LES COMPTEURS PROPORTIONNELS ET LEUR UTILISATION EN RADIOPROTECTION

TROISIÈME PARTIE

4 - UTILISATION DES COMPTEURS PROPORTIONNELS A LA DÉTECTION DU TRITIUM

L. FITOUSSI*

(manuscrit reçu le 15 décembre 1966)

RÉSUMÉ

Les compteurs proportionnels peuvent être utilisés en radioprotection pour la détection du tritium. Cet emploi très particulier permet de résoudre sélectivement le problème de la détection du tritium soulevé par un usage industriel ou médical qui tend à se répandre et l'existence de concentrations élevées telles qu'elles existent auprès des piles à eau lourde.

Après avoir précisé les caractéristiques technologiques des compteurs proportionnels conçus pour la détection du tritium, caractéristiques géométriques, gaz de remplissage, sensibilité de détection, des considérations pratiques d'utilisation sont présentées. En effet, les mesures peuvent être effectuées par deux méthodes différentes :

- la méthode statique qui procède par échantillonnage et mesures périodiques,
- la méthode dynamique qui permet des mesures continues.

Bien que le tritium soit parmi les radionucléides qui présentent les radio-toxicités les plus faibles, il peut exister et être manipulé en quantité très importante dans certains laboratoires et dans les piles à eau lourde.

L'importance biologique qui le caractérise en tant que constituant intime possible de la cellule humaine et des produits de ses diverses manifestations, nécessite les mesures de radioprotection qui sont prises à son égard. En particulier, il est indispensable de pouvoir le détecter qualitativement et quantitativement dans les différents milieux où il peut se propager.

Son mode de désintégration par l'émission d'une particule β de faible énergie (18 keV) implique l'emploi de techniques appropriées de détection. Celles-ci ont trouvé, en particulier, avec les compteurs proportionnels les méthodes les plus intéressantes tant du point de vue de la sensibilité et de la sélectivité que du domaine de la simplicité de mise en œuvre.

* Service de Protection contre les radiations, Centre d'Etudes Nucléaires de Saclay, B.P. n° 2 (91) Gif-sur-Yvette.

Ainsi les compteurs proportionnels permettent de mesurer l'activité d'un échantillon de tritium gazeux directement incorporé au gaz de comptage. L'utilisation de cette technique permet dans certaines conditions de mesure, de détecter des concentrations atomiques de tritium dans l'hydrogène pouvant atteindre 10^{-16} , soit 10^2 unités tritium. (Une unité tritium correspond à une concentration atomique $\frac{T}{H}$ égale à 10^{-18} .) Cette grande sensibilité a permis des applications nombreuses tant en biologie qu'en géophysique [71].

Les compteurs proportionnels pour la détection du tritium ont été réalisés, soit pour des *mesures statiques* (remplissage puis comptage), soit pour des *mesures dynamiques* en circulation continue.

4.1. CARACTÉRISTIQUES GÉOMÉTRIQUES

Il existe de nombreux modes possibles de réalisation de compteurs proportionnels à remplissage [3] [72] [73]. Toutes les études entreprises dans ce domaine aboutissent au même résultat en préconisant une géométrie cylindrique avec un rapport $\frac{\text{longueur}}{\text{diamètre}}$ suffisamment grand pour atténuer les effets de bouts. Cette géométrie permet d'avoir un compteur dont le volume utile est sensiblement égal au volume effectif.

Les matériaux de paroi doivent être choisis parmi ceux qui se contaminent le moins, c'est-à-dire qui présentent le moins de phénomènes d'adsorption. Parmi ces matériaux, l'acier inoxydable poli présente d'excellents résultats.

La nature du fil n'a pas d'influence sur l'allure de la courbe donnant le taux de comptage en fonction de la haute tension appliquée si le diamètre de ce fil est constant et sa surface peu rugueuse. Un filament en molybdène d'un diamètre moyen de 0,04 à 0,05 mm, peut être préconisé [72] [73].

