

DANIEL BLANC

JACQUES BOURRIEU

Réalisation et étude de compteurs de Geiger-Müller remplis de vapeur pure de mercure, fonctionnant à températures élevées

Annales de la faculté des sciences de Toulouse 4^e série, tome 26 (1962), p. 83-97

http://www.numdam.org/item?id=AFST_1962_4_26_83_0

© Université Paul Sabatier, 1962, tous droits réservés.

L'accès aux archives de la revue « Annales de la faculté des sciences de Toulouse » (<http://picard.ups-tlse.fr/~annales/>) implique l'accord avec les conditions générales d'utilisation (<http://www.numdam.org/conditions>). Toute utilisation commerciale ou impression systématique est constitutive d'une infraction pénale. Toute copie ou impression de ce fichier doit contenir la présente mention de copyright.

NUMDAM

Article numérisé dans le cadre du programme
Numérisation de documents anciens mathématiques
<http://www.numdam.org/>

Réalisation et étude de compteurs de Geiger-Müller remplis de vapeur pure de mercure, fonctionnant à températures élevées

par

MM. Daniel BLANC et Jacques BOURRIEAU

Centre de Physique Nucléaire

Des compteurs à cylindre de verre et couche conductrice externe, remplis de vapeur saturante de mercure, ont été étudiés entre 200° C et 400° C. Ils ont toutes les caractéristiques de détecteurs autocoqueurs et leur efficacité pour les photons γ du ^{60}Co est presque égale à celle d'un remplissage classique (argon + vapeur organique). De la mesure du temps de restitution, on déduit que la mobilité des ions positifs est de $1,75 \text{ cm}^2 \text{ s}^{-1} \text{ V}^{-1}$; des ions Hg_2^+ et Hg_3^+ semblent se former dans la décharge. Le caractère autocoqueur des détecteurs est attribuable à une émission photo-électrique très faible depuis la paroi interne du cylindre de verre.

INTRODUCTION

L'étude, au moyen de radioéléments, de certains problèmes industriels [1], nous a conduit à envisager la réalisation de détecteurs de rayons γ capables de fonctionner à des températures relativement élevées (entre 250° C et 400° C) De tels détecteurs seraient aussi utilisables autour de la partie active des réacteurs nucléaires [2], comme dans d'autres applications des radioéléments.

Leur fragilité ne permet pas de songer aux scintillateurs [3]. Certains compteurs proportionnels remplis de gaz permanents ont été utilisés jusqu'à 500° C [5], mais leur fonctionnement est délicat et ils ne peuvent convenir autour des chaudières industrielles que nous avons à étudier [1.]

Nous nous sommes donc fixés de construire des compteurs de Geiger-Müller. Aucun détecteur contenant une vapeur organique, ou un halogène, ne fonctionne correctement au-dessus de 200° C [4]. Les compteurs à parois de verre et graphitage externe contenant une vapeur organique sont un peu plus stables, mais deviennent inutilisables au-dessus de 250° C [6]. Les compteurs à cathode métallique remplis de gaz mono ou diatomiques (argon, xénon, oxygène ou azote) conviennent jusqu'à 150° C; au-dessus, apparaissent des phénomènes parasites [7].

Ce qui précède, montre que le problème était difficile. Cependant, MOLJK, DREVER et CURRAN [5] étaient parvenus à faire fonctionner, en régime proportionnel, des compteurs à parois de verre et couche conductrice externe remplis d'un mélange d'argon et d'anhydride carbonique jusqu'à 450° C dans une enveloppe de pyrex, jusqu'à 800° C dans le cas d'une enveloppe de quartz; l'émission thermoionique depuis la cathode ne produisait d'impulsions parasites qu'au-dessus de 770° C; les effets de la résistance transversale du cylindre de quartz devenaient négligeables au-dessus de 180° C.

D'autre part, C. W. MAC CUTCHEN [8] a obtenu des résultats très intéressants, toujours en régime proportionnel, sur des compteurs à parois de verre remplis de vapeur saturante de mercure. Le verre Kodial utilisé possède une faible résistivité à haute température, et aucune couche conductrice externe n'était nécessaire : l'isolement de l'anode était assuré par des passages de porcelaine. Le fonctionnement est correct jusqu'à 350° C.

Bien que l'utilisation de la région de proportionnalité soit favorable, puisqu'on élimine par sélection d'amplitude les impulsions parasites venant de l'effet thermoionique sur le cylindre, nous avons décidé de construire des compteurs à coque de verre remplis de mercure pur et d'étudier leur fonctionnement dans la zone de résolution. L'emploi du verre offre de nombreux avantages : simplicité de fabrication, pas d'amalgamation, faible émission thermoionique et effets secondaires limités, les photons UV créés sur la cathode pénétrant en profondeur dans le verre [9, 10].

DÉTECTEURS UTILISÉS

Nous avons employé des verres de natures différentes, pour les diverses zones de température; la figure 1 présente la variation de la résistivité de ces verres en fonction de la température. Afin que la résistance transversale du cylindre de verre conduise à un fonctionnement satisfaisant, il faut employer :

- le verre Novo (verreries de Choisy-le-Roi) de la température ambiante à 200°C,
- le verre MO₂A de 150 ° C à 250° C,
- le verre Sovirel 1723 (aluminosilicate) de 250° C à 400° C.

