

# UNIVERSITE PARIS XI

THESE

présentée

pour obtenir le grade de

**DOCTEUR DE L'UNIVERSITE PARIS XI**

**Spécialité : « Constituants Élémentaires, Systèmes Complexes »**

par

**Sébastien CHABOD**

**Titre :**

**DEVELOPPEMENT ET MODELISATION DE  
CHAMBRES A FISSION POUR LES HAUTS FLUX,  
MISE EN APPLICATION AU RHF (ILL) ET À MEGAPIE (PSI)**

---

Thèse soutenue le 30 novembre 2006 devant la commission d'examen :

**M. Jean-Marc CAVEDON**  
**M. Gabriele FIONI**  
**M. Hubert FLOCARD**  
**M. Frédéric MARIE**  
**M. Jacques MARTINO**  
**M. Alain PLUQUET**  
**M. Jean-Baptiste THOMAS**

Directeur de thèse  
Président du jury  
Responsable de thèse  
Rapporteur  
Rapporteur



Paris, le 30 novembre 2006

*Avant d'entrer dans le vif du sujet, je souhaite remercier tous ceux et toutes celles qui se sont impliqués dans mes travaux et ont contribué à faire de ces trois années de thèse une expérience dont je conserverai un bon souvenir.*

*Je remercie tout d'abord Nicolas Alamanos et Françoise Auger, pour leur accueil au SPhN, leur confiance et la qualité des moyens qu'ils m'ont accordés. Je tiens également à remercier chaleureusement l'ensemble des membres du jury pour leur disponibilité, leur lecture attentive du mémoire et leurs commentaires pertinents.*

*Je remercie tout particulièrement Gabriele Fioni, Frédéric Marie et Alain Letourneau pour la qualité de leur encadrement et pour la liberté qu'ils m'ont laissée dans le choix des pistes de recherche explorées. Un grand merci à Gabriele pour son engagement, sa confiance et son soutien actif qui m'aura tiré plus d'une fois de situations désagréables. Merci beaucoup à Frédéric pour sa bonne humeur communicative et son intérêt demeuré intact malgré son départ pour les bureaux ministériels. Merci enfin à Alain pour son aide au jour le jour, sa patience et ces discussions de physique animées qui prouvent que cette discipline ne se limite pas uniquement à une accumulation de lignes de code ou d'équations. A tous trois, je vous suis reconnaissant et redevable.*

*Je souhaite remercier les équipes MEGAPIE (Alain, Emmeric, Frédéric, Jean-Christian, Paul, Philippe, Stéphane), ILL (Cédric, Elvio, Paulo) et SPEX (Christophe, Ludovic, Stéphane) sans qui ces travaux seraient restés à l'état de projet. Je voudrais également remercier tous ceux qui ont contribué à un degré moins visible mais tout aussi important au succès de cette entreprise : François, Frédéric, Jean-Marc, les sociétés KAYME, PHOTONIS et nos partenaires du PSI et de SUBATECH. Un merci particulier à Jean-Christian Toussaint pour son aide précieuse, tant professionnelle que personnelle.*

*Je remercie plus généralement l'ensemble du SPhN, dont j'ai apprécié la convivialité. Merci à Danielle, Gilles, Isabelle et Valérie pour leur soutien logistique impeccable. Merci à Danas et à Jean-Christophe pour leurs conseils. Par ailleurs, je souhaite bonne continuation et succès aux nombreux thésards et post-docs qui se sont succédés au sein du service : Emmanuel, Eric, Marco, Marie-Laure, Olivier, Pavel, Sébastien, Véra, Yann, ...*

*Enfin, je souhaite remercier ma famille pour son soutien indéfectible ces trois années, et plus particulièrement dans cette dernière ligne droite.*

Sébastien Chabod



# SOMMAIRE

INTRODUCTION .....	1
GLOSSAIRE DE LA PARTIE 1 .....	5
<b>PARTIE 1 : Développement et modélisation des chambres à fission</b> .....	<b>7</b>
CHAPITRE I : Chambres à fission : un bref état de l'art .....	8
CHAPITRE II : Equations de base et formules analytiques .....	11
1) Modélisation des chambres à fission .....	11
A) Calcul de la densité de charges créée par les produits de fission.....	11
B) Coefficient $X_0$ .....	18
C) Equations de base .....	20
D) Termes source et termes de perte .....	23
a) Termes source .....	23
b) Termes de perte .....	24
E) Discussion sur la forme des courbes de calibration.....	25
F) Charges d'espace et distorsion du champ électrique .....	27
G) Vitesses de dérive des électrons et des ions .....	27
a) Mobilités électronique et ionique.....	28
b) Diffusion électronique et ionique.....	30
2) Application du modèle aux chambres cylindriques : formules analytiques.....	31
A) Courant et densité de charges au plateau de saturation.....	32
a) Courant de saturation, approximation de $N(r)$ en $1/r$ et erreur associée .....	32
b) Evolution du courant $I_{sat}$ avec $h$ , la longueur du dépôt .....	33
c) Evolution du courant de saturation avec les rayons des électrodes .....	34
d) Comparaison entre les valeurs théoriques et expérimentales de $I_{sat}$ .....	38
B) Distorsion du champ électrique à la saturation .....	38
C) Calculs simplifiés de la forme des courbes de calibration .....	43
a) Evolution de la forme d'une courbe de calibration avec le coefficient $k$ de recombinaison .....	45
b) Evolution de la forme d'une courbe de calibration avec le taux de fission $\tau_f$ .....	47
c) Evolution de la forme d'une courbe de calibration avec la pression $P$ du gaz .....	51
d) Evolution de la forme d'une courbe de calibration avec $R_I$ , le rayon de l'anode....	54
D) Calcul de la tension à ne pas dépasser si l'on souhaite éviter le régime d'avalanche.	54
E) Calcul de la tension au premier point du plateau de saturation .....	57
CHAPITRE III : Processus complexes et approche numérique.....	63
1) Impact des atomes métastables sur le courant délivré .....	63
A) Processus de création des atomes métastables .....	64
B) Processus de destruction des atomes métastables .....	67
C) Calcul de la densité des métastables et impact sur le courant.....	70
2) Perturbations associées à une modification du gaz de remplissage.....	71
A) Vieillessement par dégazage.....	71
B) Contaminations en oxygène et en xénon.....	73
C) Impact des processus de pulvérisation cathodique.....	75
D) Emission d'électrons à la cathode .....	80
3) Méthode de résolution numérique .....	82