4.2. GAZ DE REMPLISSAGE

4.2.1. NATURE DU GAZ DE REMPLISSAGE

Comme dans la plupart des mesures de tritium, il s'agit de déterminer l'activité d'un échantillon d'eau tritiée. La technique la plus simple serait d'introduire directement dans le compteur la vapeur d'eau ou l'hydrogène provenant de sa décomposition, mais ces gaz ne permettent pas un fonctionnement correct du compteur.

D'autre part, lorsque l'on désire déterminer le spectre β du tritium, il est nécessaire que le gaz de comptage utilisé présente un pouvoir d'amplification indépendant de l'énergie primaire des particules à détecter.

Parmi les gaz qui conviennent le mieux, figurent le méthane pur [72] ou le mélange argon-méthane [73]. L'hydrogène pur a aussi été utilisé [74]. Toutefois, compte tenu des risques d'explosion que présentent le méthane et l'hydrogène utilisés purs, il est préférable d'employer le mélange « argon-méthane ».

4.2.2. INTRODUCTION DE L'HYDROGÈNE TRITIÉ DANS LE COMPTEUR

Le tritium gazeux (sous forme HT - DT ou T₂) est introduit directement dans le compteur.

Le tritium sous forme d'eau tritiée (HTO - DTO ou T₂O) est introduit sous forme gazeuse après décomposition de l'eau. Les méthodes les plus courantes sont celles qui permettent d'obtenir le tritium sous forme de l'un de ces gaz [71] à [78].

— *Hydrogène tritié* : décomposition de l'eau par Mg, Ca ou Zn.

— *Acétylène tritié* : décomposition de l'eau par C₂ Ca.

— *Méthane tritié* : décomposition de l'eau par C₃ Al₄.

4.2.3. PRESSION DE REMPLISSAGE

Au paragraphe 1.1, il est dit que le « coefficient de multiplication » augmente lorsque la pression de remplissage diminue. Cependant, l'expérience montre que le palier HT disparaît pour une pression inférieure à 270 mbars et qu'il est préférable, suivant les conditions de mesure, de choisir une pression de remplissage comprise entre 530 et 1013 mbars. Dans cet intervalle de pression, la longueur du palier HT varie de 200 à 450 V et la pente est de l'ordre de 2,5 à 3 % [73].

4.3. SENSIBILITÉ DE DÉTECTION [73]

4.3.1. VOLUME UTILE ET RENDEMENT DE DÉTECTION

En principe, dans ce type de compteur, chaque désintégration est comptée. En fait, ceci n'est vrai que si cette désintégration apparaît dans le volume utile du compteur. A la périphérie de ce volume utile, les phénomènes sont plus complexes : des particules peuvent s'échapper sans avoir été comptées, seules sont détectées les particules abandonnant dans le volume utile, l'énergie suffisante pour pouvoir être décelée (cette énergie correspond à l'énergie seuil).

Arbitrairement, on peut définir le volume utile comme le volume du compteur ou chaque désintégration donne lieu à un comptage. Dans ce volume, le rendement de détection est alors de 100 %.

L'étalonnage consiste, en conséquence, à déterminer le volume utile qui est une fraction du volume effectif du compteur. Cette fraction devant être aussi grande que possible. Pour cet étalonnage, on introduit dans le compteur une quantité connue de tritium gazeux et on détermine le volume utile en comparant le comptage vrai au comptage théorique.

$$V_{\text{utile}} = V_{\text{effectif}} \cdot \frac{\text{comptage vrai}}{\text{comptage théorique}}$$

En d'autres termes, le rendement de détection a pour expression :

$$R = \frac{V_{\text{utile}}}{V_{\text{effectif}}}$$

4.3.2. SENSIBILITÉ DE DÉTECTION

Le fonctionnement du compteur rempli avec le mélange « argon-méthane » est possible avec une proportion maximale d'hydrogène de 30 % du volume du gaz de comptage.

Une activité de 1 nCi de tritium présente dans le volume utile du compteur, donne un taux de comptage de 37 impulsions par seconde.

Une activité volumique de 1 nCi/cm³ d'hydrogène tritié correspond à 3,8.10⁸ unités tritium.