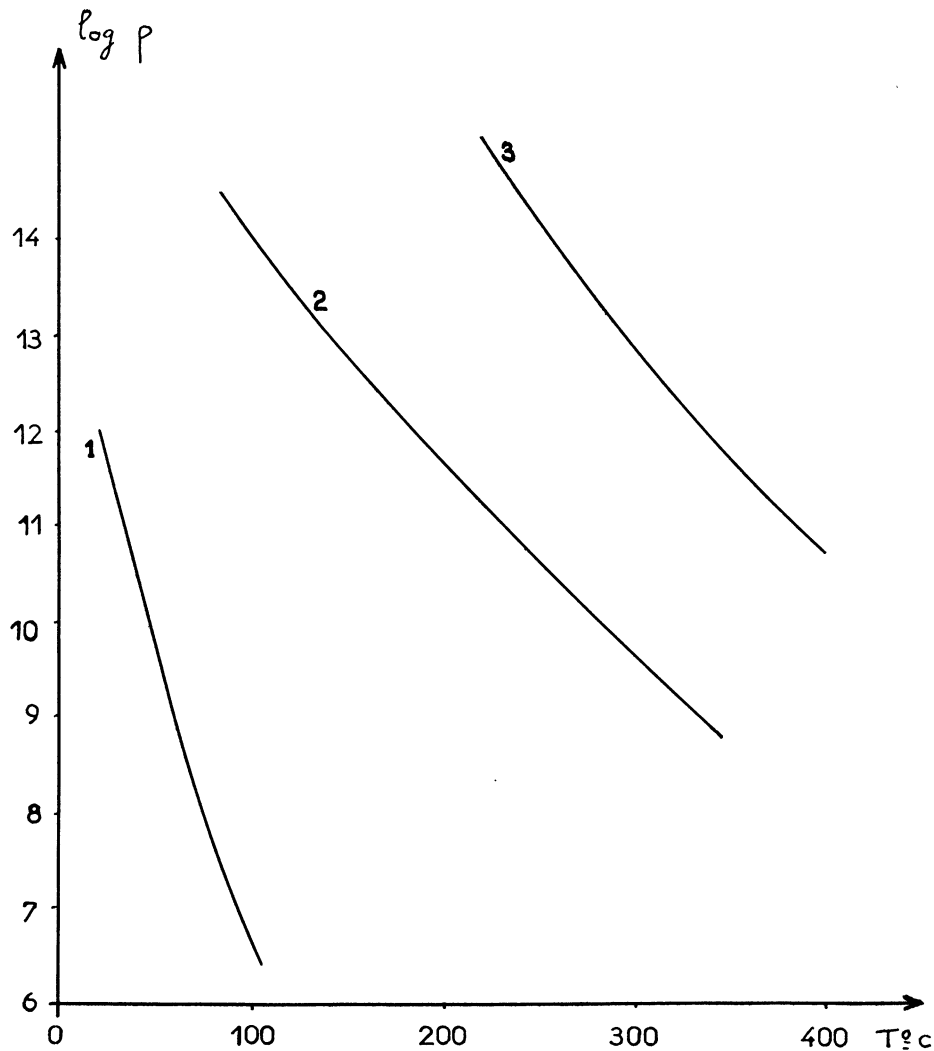


Fig. 1. — Variation de la résistivité ($\text{ohm} \times \text{cm}$) des verres utilisés, en fonction de la température (1) — Novo, (2) MO₂A, (3) Aluminosilicate.

Les compteurs ont 2 cm de diamètre intérieur et une longueur voisine de 20 cm; ils sont schématisés sur la figure 2 : le queusot terminal, solidaire d'une ampoule de distillation remplie de mercure, est coupé en [2] après le remplissage. Pour le verre Novo, les passages anodiques sont des tiges de tungstène de 0,5 mm de diamètre, le copperclad utilisé habituellement donnant un amalgame. Pour les compteurs en MO_2A et en Sovirel 1723, le passage est en molybdène; afin d'éviter la condensation, dans le détecteur, des vapeurs de molybdène qui se dégagent au moment de la soudure du passage, le molybdène est lié à un fil de Dever — P, lui-même soudé au ressort de tungstène qui termine le fil de W (0,1 mm de diamètre). On enrobe complètement dans du verre le passage de molybdène, ce qui évite toute condensation sur les parois.

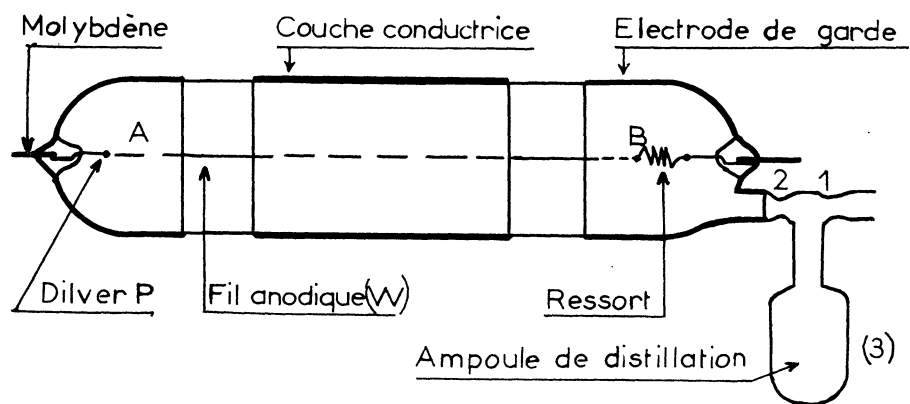


FIG. 2. — Schéma des compteurs à parois de verre et couche conductrice externe.

La disposition du revêtement conducteur externe est donnée sur la figure 2 : nous avons toujours utilisés des longueurs de cathode supérieures à 3 fois le diamètre interne du cylindre, afin de nous placer dans les meilleures conditions de fonctionnement [11]. Les électrodes de garde A et B sont à la même tension que le fil; le volume sensible est ainsi bien délimité [11]. Le revêtement externe est formé par métallisation sous vide d'une couche d'aluminium : ce dépôt est très stable et résiste bien aux températures auxquelles doit fonctionner ce détecteur.