A) Calculs des courbes de calibration sans charges d'espace .....	84
a) Impact des atomes métastables et de l'émission secondaire sur le courant délivré par la chambre (calcul sans charges d'espace) .....	85
b) Localisation des charges électriques dans l'espace inter électrodes (calcul sans charges d'espace) .....	89
B) Impact des charges d'espace sur les courbes de calibration.....	93
a) Localisation des charges électriques dans l'espace inter électrodes (calcul avec charges d'espace) .....	93
b) Comparaison des courbes avec et sans charges d'espace .....	97
c) Courant au point de fonctionnement en fonction du taux de fission et méthodes d'analyse des courbes de calibration expérimentales.....	97
C) Améliorations à apporter à la résolution numérique .....	105
CHAPITRE IV : Applications technologiques et nouveaux concepts de chambres à fission	108
1) Développement de chambres à gap réduit .....	108
2) Développement de chambres triple corps .....	110
<b>PARTIE 2 : Mise en application des chambres à fission au RHF et à MEGAPIE .....</b>	<b>112</b>
CHAPITRE V : Le projet MEGAPIE, contexte et objectifs.....	113
1) Les sources intenses de neutrons et le hall SINQ .....	113
2) le projet MEGAPIE.....	114
CHAPITRE VI : Conception et simulation du Détecteur de Neutrons pour MEGAPIE.....	117
1) Présentation du DNM .....	117
2) Champ de température et évacuation de la chaleur dans le DNM.....	120
3) Choix des câbles et des connecteurs, résolution des problèmes de sûreté.....	122
4) Caractéristiques des micro-chambres à fission .....	123
A) Simulations MCNPX de la cible MEGAPIE .....	124
B) Mesure des masses des dépôts d'uranium par spectrométrie gamma .....	125
C) Etudes MEB de la tenue des dépôts à haute température.....	127
5) Choix des moniteurs de flux .....	129
CHAPITRE VII : Tests intégraux à l'Institut Laue Langevin .....	131
1) Présentation succincte du RHF de l'ILL et du canal V4 .....	131
2) Dispositif expérimental et objectifs .....	133
3) Comportement général des câbles, des thermocouples et de l'électronique.....	135
4) Suivi en ligne du flux neutronique.....	136
5) Mesures absolues du flux neutronique à l'intérieur du canal V4.....	140
6) Transmutation du neptunium 237 et de l'américium 241 à l'ILL .....	145
CHAPITRE VIII : MEGAPIE, premiers résultats .....	149
1) Des conditions de fonctionnement dégradées.....	149
2) Détermination du coefficient $k$ de recombinaison de l'argon à 1 bar .....	150
3) Champ de température dans la partie basse du central rod.....	152
4) Caractérisation du flux neutronique à l'intérieur de la cible MEGAPIE.....	154
<b>CONCLUSION.....</b>	<b>159</b>
<b>BIBLIOGRAPHIE .....</b>	<b>163</b>
<b>ANNEXE A : Schéma technique du DNM .....</b>	<b>165</b>
<b>ANNEXE B : Activité des moniteurs de flux.....</b>	<b>167</b>
<b>ANNEXE C : Activation des chambres à fission dans le canal V4 du RHF de l'ILL .....</b>	<b>172</b>

# INTRODUCTION

La France produit 78 % de son électricité à partir d'une soixantaine de Réacteurs à Eau Pressurisée (REP) répartis sur l'ensemble de son territoire. En ces temps de hausse des prix des produits pétroliers, ce choix de politique énergétique a un impact positif sur l'économie nationale, en réduisant le déséquilibre de la balance commerciale notamment. Par ailleurs, la filière nucléaire limite les rejets de gaz à effet de serre, dont l'impact sur le réchauffement climatique est aujourd'hui avéré. Toutefois, l'industrie nucléaire se heurte à trois défis majeurs : la sûreté de ses installations, les risques de prolifération de matières sensibles et la question de la gestion à long terme des déchets radioactifs.

Le 30 décembre 1991, le Parlement a voté la loi Bataille visant à répondre aux préoccupations légitimes des français en ce qui concerne le devenir des déchets nucléaires. Le développement d'une filière nucléaire sans déchets est en effet utopique et des propositions concrètes doivent être mises en oeuvre pour assurer leur gestion complète, du retraitement au stockage géologique. Chaque étape de la politique de gestion doit prendre en compte la protection de l'environnement, de la santé publique et le droit des générations futures. Dans cette optique, le stockage en formations géologiques profondes ne pourra être accepté par l'opinion publique si un autre mode de gestion est raisonnablement possible, ou si la démonstration scientifique de la sûreté de ce procédé n'est pas effectuée.

En France, les déchets nucléaires produits par les centrales REP représentent environ 1 kg par an et par habitant (contre 2,5 tonnes de déchets industriels et 6,6 tonnes de CO<sub>2</sub> rejetées directement dans l'atmosphère). Les déchets nucléaires sont classés en fonction de leur niveau de radioactivité et de leur durée de vie. Ils sont dits à vie courte (VC) lorsque leur période est inférieure à 30 ans et à vie longue (VL) dans le cas contraire. On parle enfin de déchets TFA, FA, MA et HA pour des éléments de très faible, faible, moyenne et haute activité<sup>1</sup>. Les déchets MAVL (ou déchets B) sont principalement issus des structures qui entourent le combustible des réacteurs et représentent 9 % de l'inventaire. Les déchets HA (ou déchets C) sont, eux, constitués des produits de fission et des actinides<sup>2</sup> mineurs contenus dans les combustibles usés. Ils ne correspondent qu'à 1 % du volume de l'inventaire radiotoxique mais représente plus de 96 % de la radioactivité totale. Chaque année, les centrales EDF produisent 130 m<sup>3</sup> de déchets HA, qui ne peuvent être accueillis dans les centres conventionnels de stockage de l'Aube, de la Manche et de Morvilliers. Leur radioactivité, déjà trop élevée, s'accompagne en effet d'un dégagement de chaleur important. La gestion des déchets HA et MAVL, dits HAVL, fait l'objet de la loi du 30 décembre 1991.

La loi du 30 décembre 1991, inscrite dans l'article L542 du Code de l'Environnement, prévoyait ainsi un ensemble de dispositions sur l'organisation de la recherche et la diffusion

---

<sup>1</sup> Les déchets TFA ont une activité inférieure à 100 Bq/g et proviennent essentiellement du démantèlement des installations nucléaires. Les déchets FAVC et MAVC (ou déchets A) ont des activités inférieures à 10<sup>6</sup> Bq/g et sont majoritairement constitués de produits de maintenance (outils, chiffons, etc.) ou de traitement (effluents liquides et gazeux). Les déchets FAVL contiennent des isotopes qui conduisent à la formation de radon, ou proviennent des assemblages en graphite qui entouraient le combustible de la filière « uranium naturel graphite gaz », supplantée dans les années 70 en France par la filière REP, plus rentable.

<sup>2</sup> Les actinides sont les éléments dont le numéro atomique est compris entre 89 et 102. Les actinides majeurs sont l'uranium et le plutonium. Parmi les actinides mineurs, on trouve l'américium, le curium et le neptunium.

## INTRODUCTION

de l'information. On peut notamment citer la mise en place d'un programme de recherche sur 15 ans. Le but de ce programme est « de fournir au législateur au plus tard en 2006 un rapport global d'évaluation des recherches, accompagné d'un projet de loi autorisant, le cas échéant, la création d'un centre de stockage des déchets HAVL ». Les recherches sont conduites au sein de l'Andra, du CEA, du CNRS, de la COGEMA, d'EDF, de Framatome et des Universités et Ecoles<sup>3</sup>. Elles sont organisées autour de trois grands axes. L'axe 1 concerne les possibilités de séparation et de transmutation des éléments radioactifs à vie longue présents dans les déchets nucléaires. Parmi les principes généraux mentionnés dans la loi figure en effet la nécessité de diminuer autant que raisonnablement possible la production et l'impact en terme de radiotoxicité et de dégagement thermique des déchets HAVL. L'axe 2 regroupe les études conduites en vue d'un stockage en formations géologiques profondes (argile et granite). Enfin, l'axe 3 concerne les techniques de conditionnement (compactage, vitrification, etc.) des déchets en vue de leur stockage ou de leur entreposage longue durée.

La transmutation d'un radioélément à durée de vie longue a pour objectif sa transformation en noyaux stables ou radioactifs à durées de vie courtes. Pour réaliser cette opération, des réactions nucléaires de capture, de fission et/ou de désintégrations radioactives sont nécessaires. Cependant, la connaissance de ces processus présente parfois des lacunes préjudiciables à toute application industrielle. En effet, les sections efficaces correspondantes sont peu connues, des mesures de référence sont quelque fois contradictoires et il existe des désaccords notables entre les bibliothèques de données nucléaires. Pour combler ces incertitudes, un important travail de mesure et d'évaluation a été initié dans le cadre de l'axe 1. Parmi les programmes expérimentaux mis en place en France, on citera les campagnes d'irradiation auprès du réacteur Phénix, le projet n\_TOF au CERN qui effectue des mesures de sections efficaces par temps de vol, ou le programme MINI-INCA [1, 2, 3] qui étudie la transmutation des actinides mineurs dans des flux thermiques élevés.