Un compteur proportionnel d'un volume utile de 100 cm³ rempli à 30 % d'hydrogène tritié d'une activité volumique de 1 nCi/cm³, soit 3,8.10⁸ unités tritium, présente un taux de comptage de 1 110 impulsions par seconde. Il en résulte, dans ces conditions, qu'un taux de comptage de 1 impulsion par seconde correspond à 0,9 pCi/cm³ d'hydrogène tritié, soit 3,4.10⁵ unités tritium.

4.4. CONSIDÉRATIONS PRATIQUES : contrôle de la contamination atmosphérique par le tritium

4.4.1. MESURES STATIQUES [78]

Ces mesures peuvent être effectuées de manière sélective et absolue en prélevant, à l'aide d'un piège froid, de la vapeur d'eau atmosphérique que l'on traitera pour dégager le tritium sous forme gazeuse. Ce tritium gazeux associé à un gaz de comptage approprié est introduit dans le compteur proportionnel.

Le mode opératoire le plus simple consiste à réduire, à la température ordinaire, l'eau tritiée à l'aide de calcium selon la réaction suivante :

Dans le montage expérimental (fig. 24), l'eau provenant du prélèvement de vapeur d'eau atmosphérique est versée lentement sur un excès de tournure de calcium placée dans un pot à réaction où le vide a été fait au préalable. L'hydrogène tritié qui se dégage se trouve mélangé dans le pot à réaction à de la vapeur d'eau produite par l'élévation de température due à la réaction chimique qui est exothermique, et à d'autres gaz tels que l'azote, l'oxygène, le CO₂, etc., éventuellement dissous dans l'eau du prélèvement. Une purification de cet hydrogène tritié est donc nécessaire, celle-ci est effectuée en trois étapes :

- Elimination de la majeure partie de la vapeur d'eau à l'aide d'un pot contenant du silicagel.

- Elimination des gaz liquéfiables et de la vapeur d'eau résiduelle à l'aide d'un tube en U placé dans un vase Dewar contenant de l'azote liquide. Ce tube en U est rempli de billes de verre pour accroître la surface de contact.

- Elimination des traces résiduelles de gaz autres que l'hydrogène par l'emploi d'un tamis moléculaire.

FIG. 24 — Banc de remplissage [78]

Légende : 1 Eau titrée à doser — 2 Tournure de calcium — 3 Pot à réaction — 4 Desséchant (silica-gel)
 5 Piège froid — 6 Vase Dewar (azote liquide) — 7 Tamis moléculaire — 8 Manchon chauffant régulé
 9 Pompe à vide — 10 Gaz de remplissage — 11 Manovacuumètre — 12 Compteur proportionnel à remplir.

Notons que l'hydrogène se dégage préférentiellement au tritium. Consécutivement à cet effet de sélection isotopique, nous avons constaté que la fraction du tritium qui se dégageait était de l'ordre de 55 %.

La sensibilité de cette technique est très grande. Pour une contamination atmosphérique de 10^{-6} Ci/m³, l'activité de l'eau tritiée prélevée est de 10^{-7} Ci/cm³ en supposant une humidité absolue de 10 g/m³ correspondant à une humidité relative de l'ordre de 50 % à 20 °C. La réduction de cette eau tritiée par la tournure de calcium conduit à de l'hydrogène tritié dont l'activité volumique est de $4,5 \cdot 10^{-11}$ Ci/cm³, compte tenu de l'effet isotopique.

Le taux de comptage obtenu avec un compteur proportionnel de 100 cm³ de volume utile contenant 30 % d'hydrogène tritié dans le gaz de remplissage est de 50 impulsions par seconde.

Dans ces conditions, une impulsion par seconde correspond à $2 \cdot 10^{-8}$ Ci/m³ (soit $4 \cdot 10^{-3}$ CMA) et le seuil de sensibilité est de l'ordre de $3,6 \cdot 10^{-9}$ Ci/m³, soit environ 10^5 unités tritium.

4.4.2. MESURES DYNAMIQUES

La méthode a été développée par H. KIEFER et R. MAUSHART [79]. Elle consiste à faire circuler en continu dans un compteur proportionnel un mélange de l'air à contrôler et du gaz de comptage dans une proportion donnée. Dans le montage réalisé par ces auteurs, le compteur de forme parallélépipédique, est placé entre deux compteurs de garde permettant d'éliminer par anticoincidence les comptages parasites dus soit aux particules β de grande énergie, soit au rayonnement γ ambiant (fig. 25). Ces trois compteurs sont solidaires et sont séparés électriquement par des grilles.

