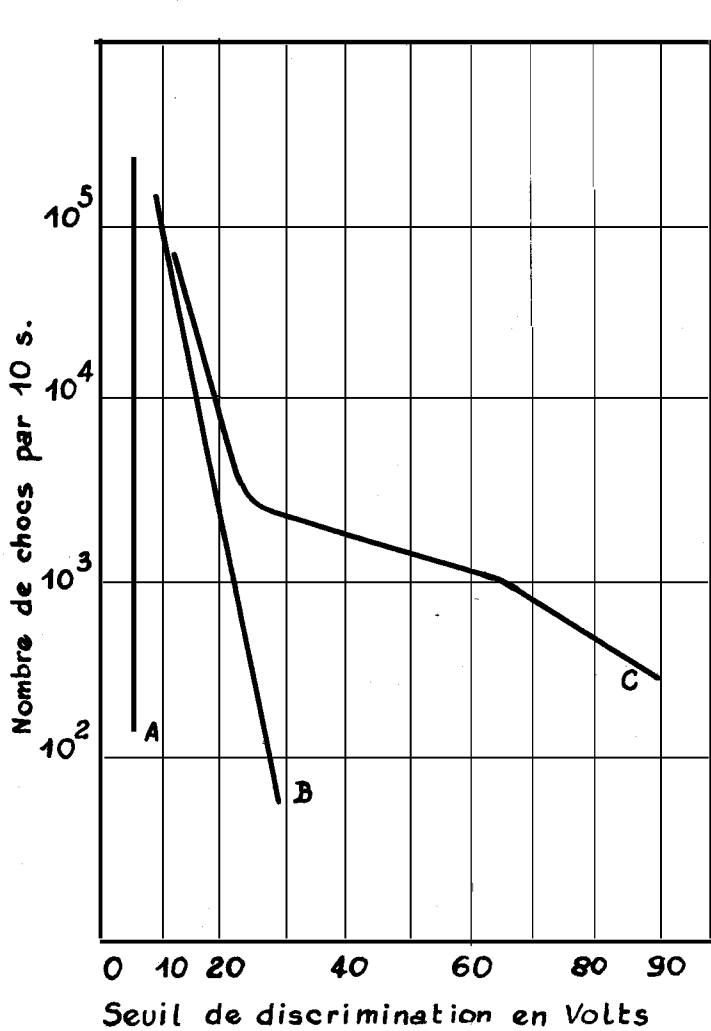


Photo 2
Chambre montée avec ouverture montrant la disposition interne



- Fig. 1 -

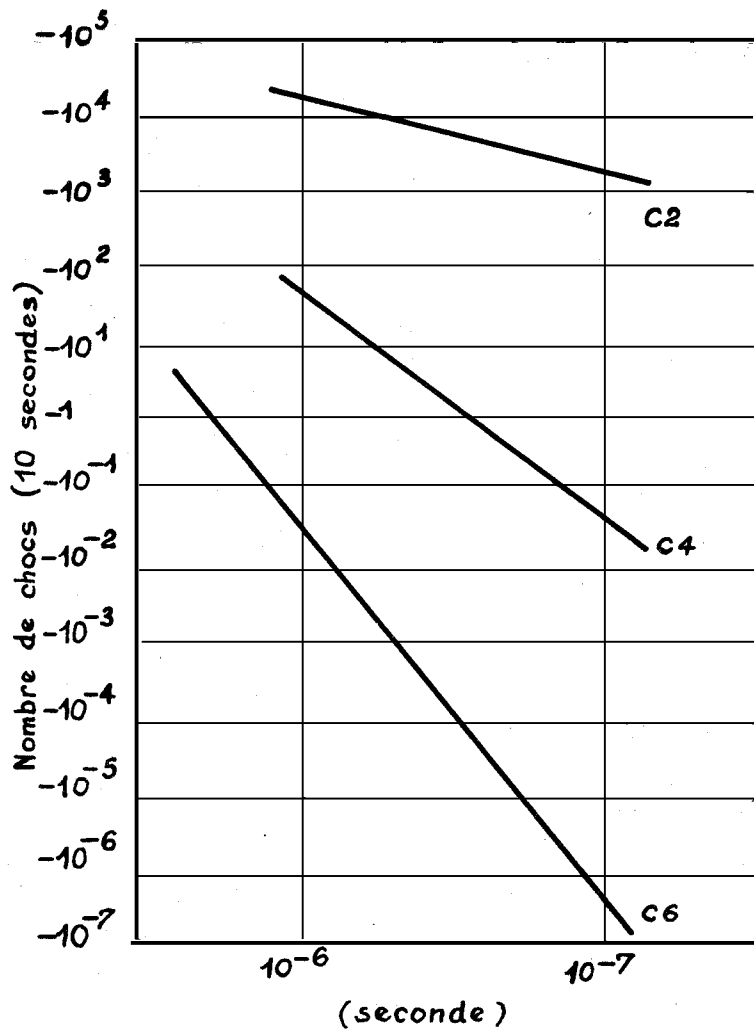
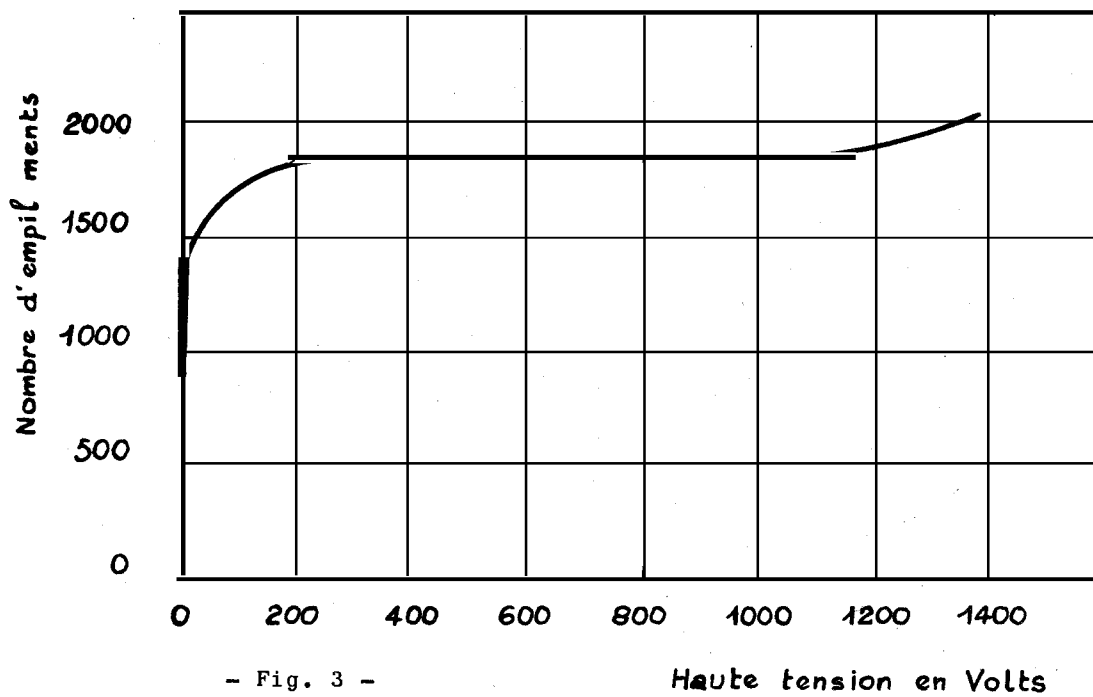


Fig. 2 -



- Fig. 3 -