La transmutation des déchets radioactifs dans les centrales REP actuelles présente des inconvénients industriels sérieux à grande échelle. Les processus nécessaires seront donc mis en oeuvre au sein de dispositifs mieux adaptés, qui regroupent les réacteurs hybrides et les réacteurs électrogènes de quatrième génération<sup>4</sup>. Les réacteurs hybrides (ou ADS, Accelerator Driven System) sont des systèmes innovants qui couplent un cœur sous-critique à une source externe de neutrons, généralement une cible de spallation irradiée par un accélérateur de protons. Le caractère sous-critique du cœur permettrait de le charger fortement en actinides mineurs, tout en assurant son contrôle et sa sûreté (suppression des problèmes de criticité). Toutefois, la mise au point des réacteurs hybrides nécessite la levée d'un certain nombre de verrous technologiques : endommagement et corrosion des pièces, gestion des radioéléments volatils produits par les réactions de spallation, accélérateurs de très haute intensité, développement de sources de neutrons intenses, etc. Ces recherches s'inscrivent notamment dans le cadre du programme européen EUROTRANS, qui rendra ses conclusions en 2009.

Dans ce contexte, l'expérience MEGAPIE<sup>5</sup> au Paul Scherrer Institute (PSI), qui teste cette année la première cible de spallation liquide au plomb-bismuth fonctionnant à haute puissance, revêt une importance particulière. Comme le rappelle le Ministère de la Recherche,

---

<sup>3</sup> Les dépenses réalisées dans le cadre de l'axe 1 et 3 atteignent respectivement 810 M€ et 672 M€ entre 1992 et 2004.

<sup>4</sup> Les réacteurs dits de 4<sup>ème</sup> génération regroupent 6 concepts futuristes : 3 réacteurs à neutrons rapides refroidis au sodium, au plomb-bismuth ou au gaz, un réacteur thermique refroidi au gaz et fonctionnant à très haute température, un réacteur à eau supercritique et un réacteur à sels fondus.

<sup>5</sup> MEGAPIE : MEGAwatt Pilot Experiment.



« l'appréciation comparée des solutions issues de la recherche devient une préoccupation primordiale. En effet, si l'exploration des différentes solutions applicables à la gestion des produits de l'aval du cycle a été menée avec une grande liberté intellectuelle pour encourager l'innovation, il est maintenant temps de mettre en évidence les solutions techniques susceptibles d'être mises en pratique » [4]. De fait, les conclusions de l'expérience MEGAPIE, citée dans les rapports remis aux parlementaires, sont attendues avec une certaine... impatience. La loi du 28 janvier 2006 prévoit en effet la poursuite des recherches sur la transmutation au sein des réacteurs électrogènes de quatrième génération et des réacteurs ADS « afin de disposer, en 2012, d'une évaluation des perspectives industrielles de ces filières et de mettre en exploitation un prototype d'installation avant le 31 décembre 2020 ».

Le Commissariat à l'Energie Atomique, nommé pilote des axes 1 et 3 (séparation, transmutation, entreposage, stockage) par le Gouvernement, est impliqué dans la collaboration MEGAPIE. En particulier, le Département d'Astrophysique, de physique des Particules, de physique Nucléaire et de l'Instrumentation Associée (DAPNIA) a pour mission l'évaluation des performances neutroniques de la cible MEGAPIE et la mesure de son potentiel en terme d'incinération des actinides mineurs. Les travaux présentés dans ce rapport s'inscrivent dans le cadre de cette mission.

Pour atteindre ces objectifs, nous avons développé un ensemble de détecteurs, baptisé DNM, et son système d'acquisition. La conception du DNM s'est heurtée à de nombreux problèmes techniques. Les principales difficultés ont concerné l'intégration de détecteurs miniatures de neutrons, appelés chambres à fission, dans un espace réduit d'une dizaine de millimètres soumis à un environnement hostile : flux de neutrons importants, milieu très ionisant, températures élevées et perturbations électromagnétiques. Des simulations de neutronique, de thermique et d'activation ont guidé le choix et l'agencement des éléments de structure du DNM. Le Détecteur de Neutrons pour MEGAPIE (DNM) a été livré le 17 janvier 2006 au PSI, monté le 26 janvier 2006 à l'intérieur de la cible et est entré en service dès le début de l'irradiation, le 14 août 2006. Il fonctionnera pendant 4 mois sans intervention possible à une température proche de 400°C.

Les chambres à fission implantées dans le DNM ont été conçues pour résister aux conditions de fonctionnement difficiles de la cible MEGAPIE. Leur développement a nécessité un important travail de modélisation, doublé d'un programme de test et de validation auprès du Réacteur à Haut Flux (RHF) de l'Institut Laue Langevin (ILL). A cet effet, nous avons développé les outils théoriques indispensables à la compréhension et à la prédiction de leur comportement dans des flux neutroniques variés. Une mesure précise du flux de neutrons requiert en effet un degré de compréhension élevé des processus physiques à l'oeuvre à l'intérieur d'une chambre à fission. Les connaissances acquises nous ont ensuite permis d'optimiser les caractéristiques intrinsèques de ces détecteurs pour les adapter au mieux aux conditions d'irradiation de MEGAPIE.

Ce rapport est structuré autour de deux grandes parties. La première partie présente les travaux théoriques menés sur le fonctionnement des chambres. La deuxième partie récapitule les simulations et les choix technologiques qui ont présidé à la conception du DNM, les tests de validation effectués au RHF et les premiers retours d'expérience obtenus à MEGAPIE.

Au chapitre I, nous présenterons les caractéristiques générales des chambres à fission. Nous établirons dans le chapitre II les équations qui gouvernent leur fonctionnement. Les solutions

## INTRODUCTION

analytiques de ces équations nous permettront d'étudier l'évolution de leur réponse en fonction de paramètres externes (flux de neutrons) ou intrinsèques au détecteur (pression et nature du gaz, tension, géométrie, etc.). Au chapitre III, nous compléterons cette étude par des méthodes numériques, qui autoriseront la prise en compte des processus physiques les plus complexes (atomes métastables du gaz, charges d'espace, etc.). Au chapitre IV, nous appliquerons les résultats théoriques au développement de nouveaux concepts de chambres à fission. Au chapitre V, nous introduirons le projet MEGAPIE, son contexte et ses objectifs. Dans le chapitre VI, nous décrirons le Détecteur de Neutrons pour MEGAPIE, les étapes de sa conception et son fonctionnement. Au chapitre VII, nous présenterons les campagnes d'irradiation effectuées à l'ILL de 2003 à 2006, ainsi que les principaux résultats en terme de mesures de flux. Nous donnerons également une mesure de référence de l'incinération du neptunium 237 dans un flux thermique élevé. Enfin, dans le chapitre VIII, nous détaillerons les premières données de l'expérience MEGAPIE, que nous comparerons aux résultats des simulations de neutronique et de thermique.