A titre de comparaison, nous avons construit des compteurs à cathode interne métallique (fig. 3). L'ampoule de verre est en MO_2A , les passages anodiques et cathodiques sont réalisés selon la technique que nous venons de décrire. La cathode de Monel a 2,63 cm de diamètre et 9,4 cm de longueur; elle a été polie et arrondie aux extrémités pour éviter tout effet de pointe. Deux cylindres de 2 mm de diamètre entourent l'anode et servent d'électrodes de garde; ils délimitent de façon plus précise le volume sensible. Après l'étude sur de la vapeur de mercure, les qualités des détec-

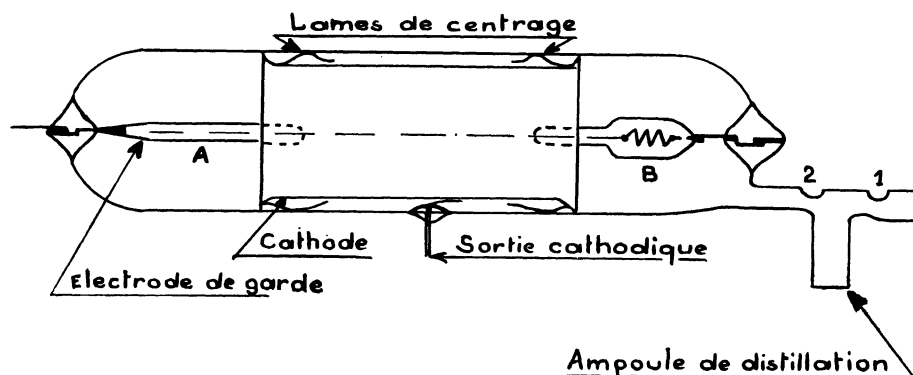


FIG. 3. — Schéma des compteurs à cathode métallique.

teurs étaient contrôlés à l'aide de remplissages classiques (argon - méthylal) ; le palier était long de 250 volts, avec une pente de 1,3 % par 100 volts, ce qui est excellent.

MODE DE FABRICATION

Les compteurs sont lavés par une solution étendue d'acide fluorhydrique, puis rincés par de l'éthanol et par de l'eau distillée. On étuve sous vide le détecteur à 300° C; on distille ensuite du mercure dans l'ampoule [3] (fig. 2) et l'on maintient à nouveau l'ensemble sous vide, à 300° C pendant 24 heures. Ces opérations sont indispensables pour éliminer l'eau et l'éthanol adsorbés sur les parois. Le compteur étant pompé sous vide, on porte au rouge l'anode, en y faisant passer un courant électrique de 2 ampères pendant 10 minutes. On ferme en 1, on fait distiller une certaine quantité de mercure dans le détecteur, et on coupe le queuzot en 2.

Pour toutes les températures étudiées, il demeurait une certaine quantité de mercure à l'état liquide, qui était rassemblée à l'intérieur du queuzot et ne perturbait pas le fonctionnement.

La vapeur métallique est donc toujours placée sous sa pression saturante, dont la variation en fonction de la température est donnée sur la figure 4. Les compteurs à cathode métallique étaient fabriqués selon le même procédé.

Les études ont été faites sous irradiation des rayons γ venant d'une source de ^{60}Co . Le circuit associé ne présente aucune originalité, si ce n'est une variation possible de la constante de temps du circuit d'entrée anodique, de 10^{-3} sec. à 10^{-7} sec.

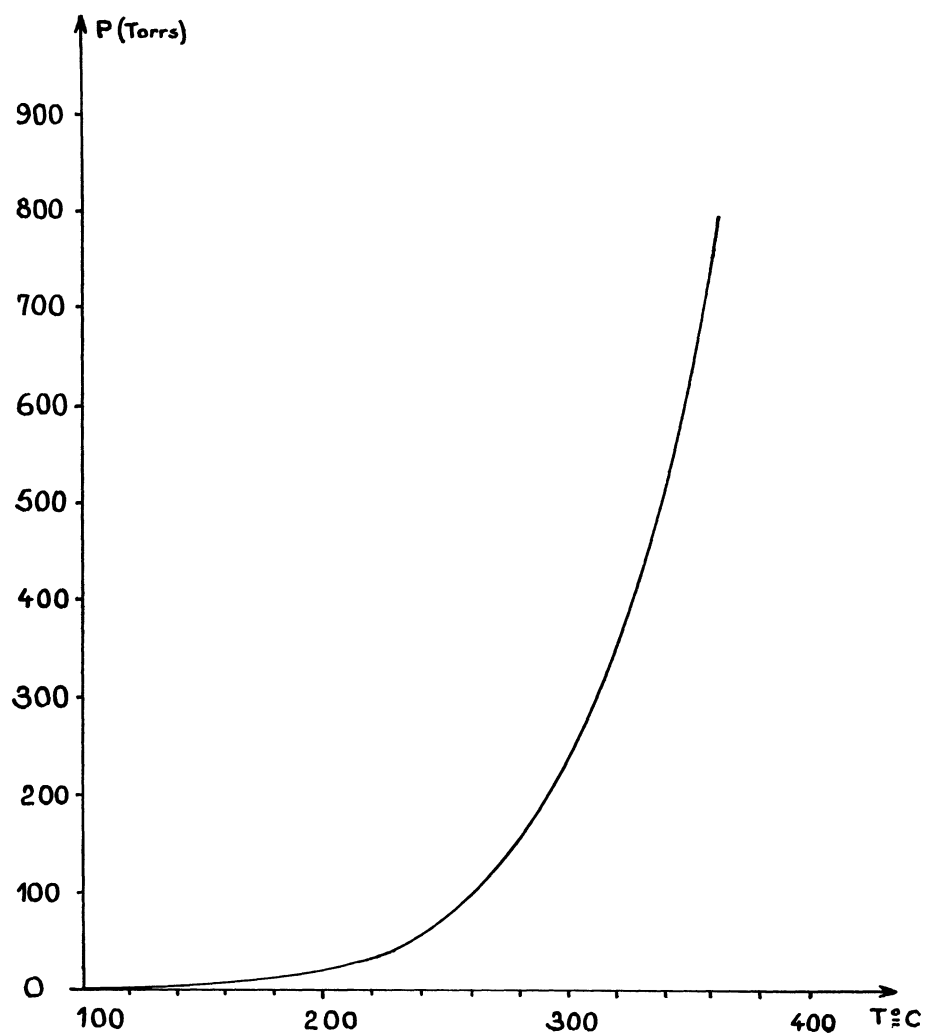


FIG. 4. — Variation de la tension de vapeur saturante du mercure en fonction de la température.