FIG. 25

L'utilisation des grilles de séparation permet d'une part, de balayer tout le volume des trois compteurs par le mélange air-gaz de comptage et, d'autre part, de rendre possible les coïncidences dues aux particules β d'énergie élevée entre le compteur de mesure et les compteurs latéraux. Compte tenu du faible parcours des particules β du tritium (7 mm) celles-ci perdent toute leur énergie dans le compteur de mesure. L'indication fournie par l'électronique de comptage représente donc une information sélective de l'activité du tritium.

Le mélange utilisé contient un volume d'air pour trois volumes de méthane et permet des mesures avec une sensibilité correspondant à 10^{-8} Ci/m³.

FIG. 26

Cette technique a été reprise industriellement par F. BERTHOLD [80] qui a réalisé un compteur cylindrique entouré par un compteur de garde coaxial (fig. 26). Cette configuration plus rationnelle a permis de diminuer d'une part, le mouvement propre de l'ensemble et, d'autre part, ce qui est appréciable, la consommation de gaz de comptage inconvénient majeur pour ce type d'appareillage. L'auteur indique une sensibilité de 10^{-7} Ci/m³ très largement suffisante pour les contrôles de radioprotection, sachant que la contamination maximale admissible pour la vapeur d'eau tritiée est de $5 \cdot 10^{-6}$ Ci/m³.

Notons cependant que pour des taux de contamination élevée, la présence de tritium dans le compteur de mesure et les compteurs de garde peut donner lieu à des comptages en coïncidence qui vont conduire à une sous-estimation de l'activité volumique réelle. Il faudra donc, soit concevoir une électronique de comptage plus élaborée tenant compte de ces coïncidences fortuites, soit introduire des facteurs correctifs en fonction du taux de comptage obtenu, ce qui semble tout à fait possible ou du moins la solution la plus économique.

BIBLIOGRAPHIE

- [71] LE PAPE M., EMMANUEL H. — Méthodes de détection et de mesure du tritium et de ses composés. *Bibliographie* n° 38 - CEA (1963).
- [72] SPERNOL A., DENECKE B. — Mesure absolue de précision de l'activité du tritium. *International J. Appl. Rad. Isotopes* G.B., 1964, 15-4.
- [73] FITOUSSI L. — Etude et réalisation de compteurs proportionnels à circulation pour la détection et la mesure de l'activité du tritium (rapport à paraître).
- [74] TAKAHASHI T., HAMADA T., YAMASAKI F. — An externally quenched hydrogen counter for low level tritium measurements. *Nuclear Instruments and Methods*, 35 p., 120-124 (1965).
- [75] FINKELSTEIN A. et LESIMPLE M. — Le dosage du tritium dans l'eau tritiée. *J. Nuclear Energy*, vol. 2, 101-109 (1955).
- [76] Détection du tritium et emploi en physique et en biologie. *Symposium de Vienne* du 3 au 10 mai 1961. Actes du Symposium publiés par A.I.E.A.
- [77] AIVAZOV B.V., NEIMAN M.B. — Le tritium : Isotope radioactif de l'hydrogène - découverte du tritium et ses procédés d'obtention. *Usp. Fiz. Nauk S.S.S.R.* 36, 145-180 (1948).
- [78] FITOUSSI L. — Dosimétrie de la vapeur d'eau tritiée auprès des piles à eau lourde. Communication présentée au « symposium sur la protection contre les dangers d'irradiation par le tritium ». Le Vésinet 16 au 18 avril 1964.
- [79] KIEFER H., MAUSHART R. — Détection continue du tritium. Séminaire sur la protection contre les dangers du tritium. Le Vésinet 16-18 avril 1964.
- [80] BERTHOLD F. — *Radiation protection instrumentation for hot cells and reprocessing plants*. Nuclex 66. Bâle 8-14 septembre 1965.