# GLOSSAIRE DE LA PARTIE 1

$\alpha$ ,	coefficient de première ionisation de Townsend
$D$ ,	coefficient de diffusion des atomes neutres
$D_a$ ,	coefficient de diffusion des ions $\text{Ar}^+$
$D_e$ ,	coefficient de diffusion des électrons
$\Delta V$ ,	tension appliquée aux bornes d'une chambre à fission
$\Delta V_{min}$ ,	tension au premier point du plateau de saturation
$\Delta V_{max}$ ,	tension au dernier point du plateau de saturation
$\Delta V_0$ ,	tension au point de fonctionnement
$e$ ,	charge électrique fondamentale
$E$ ,	champ électrique à l'intérieur d'une chambre à fission
$\epsilon_0$ ,	permittivité du vide
$\gamma$	coefficient d'émission secondaire (deuxième coefficient de Townsend)
$h$ ,	longueur du dépôt fissile d'une chambre à fission
$I$ ,	courant délivré par une chambre à fission
$I_{min}$ ,	courant délivré par une chambre à fission au premier point du plateau de saturation
$I_{max}$ ,	courant délivré par une chambre à fission au dernier point du plateau de saturation
$I_{sat}$ ,	courant délivré par une chambre à fission au plateau de saturation
$I_0$ ,	courant délivré par une chambre à fission au point de fonctionnement
$k$ ,	coefficient de recombinaison volumique des ions et des électrons
$k_{ex}$ ,	coefficient d'excitation des atomes neutres par les électrons
$k_{ion}$ ,	coefficient de disparition des atomes métastables par ionisation électronique
$k_q^{(0)}$ ,	coefficient de disparition des atomes métastables $^3\text{P}_0$ par quenching électronique
$k_q^{(2)}$ ,	coefficient de disparition des atomes métastables $^3\text{P}_2$ par quenching électronique
$k_{2c}$ ,	coefficient de disparition des atomes métastables par collisions à deux corps
$k_{3c}$ ,	coefficient de disparition des atomes métastables par collisions à trois corps
$m_e$ ,	masse d'un électron
$\mu_a$ ,	mobilité des ions $\text{Ar}^+$
$\mu_e$ ,	mobilité des électrons
$n$ ,	densité des atomes gazeux dans leur état fondamental
$n_a$ ,	densité des ions $\text{Ar}^+$ dans le gaz de remplissage
$n_e$ ,	densité des électrons dans le gaz de remplissage
$n_0$ ,	densité des atomes métastables d'argon $^3\text{P}_0$ dans le gaz de remplissage
$n_2$ ,	densité des atomes métastables d'argon $^3\text{P}_2$ dans le gaz de remplissage
$N$ ,	densité de paires de charges créées par seconde par les produits de fission
$\langle N \rangle$ ,	moyenne de $N$ sur l'espace inter électrodes
$N_a$ ,	nombre d'Avogadro
$N_{fst}$ ,	nombre de produits de fission éjectés par seconde et par unité de surface de l'anode
$N_0^*$ ,	densité d'atomes métastables $^3\text{P}_0$ créée par seconde par les produits de fission
$N_2^*$ ,	densité d'atomes métastables $^3\text{P}_2$ créée par seconde par les produits de fission
$P$ ,	pression du gaz de remplissage
$r$ ,	distance radiale à l'axe de rotation du dépôt d'une chambre à fission cylindrique
$R_1$ ,	rayon de l'anode d'une chambre à fission cylindrique
$R_2$ ,	rayon de la cathode d'une chambre à fission cylindrique

$T$ ,	température ambiante
$T_a$ ,	température ionique
$T_e$ ,	température électronique
$T_P$ ,	densité de paires électron – ion détruite par seconde dans le gaz de remplissage
$T_P^{(0)}$ ,	densité de métastables $^3P_0$ détruite par seconde dans le gaz de remplissage
$T_P^{(2)}$ ,	densité de métastables $^3P_2$ détruite par seconde dans le gaz de remplissage
$T_S$ ,	densité de paires électron – ion créée par seconde dans le gaz de remplissage
$T_S^{(0)}$ ,	densité de métastables $^3P_0$ créée par seconde dans le gaz de remplissage
$T_S^{(2)}$ ,	densité de métastables $^3P_2$ créée par seconde dans le gaz de remplissage
$\tau_f$ ,	taux de fission (nombre de fissions induites dans le dépôt par seconde par les neutrons)
$\tau_0$ ,	durée de vie radiative des atomes métastables $^3P_0$
$\tau_2$ ,	durée de vie radiative des atomes métastables $^3P_2$
$v_a$ ,	vitesse de dérive des ions $Ar^+$
$v_e$ ,	vitesse de dérive des électrons
$W$ ,	énergie moyenne nécessaire à un produit de fission pour créer une paire électron - ion
$X$ ,	nombre de paires électron - ion créées par un produit de fission par unité de distance parcourue dans le gaz de remplissage
$Y$ ,	rendement de pulvérisation (nombre d'atomes pulvérisés par ion incident)
$z$ ,	distance axiale par rapport au centre de symétrie du dépôt
$z_{min}$ ,	borne inférieure en $z$ de l'espace inter électrodes
$z_{max}$ ,	borne supérieure en $z$ de l'espace inter électrodes

# **PARTIE 1**

## **DEVELOPPEMENT ET MODELISATION DES CHAMBRES A FISSION**

# CHAPITRE I

## Chambres à fission : un bref état de l'art

Mesurer un flux de neutrons : il s'agit là d'un défi commun à un large éventail de disciplines scientifiques et industrielles, allant de la physique fondamentale à la médecine, en passant par la neutrographie ou le pilotage des réacteurs nucléaires. C'est une tâche qui peut s'avérer ardue, car le neutron sait se faire discret. Sa charge électrique est nulle et il n'interagit avec la matière qu'au travers de son moment magnétique ou de ses propriétés nucléaires. Les premiers dispositifs de mesure qu'inventèrent les physiciens faisaient appel aux propriétés d'activation des matériaux, comme le cobalt, le cuivre ou le manganèse. Sous flux neutronique, une partie de leurs noyaux est progressivement transmutée en isotopes radioactifs, dont on peut détecter la désintégration par des méthodes de spectrométrie. La radioactivité induite étant proportionnelle au flux de neutrons, on remonte aisément à la mesure recherchée. Malheureusement, cette méthode est difficilement adaptable pour une utilisation quotidienne. La récupération, le maniement et l'analyse des échantillons irradiés constituent en effet autant d'étapes longues et difficiles.

Pour un suivi en ligne du flux de neutrons, des détecteurs spécifiques appelés « chambres à fission » ont été progressivement développés depuis les années 60. De nos jours, elles sont couramment utilisées en environnement irradié (accélérateurs, réacteurs nucléaires, complexes médicaux, etc.) pour enregistrer en direct des flux de neutrons et leurs variations au cours du temps. Leur miniaturisation leur permet d'effectuer des mesures dans des espaces réduits, sans perturber localement le flux.

Les chambres à fission appartiennent à la grande famille des détecteurs à ionisation. Il en existe de nombreuses géométries (planes, spirales, etc.), mais les plus utilisées restent les chambres cylindriques. Ces chambres sont constituées de deux électrodes coaxiales (anode et cathode) séparées par un gaz de remplissage. Ce gaz est généralement de l'argon, confiné dans une enceinte étanche à des pressions de l'ordre d'une à quelques dizaines d'atmosphères (cf. figure 1).

Les chambres servant principalement à la mesure du flux neutronique, on recouvre à cet effet leur anode d'un dépôt fissile. Les neutrons qui traversent la chambre y induisent des réactions de fission. Chaque réaction s'accompagne de l'émission de deux produits de fission, éjectés à  $180^\circ$  l'un de l'autre avec des énergies de plusieurs dizaines de MeV (90 MeV chacun en moyenne pour l'uranium 235). L'un ira s'implanter dans l'anode, tandis que le deuxième traversera l'espace inter électrodes en ionisant sur son passage le gaz de remplissage. Chaque ionisation créera une paire de charges, majoritairement un électron et un ion  $\text{Ar}^+$ , qui pourront ensuite migrer à l'intérieur du détecteur. Pour collecter les charges, on génère un champ électrique en appliquant une différence de potentiel aux bornes des électrodes.

Lorsque le flux de neutrons ambiant est faible, les chambres à fission sont utilisées en mode « impulsion », où chaque fission est comptée événement par événement, charge après charge. Au delà de  $10^{12} \text{ n.cm}^{-2}.\text{s}^{-1}$  toutefois, l'empilement des impulsions devient significatif. Pour calculer le flux, on exploite alors les propriétés statistiques du signal telles que la variance.

Cette méthode d'analyse est appelée mode « fluctuation » et reste généralement efficace tant que le flux ne dépasse pas  $10^{13}$  n.cm<sup>-2</sup>.s<sup>-1</sup> (pour des chambres de tailles millimétriques avec des dépôts de quelques microgrammes d'uranium 235).