CARACTÉRISTIQUES DE COMPTAGE

Quelle que soit la constante de temps du circuit anodique, les détecteurs à coque de verre ont toutes les propriétés de compteurs autocoupeurs; il n'y a pas d'impulsions secondaires parasites, même pour une valeur de 10^{-7} seconde. Ce résultat est inattendu, puisque le remplissage ne comporte pas de constituant polyatomique susceptible d'absorber les photons produits lors de la recombinaison sur la cathode de la gaine ionique positive. Nous y reviendrons plus loin.

1) *Seuil de démarrage*- V_D (tension pour laquelle apparaissent les premières impulsions dans le circuit associé, de seuil égal à 0,1 volt). De 200 à 400° C, V_D croît avec la température. A plus basses températures, c'est-à-dire pour des pressions de remplissage de quelques cm de mercure, V_D passe par un minimum (*fig. 5*). Ce résultat est à rapprocher de ceux obtenus par LLEWELLY-JONES [12] en ce qui concerne la variation du potentiel disruptif dans un champ électrique uniforme, et par NAKAYA [20].

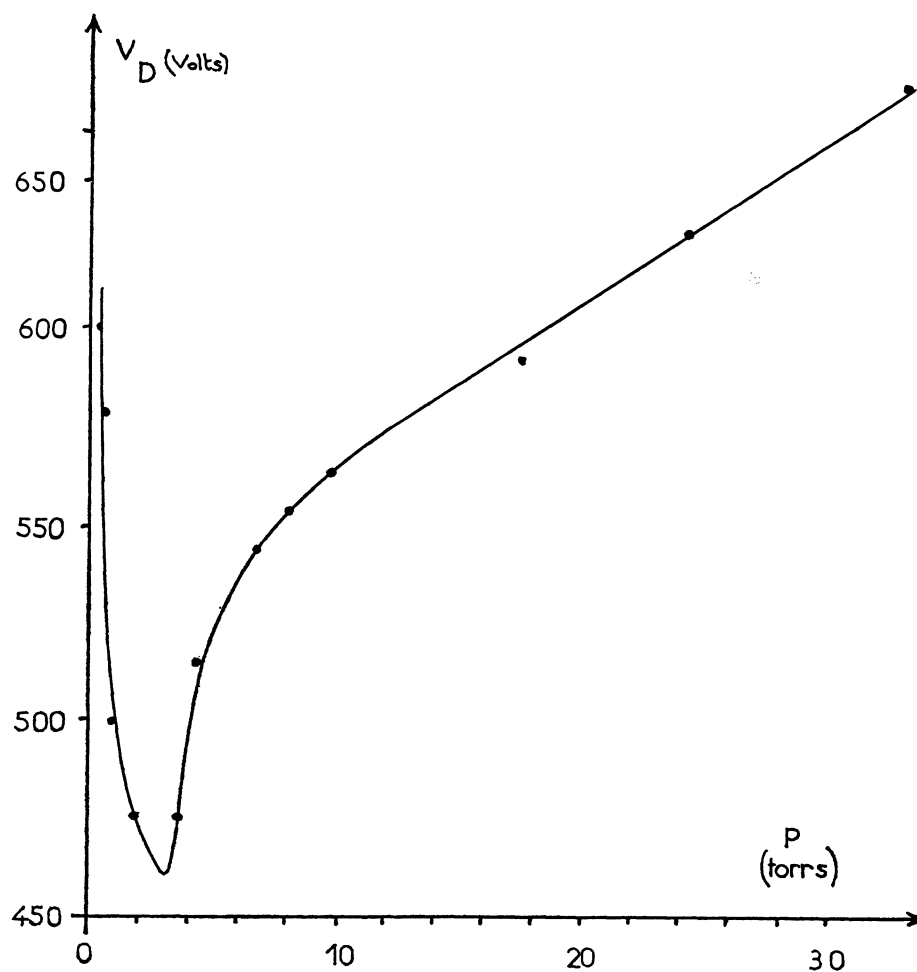


FIG. 5. — Variation du seuil de démarrage V_D en fonction de la pression de la vapeur de mercure pour des mélanges (argon + mercure).

Pour de telles pressions, les caractéristiques de comptage sont d'ailleurs mauvaises, et le détecteur ne présente pas d'intérêt pratique.

2) *Courbe de palier.* — La figure 6 donne la variation du seuil de Geiger, de la longueur du palier et de sa pente (% par 100 volts) en fonction de la température. Ces valeurs correspondent au bruit de fond, et la résistance transversale du verre joue un rôle négligeable. Le taux de comptage pour le bruit de fond augmente en fonction de la température selon une loi quasi exponentielle, ce qui semble prouver que cette augmentation est due à l'effet thermo-ionique depuis la paroi interne du cylindre de verre; le bruit de fond, de 60 impulsions par minute environ, à 250° C, atteint 150 impulsions par minute à 350° C.