Dans le cadre des projets MINI-INCA [1, 2 et 3] et MEGAPIE, nous exploitons des chambres à fission millimétriques de géométrie cylindrique (type CFUT-C3<sup>6</sup>, cf. figure 1), adaptées pour résister à des températures élevées et des flux neutroniques extrêmes de l'ordre de  $10^{15}$  n.cm<sup>-2</sup>.s<sup>-1</sup>. A ce niveau de flux, l'empilement des impulsions devient tel qu'une acquisition en mode « courant » est incontournable. Le déplacement des charges en direction des électrodes induit en effet un courant électrique mesurable sans étage d'amplification.

Le tracé de ce courant en fonction de la tension appliquée aux bornes des électrodes donne une courbe caractéristique, appelée courbe de calibration (cf. figure 2). Dans des flux neutroniques de l'ordre de  $10^{13}$ - $10^{14}$  n.cm<sup>-2</sup>.s<sup>-1</sup> (taux de fission inférieur à  $10^9$  f.s<sup>-1</sup>), cette courbe présente un plateau de saturation, où le courant délivré par la chambre présente le double avantage d'être directement proportionnel au flux de neutrons ambiant, tout en restant indépendant de la tension appliquée aux bornes des électrodes. Au delà de  $10^{15}$  n.cm<sup>-2</sup>.s<sup>-1</sup> toutefois (taux de fission supérieur à  $5 \cdot 10^9$  f.s<sup>-1</sup>), on observe une déformation importante de la forme des courbes de calibration, accompagnée d'une disparition de la zone de saturation. En conséquence, le régime de fonctionnement devient ambigu, ce qui induit une erreur préjudiciable sur la détermination du flux. Ce phénomène trouve son explication dans les processus physiques qui régissent la réponse de ce type de détecteur, tel l'impact des charges d'espace sur les processus de recombinaison. Afin de garantir une mesure précise, et pour réussir l'adaptation des détecteurs aux conditions d'irradiation de MEGAPIE et de l'ILL, nous avons développé une modélisation complète dont le but était la compréhension et la prédiction de leur fonctionnement en mode courant.

L'étude présentée dans les chapitres suivants fait le lien entre la réponse du détecteur (courant au plateau de saturation et forme de la courbe de calibration) et son taux de fission, la nature et la pression de son gaz de remplissage, sa géométrie et la tension appliquée à ses électrodes. De plus, nous avons inclus l'influence des atomes excités, des polluants, de l'émission d'électrons secondaires et des phénomènes de charges d'espace.

---

<sup>6</sup> Ce modèle est fabriqué par la société PHOTONIS.

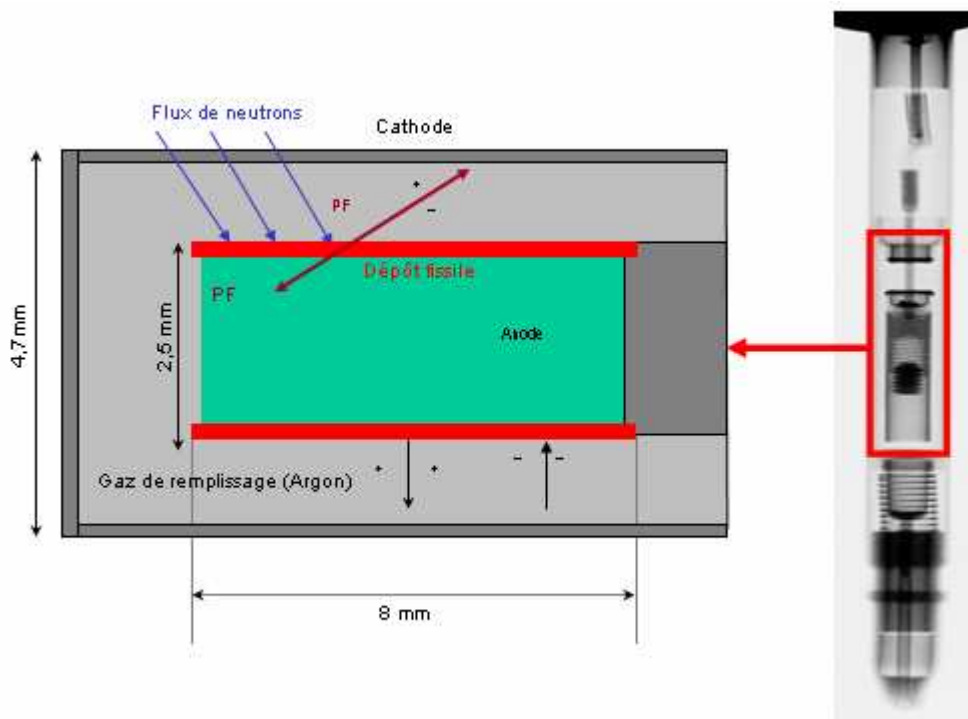


Figure 1 : Structure et fonctionnement d'une chambre à fission cylindrique CFUT-C3.

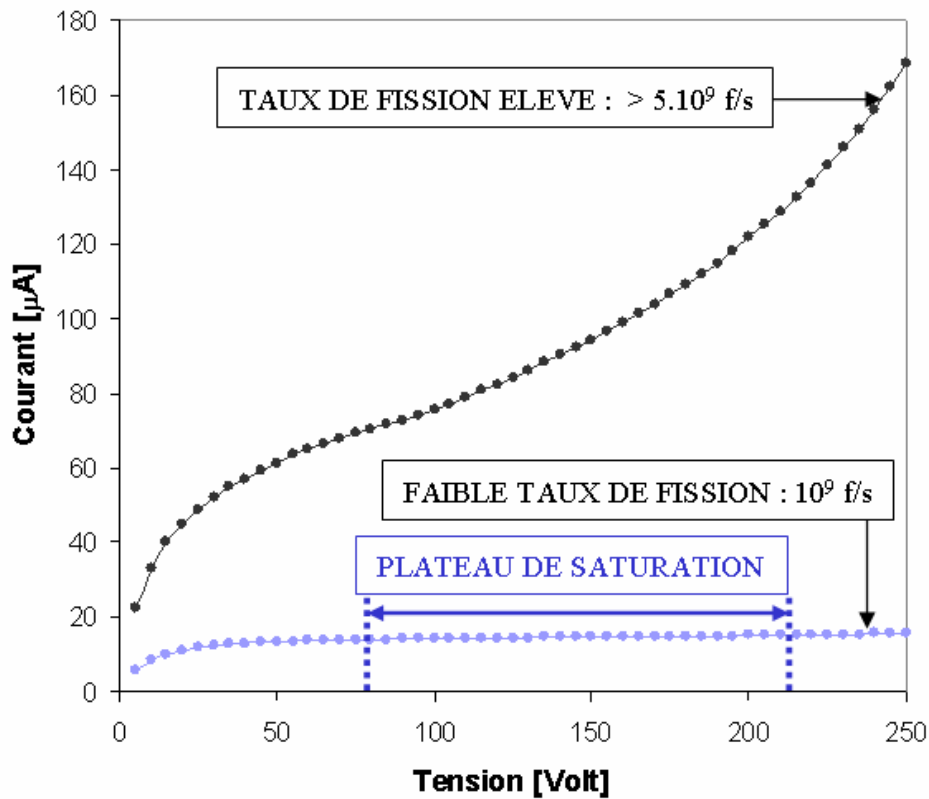


Figure 2 : Exemples de courbes de calibration obtenues avec des chambres CFUT-C3 à différents taux de fission au RHF de l'ILL. On observe à bas taux de fission la présence d'un plateau de saturation où le courant délivré est indépendant de la tension et dépend du taux de fission.



# CHAPITRE II

## Equations de base et formules analytiques

Au cours de nos campagnes de tests au RHF (cf. chapitre VII), nous avons constaté que les réponses caractéristiques des chambres sont perturbées dans des flux de neutrons élevés. Elles diffèrent significativement de celles observées dans des conditions de fonctionnement standard. De plus, nous avons également vérifié que la pression du gaz de remplissage et le rayon des électrodes influencent la réponse des chambres. En conséquence, nous avons développé un modèle physique pour comprendre et prédire l'évolution des courbes de calibration dans des conditions de fonctionnement standard comme extrêmes.

Cette approche [5] est décrite dans les paragraphes qui suivent. Dans un premier temps, nous avons établi les équations de base utilisées pour modéliser le fonctionnement des chambres à fission en mode courant. Nous avons ensuite appliqué ce cadre théorique au calcul des courbes de calibration en fonction de paramètres tels que la valeur du flux de neutrons, la pression du gaz de remplissage ou la géométrie des électrodes.

### II.1) Modélisation des chambres à fission

Dans la suite, nous considérerons une chambre cylindrique standard, type CFUT-C3. Son anode est recouverte d'un dépôt d'uranium.

#### II.1.A) Calcul de la densité de charges créée par les produits de fission

Nous nous attacherons dans cette partie à évaluer la densité  $N$  de paires électron – ion créée par seconde par les produits de fission au cours de leur traversée de l'espace inter électrodes. Pour simplifier les calculs, nous poserons tout d'abord  $N_{fst}$ , nombre de produits de fission éjectés par seconde et par unité de surface de l'anode. En géométrie cylindrique, on a :

$$N_{fst} = \frac{\tau_f}{2\pi R_1 h} \quad (\text{II.1.1})$$

où  $h$  est la longueur du dépôt d'uranium qui recouvre partiellement l'anode.  $R_1$  est le rayon de l'anode.  $\tau_f$  est le taux de fission, c'est-à-dire le nombre de fissions qui se produisent chaque seconde dans le dépôt. Nous poserons également  $X(d)$ , nombre moyen de paires créées par un produit de fission par unité de longueur parcourue dans le gaz.  $X$  varie avec  $d$ , la distance parcourue par le produit de fission dans l'espace inter électrodes.

Une première approximation de calcul consiste à supposer que tous les produits de fission quittent l'anode avec une vitesse  $\underline{v}$  purement radiale. En coordonnées cylindriques,  $\underline{v}$  s'écrit  $v_r \underline{u}_r + v_\theta \underline{u}_\theta + v_z \underline{u}_z$  et cette hypothèse revient donc à fixer les composantes  $v_\theta$  et  $v_z$  à zéro. Dans

ce cadre simplifié, on obtient une expression de  $N$  en quelques lignes de calcul.  $N$  ne dépend plus que de la coordonnée radiale  $r$  et s'écrit en géométrie cylindrique :

$$N(r) = \frac{N_{fst} R_1 X(r')}{r} \quad (\text{II.1.2})$$

avec :  $r' = r - R_1$ .

Une deuxième approche, développée par Poujade et Lebrun [6], consiste à supposer que tous les produits de fission quittent le dépôt dans le plan perpendiculaire à l'axe de symétrie de l'anode. Cela revient à fixer uniquement  $v_z$  à zéro. Ils démontrent alors que  $N$  ne dépend une fois de plus que de  $r$  et s'écrit :

$$N(r) = \int_{-\arccos(R_1/r)}^{\arccos(R_1/r)} \frac{N_{fst}}{\pi} X(r') \frac{R_1 (r \cos(\theta) - R_1)}{r^2 + R_1^2 - 2rR_1 \cos(\theta)} d\theta \quad (\text{II.1.3})$$

avec :  $r' = \sqrt{R_1^2 + r^2 - 2rR_1 \cos(\theta)}$

Si la distance  $d$  parcourue par un produit de fission est petite devant sa distance d'arrêt,  $X(d)$  reste à peu près constant le long de la trajectoire. On a ainsi  $X(d) \approx X_0$ . Dans ce cadre, l'intégrale (II.1.3) peut se calculer et nous obtenons l'expression suivante :

$$N(r) = \frac{2}{\pi} N_{fst} X_0 \arctan\left(\frac{R_1}{\sqrt{r^2 - R_1^2}}\right) \quad (\text{II.1.4})$$

On vérifiera que :

$$\begin{cases} N(r) \xrightarrow{r \rightarrow +\infty} \frac{2}{\pi} \frac{N_{fst} X_0 R_1}{r} \\ N(r) \xrightarrow{r \rightarrow R_1} N_{fst} X_0 \end{cases} \quad (\text{II.1.5})$$

Les deux premières approches portaient d'approximations et conduisaient à des expressions (relativement) simples de  $N$ . Nous allons maintenant nous attacher au calcul exact de  $N$ .

Soit  $N_{ft}$ , le nombre de produits de fission éjectés par seconde par un élément infinitésimal de surface  $dS$  de l'anode.  $N_{ft}$  s'écrit en coordonnées cylindriques :

$$N_{ft} = N_{fst} R_1 dz' d\theta' \quad (\text{II.1.6})$$

où  $(R_1, \theta', z')$  sont les coordonnées cylindriques de  $dS$ . Le nombre de paires électron – ion créées :

- par seconde,
- par élément de surface  $dS$ ,
- dans le volume infinitésimal  $d\tau$  autour du point  $P(r, \theta, z)$  (cf. figure 3),

est donné par :

$$d^2 N = N_{ft} X(r') dr' \frac{d\Omega}{2\pi} \quad (\text{II.1.7})$$

où  $d\Omega$  est l'angle solide correspondant au volume  $d\tau$  vu depuis l'élément  $dS$ .  $r'$  est la distance entre le point P et l'élément  $dS$ . En coordonnées sphériques, on a :

$$\begin{cases} d\tau = r'^2 \sin(\varphi) dr' d\varphi d\psi \\ d\Omega = \sin(\varphi) d\varphi d\psi \end{cases} \quad (\text{II.1.8})$$

et  $d^2 N$  devient alors :

$$d^2 N = \frac{N_{ft} X(r') \sin(\varphi) dr' d\varphi d\psi}{2\pi} \quad (\text{II.1.9})$$

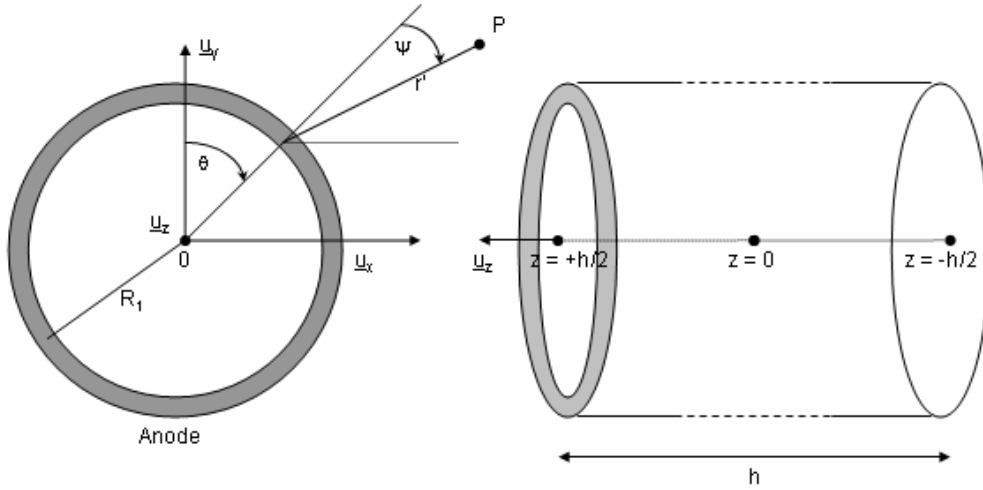


Figure 3 : Schéma d'une anode et de son dépôt.