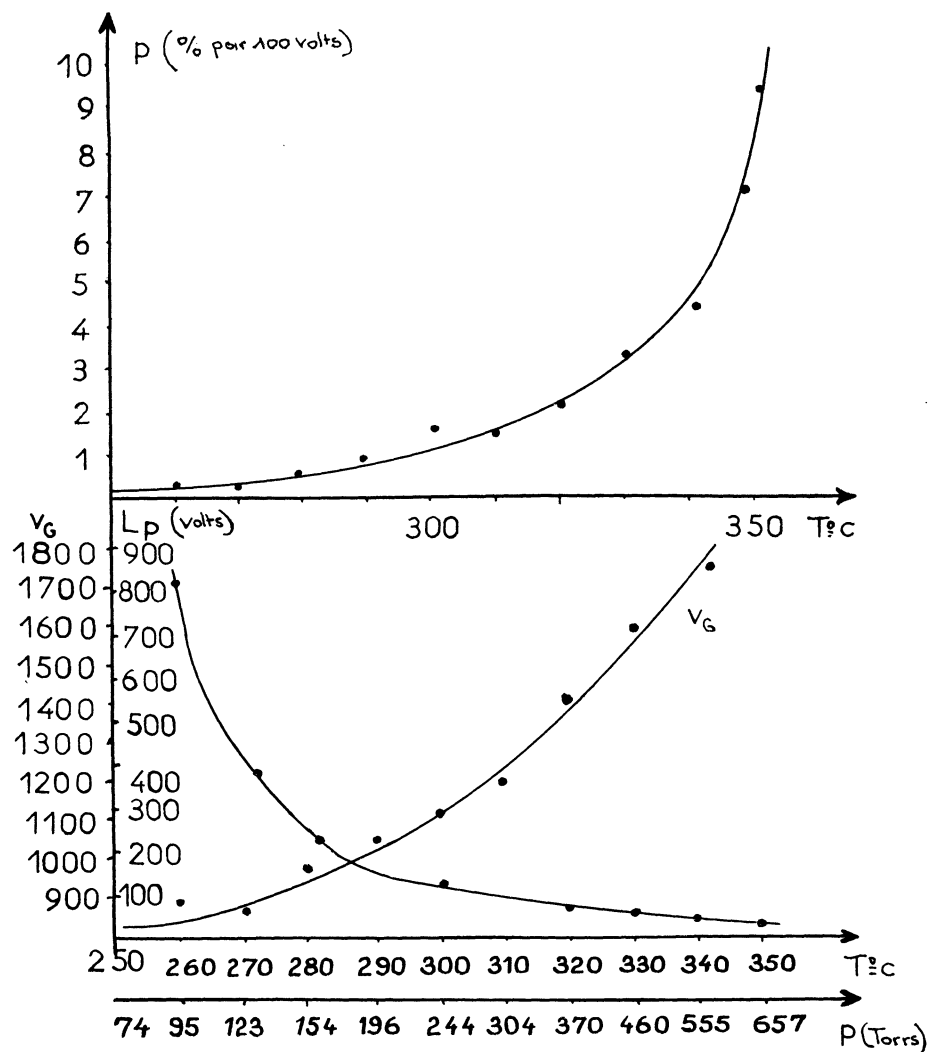


FIG. 6. — Variation, en fonction de la température, du seuil de Geiger, de la longueur du palier et de sa pente (% par 100 volts) (diamètre du fil : 0,1 mm, diamètre du cylindre : 2,0 cm).

3) *Efficacité.* — Les taux de comptage sous irradiation γ ont été comparés à ceux de détecteurs identiques, remplis d'un mélange classique (argon : 9 cm de Hg, éthanol, 1 cm de Hg), placés dans les mêmes conditions géométriques. La figure 7 donne l'efficacité des détecteurs rapportée à celle du remplissage à l'éthanol, prise égale à l'unité.

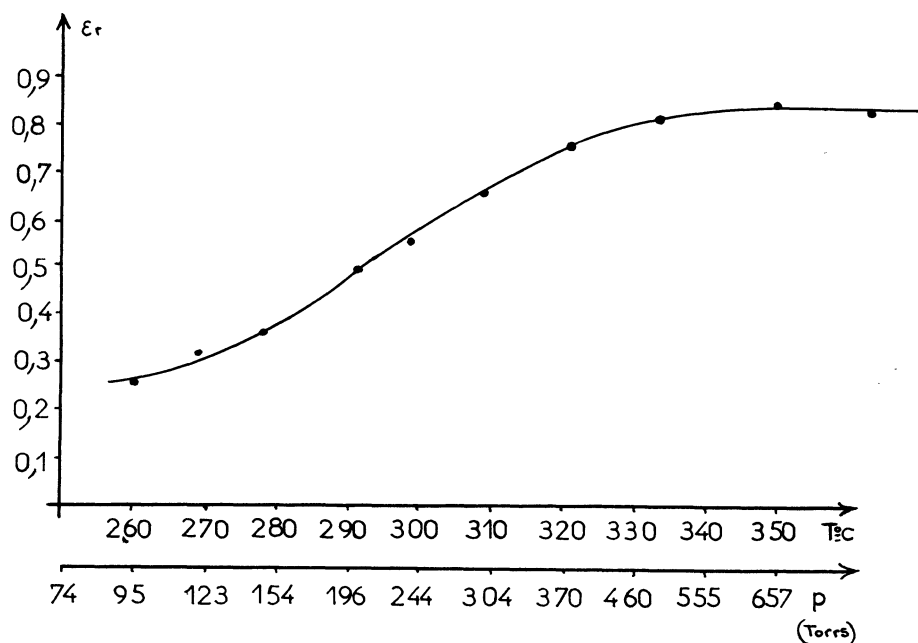


FIG. 7. — Efficacité pour les rayons γ de ^{60}Co , rapportée à celle d'un remplissage classique (argon + éthanol).

4) *Influence de la résistance transversale du cylindre de verre.* — Nous avons observé des phénomènes analogues à ceux obtenus sur des remplissages (argon + vapeur organique). Le seuil de Geiger varie en fonction du taux de comptage N_0 selon une loi de la forme [13]

$$\Delta V_G = B \cdot N_0 \cdot \frac{e}{\pi b} \sqrt{V_G^0 - V_D}$$

e étant l'épaisseur de la paroi de verre, ρ sa résistivité, b le rayon interne du cylindre, V_G^0 le seuil de Geiger pour le bruit de fond. On trouvera sur la figure 8 la variation de V_G avec N_0 pour une température de 320°C et un compteur en Sovirel 1723. La figure 9 donne la variation du paramètre B en fonction de la pression du mercure; la variation est analogue à celle obtenue en fonction de la pression de l'argon, avec des additions d'éthanol, de méthylal et de formiate d'éthyle (1 cm de mercure).

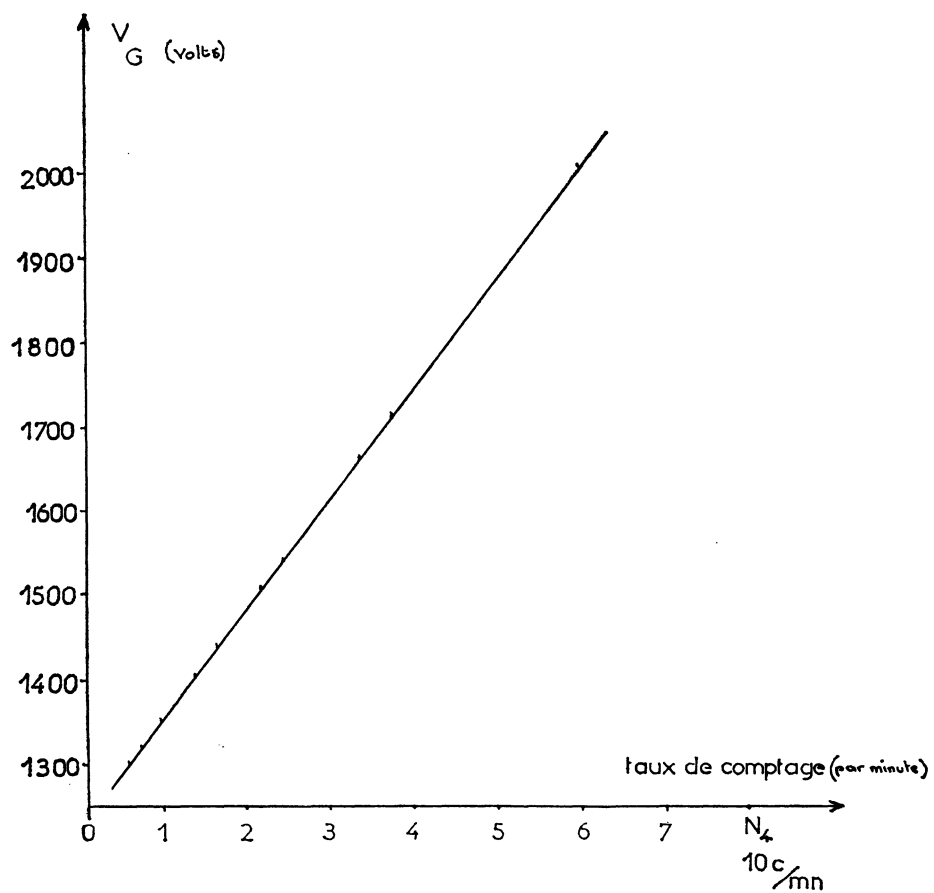


FIG. 8. — Variation du seuil de Geiger en fonction du taux de comptage, pour un détecteur Sovirel — 1723 à 320° C.

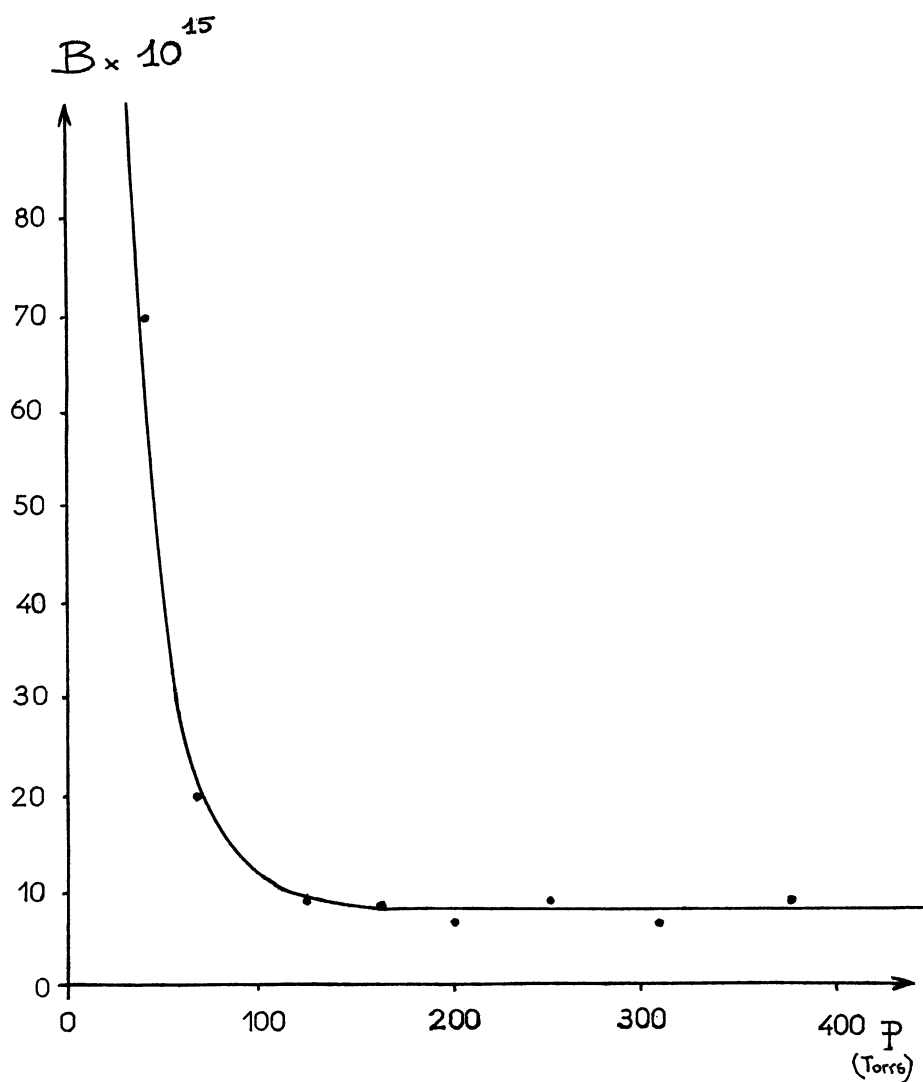


FIG. 9. — Variation du paramètre B en fonction de la pression de la vapeur de mercure (tors) — Unités : coulomb, volt, cm.