On obtient la densité de paires  $dN$  créée autour du point P par l'élément  $dS$  en divisant  $d^2 N$  par  $d\tau$ :

$$dN = \frac{d^2 N}{d\tau} = \frac{N_{ft} X(r')}{2\pi r'^2} = \frac{N_{fst} R_1 X(r') dz' d\theta'}{2\pi r'^2} \quad (\text{II.1.10})$$

En coordonnées cylindriques,

$$r' = \sqrt{R_1^2 + r^2 - 2rR_1 \cos(\theta' - \theta) + (z - z')^2} \quad (\text{II.1.11})$$

et donc :

$$dN(r, \theta, z) = \frac{N_{fst} R_1 X(r') dz' d\theta'}{2\pi (R_1^2 + r^2 - 2rR_1 \cos(\theta' - \theta) + (z - z')^2)} \quad (\text{II.1.12})$$

Il suffit alors d'intégrer sur la surface de l'anode pour obtenir  $N(r, z)$ , densité de paires créées par seconde par les produits de fission :

$$\begin{aligned}
 N(r, z) &= \int_{\theta' = -\arccos(R_1/r) + \theta}^{\arccos(R_1/r) + \theta} \int_{z' = -h/2}^{h/2} \frac{N_{fst} R_1 X(r')}{2\pi} \frac{dz' d\theta'}{(R_1^2 + r^2 - 2rR_1 \cos(\theta' - \theta) + (z - z')^2)} \\
 &= \int_{\theta' = -\arccos(R_1/r)}^{\arccos(R_1/r)} \int_{z' = -h/2}^{h/2} \frac{N_{fst} R_1 X(r')}{2\pi} \frac{dz' d\theta'}{(R_1^2 + r^2 - 2rR_1 \cos(\theta') + (z - z')^2)}
 \end{aligned} \quad (\text{II.1.13})$$

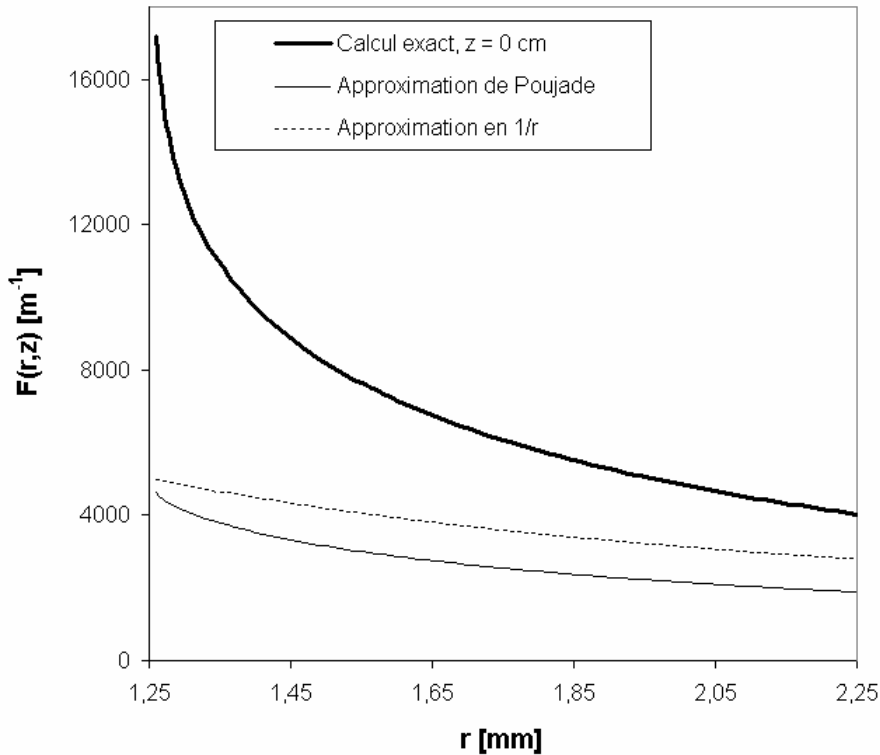
Si on suppose  $X(r') \approx X_0$  (cf. plus haut), on peut sortir le paramètre  $X$  de l'intégrale et écrire finalement :

$$N(r, z) = \frac{N_{fst} R_1 X_0}{2\pi} F(r, z) \quad (\text{II.1.14})$$

avec :

$$F(r, z) = \int_{\theta' = -\arccos(R_1/r)}^{\arccos(R_1/r)} \int_{z' = -h/2}^{h/2} \frac{dz' d\theta'}{(R_1^2 + r^2 - 2rR_1 \cos(\theta') + (z - z')^2)} \quad (\text{II.1.15})$$

Pour  $h = 1$  cm et  $R_1 = 1,25$  mm, nous avons représenté sur les figures 4 à 6 la fonction  $F(r, z)$ , tracée en fonction de  $r$  et de  $z$ .



**Figure 4** : Comparaison entre la formule exacte de  $F$ , l'approximation en  $1/r$  et l'expression de Poujade. ( $R_1 = 1,25$  mm,  $h = 1$  cm).

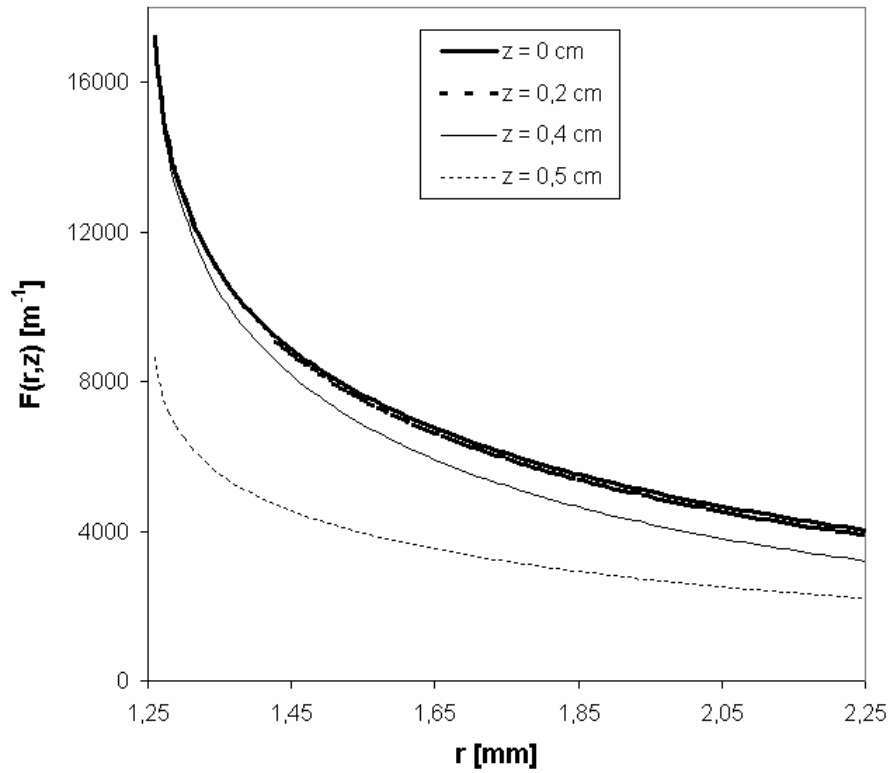


Figure 5 : Evolution de  $F(r, z)$  avec  $r$  pour différents  $z$ . ( $R_l = 1,25$  mm,  $h = 1$  cm).