PROPRIÉTÉS D'AUTOcoupURE

Les résultats qui précèdent montrent l'identité absolue des caractéristiques de comptage avec celles de détecteurs contenant un mélange auto-coupeur. Pour contrôler cette identité, nous avons mesuré la variation avec la pression du temps mort (τ_m) et du temps de restitution (τ) du détecteur. La figure 10 montre que, la variation est linéaire; les valeurs obtenues sont indépendantes de la constante de temps du circuit associé.

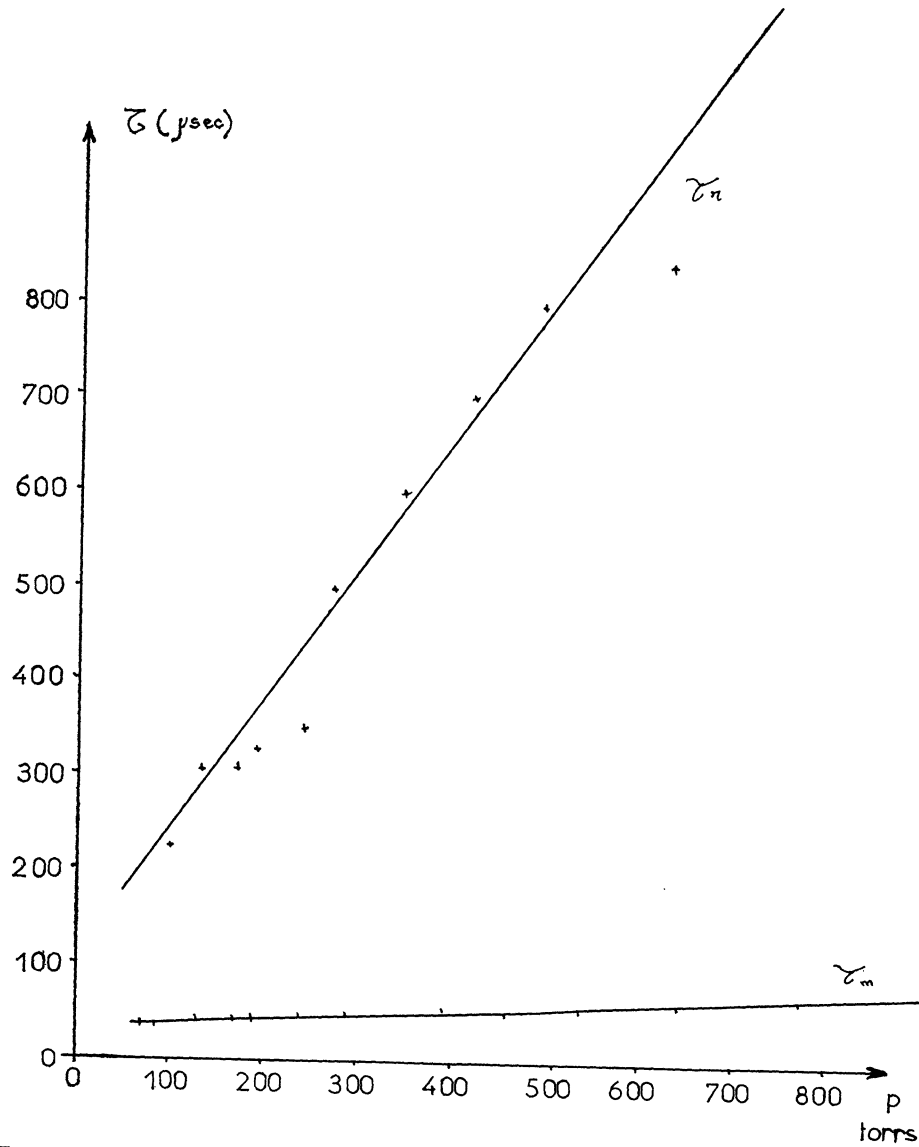


FIG. 10. — Variation du temps mort (τ_m) et du temps de restitution (τ_r) en fonction de la pression de la vapeur de mercure, pour le seuil de Geiger.

D'autre part, on sait que [15, 16], dans le cas d'un détecteur auto-coupeur, le temps de restitution est donné par :

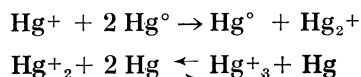
$$\tau_r = \frac{(b^2 - a^2) \text{Log } e \left(\frac{b}{a} \right)}{8 k V P_0} \times P$$

b et a étant respectivement les rayons de la cathode et du fil, V la différence de potentiel électrostatique entre ces électrodes, P la pression de remplissage, P₀ la pression atmosphérique, k la mobilité des ions positifs sous la pression atmosphérique. Cette formule nous a permis de calculer k :

$$k = 1,75 \text{ cm}^2 \text{ s}^{-1} \text{ V}^{-1}$$

Cette valeur est très supérieure à celles obtenues antérieurement par d'autres méthodes : DALGARNO [17] a calculé une valeur de $0,2 \text{ cm}^2 \text{ s}^{-1} \text{ V}^{-1}$ pour les ions (Hg)⁺ dans la vapeur de mercure; cette valeur est conforme aux mesures de MIERDEL [18]; DILLON [19] a obtenu par contre, une valeur de $0,5 \text{ cm}^2 \text{ s}^{-1} \text{ V}^{-1}$.

La valeur que nous avons obtenue semble montrer que certains ions de mercure existent sous forme moléculaire. Pour les pressions utilisées ici, le mécanisme de la décharge est très complexe, comme l'ont montré, entre autres, les travaux de BIONDI [21] et ceux de NAKAYA [20]. La diffusion ambipolaire du mercure formerait en effet des ions moléculaires selon les processus :



On pourrait craindre que les propriétés d'autocoupure ne s'expliquent par la présence de vapeurs organiques résiduelles (huiles des pompes, alcool de lavage). Nous avons vérifié qu'il n'en est rien en remplissant nos détecteurs d'argon pur, selon un mode opératoire rigoureusement identique à celui utilisé pour le mercure. Ils ne présentent, aux mêmes températures, aucun caractère d'autocoupure.

D'autre part, les compteurs à cathode métallique, remplis, toujours selon la même méthode, de vapeur pure de mercure, ne sont pas autocoupeurs. Le résultat reste le même si l'on intercale entre la cathode et la masse un circuit (résistance — capacité) identique à celui auquel équivaut la paroi de verre de nos détecteurs.

Au total, le comportement du détecteur n'est pas lié à un phénomène classique d'autocoupure, tel que l'ont décrit KORFF et PRESENT [22]. Leurs propriétés sont associées à la présence *simultanée* de la vapeur de mercure et de la paroi de verre. Nos résultats sont à rapprocher de ceux de COLLINSON, DEMETSPOULLOS et ZARZYCKI [23] sur des remplissages (argon + xénon + oxygène + azote) : dans des conditions convenables, de tels remplissages ont toutes les caractéristiques des mélanges autocoupeurs.

L'absence d'impulsions parasites semble due au fait que l'émission secondaire par effet photoélectrique depuis la paroi de verre est très faible et que, par recombinaison, les ions de mercure qui atteignent cette paroi produisent un nombre relativement faible de photons de basse énergie.

CONCLUSION

L'intérêt pratique de tels détecteurs est évidente. D'autre part, l'étude du mécanisme de leur fonctionnement peut donner de nombreux renseignements sur les décharges dans le mercure sous pressions relativement élevées.

Il serait intéressant de faire des remplissages de vapeur sèche de mercure pour éliminer l'influence de la densité gazeuse sur la forme des caractéristiques, et diminuer le coefficient de température.

Enfin, des conséquences importantes pourraient être tirées si l'on irradiait les compteurs par des particules α dont les trajectoires, parallèles à l'anode, seraient très voisines de la paroi du cylindre [24], en employant les techniques de E. J. LAUER [25] et de E. L. HUBER [26]. Leur mécanisme pourrait être ainsi élucidé.

BIBLIOGRAPHIE

- [1] MAILLE (C.), MOINARD (J.), BLANC (D.) et FONTAN (J.), « Production and use of short lived radioisotopes from reactors », volume 1, p. 415, Agence Internationale de l'Energie Atomique, Vienne (1963).
- [2] DUCHENE (J.), KOCH (L.), TACHON (J.), TARASENKO (S.), et ZALEVSKI (P.), Colloque Intern. Electron.-Nucl., Paris (1958), 5, 4.
- [3] BLANC (D.), « Détecteurs de particules, compteurs et scintillateurs ». MASSON, Paris (1959), p. 259-267.
- [4] Ibidem, p. 255-258.
- [5] MOLJK (A.), DREVER (K. N. S.) et CURRAN (S. C.), Rev. Sci. Instr. (1955), 26, 1034.
- [6] BLANC (D.) et VISTE (R.), Il Nuovo Cimento (1956), 3, 1119.
- [7] ANONYME : Instruments (1951), 24, 1067.
- [8] MAC-CUTCHEN (C. W.), Rev. Sci. Instr., (1958), 29, 12.
- [9] MADER (H.), Zeits f. Physik, (1954), 460, 137.
- [10] BASSI (P.) et BERETTA (E.), Il Nuovo Cimento, (1949), 6, 585.
- [11] BIROT (A.) et BLANC (D.), L'onde électrique, (1962), 426, 754.
- [12] LLEWELLY-JONES (F.), Ionization and breakdown in gases, John Wiley (N. Y.), (1957).
- [13] BLANC (D.), Thèse de doctorat ès Sciences, n° A - 2892, Paris (1956).
- [14] BLANC (D.), Journ. Phys. Radium, (1952), 13, 588.
- [15] STEVER (H. G.), Phys. Rev., (1942), 61, 38.
- [16] VAN-GEMERT (A. G. M.), DEN HARTOG (H.) et MÜLLER (F. A.), Physica, (1942), 9, 658.
- [17] DALGARNO (A.), Phil. Trans. Royal Soc., Londres, (1958), A. 250, 426.
- [18] MIERDEL (G.), Zeits. f. Physik, (1943), 121, 574.
- [19] DILLON (J. A.) et SHERIDAN-EDWARDS (W. F.), J. Chem. Phys., (1955), 23, 776.
- [20] NAKAYA (T.), Journ. Phys. Soc. Japa, (1956), 12, 1264.
- [21] BIONDI (M. A.), Phys. Rev., (1953), 90, 730.
- [22] KORFF (S. A.) et PRESENT (R. D.), Phys. Rev., (1944), 65, 274.
- [23] COLLINSON (A. J. L.), DEMETSOPOULOS (I. C.) et ZARZYCKI (J. M.), Proc. Phys. Soc., (1961), 78, 785.
- [24] LOEB (L. E.), Communication privée.
- [25] LAUER (E. J.), Journ. Appl. Phys., (1952), 23, 300.
- [26] HUBER (E. L.), Phys. Rev., (1955), 97, 267.