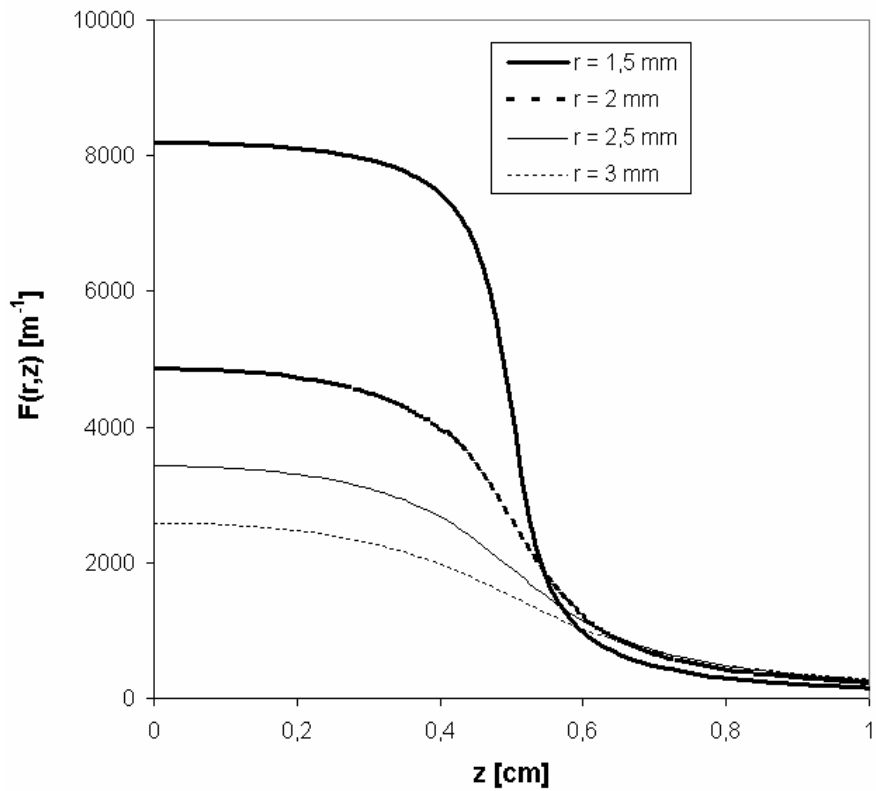


Figure 6 : Evolution de  $F(r, z)$  avec  $z$  pour différents  $r$ . ( $R_l = 1,25$  mm,  $h = 1$  cm).

On remarquera sur la figure 4 que l'expression de Pujade ou l'approximation en  $1/r$  conduisent à une sous-estimation conséquente du nombre de paires créées. Toutefois, l'expression exacte de  $F(r, z)$  est complexe et difficile à manipuler. De plus, la composante en  $z$  rajoute une dimension quasi-inutile. On constate en effet sur les figures 5 et 6 que  $F(r, z)$  reste très proche de  $F(r, 0)$  dans la zone du dépôt (c'est-à-dire tant que  $-h/2 < z < h/2$ ), puis chute rapidement au delà. En conséquence, nous modifierons l'expression de  $F$  pour éliminer la composante en  $z$  et nous limiter à un problème unidimensionnel en  $r$ . Nous définirons ainsi :

$$\langle F \rangle(r, z) = \begin{cases} F(r) = \frac{1}{h} \int_{z_{\min}}^{z_{\max}} F(r, z) dz & \text{dans la zone du dépôt (i.e. pour } z \in [-h/2, h/2]) \\ 0 & \text{en dehors de la zone du dépôt (i.e. pour } z \leq -h/2 \text{ et } z \geq h/2) \end{cases} \quad (\text{II.1.16})$$

où  $z_{\min}$  et  $z_{\max}$  définissent les bornes en  $z$  de l'espace inter électrodes (cf. figure 7). Nous poserons ensuite :

$$N(r, z) = \begin{cases} N(r) = \frac{N_{fst} R_1 X_0}{2\pi} F(r) & \text{dans la zone du dépôt} \\ 0 & \text{en dehors de la zone du dépôt} \end{cases} \quad (\text{II.1.17})$$

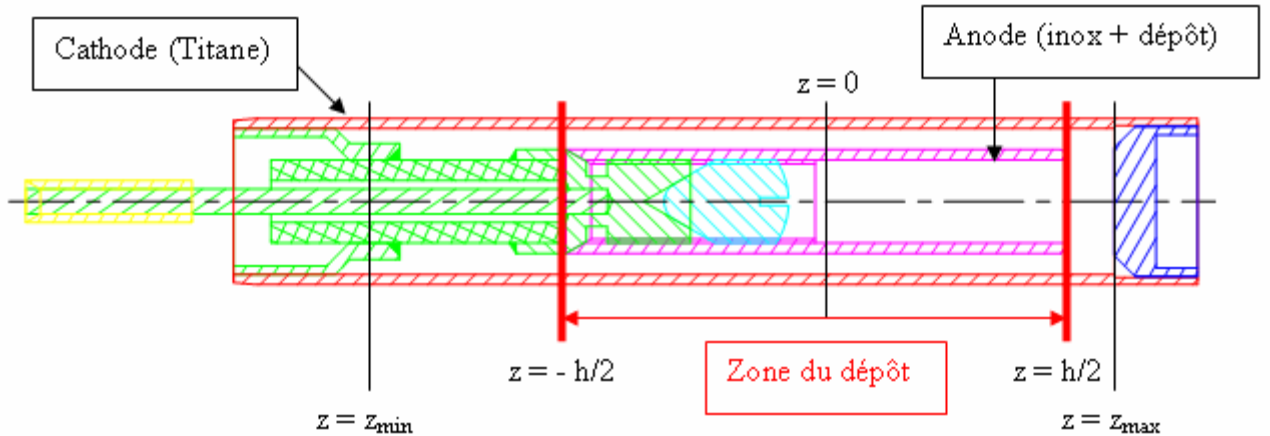


Figure 7 : Schéma d'une chambre CFUT-C3.

Pour une chambre CFUT-C3,  $z_{\min}$  et  $z_{\max}$  valent respectivement -1,045 cm et 0,71 cm. On obtient alors les évolutions de  $\langle F \rangle$  et  $F(r)$  présentées figures 8 à 10.

On vérifiera à partir de (II.1.16) que :

$$\int_{z_{\min}}^{z_{\max}} \langle F \rangle(r, z) dz = \int_{z_{\min}}^{z_{\max}} F(r, z) dz = hF(r) \quad (\text{II.1.18})$$

Par la suite, nous montrerons également dans la section II.2.A.b que l'erreur induite par cette approximation sur le courant à la saturation est nulle. On remarquera enfin que  $F(r)$  est très proche de  $F(r, 0)$  sur une large plage en  $r$  (cf. figure 9).

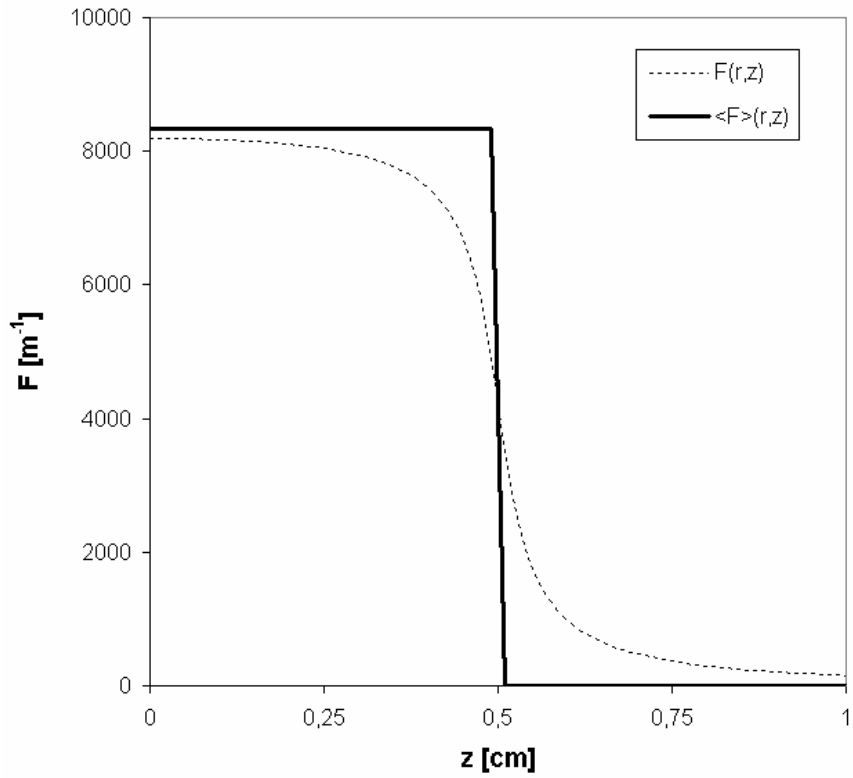


Figure 8 : Evolution de  $F(r, z)$  et de  $\langle F \rangle(r, z)$  avec  $z$ . ( $R_I = 1,25$  mm,  $h = 1$  cm).

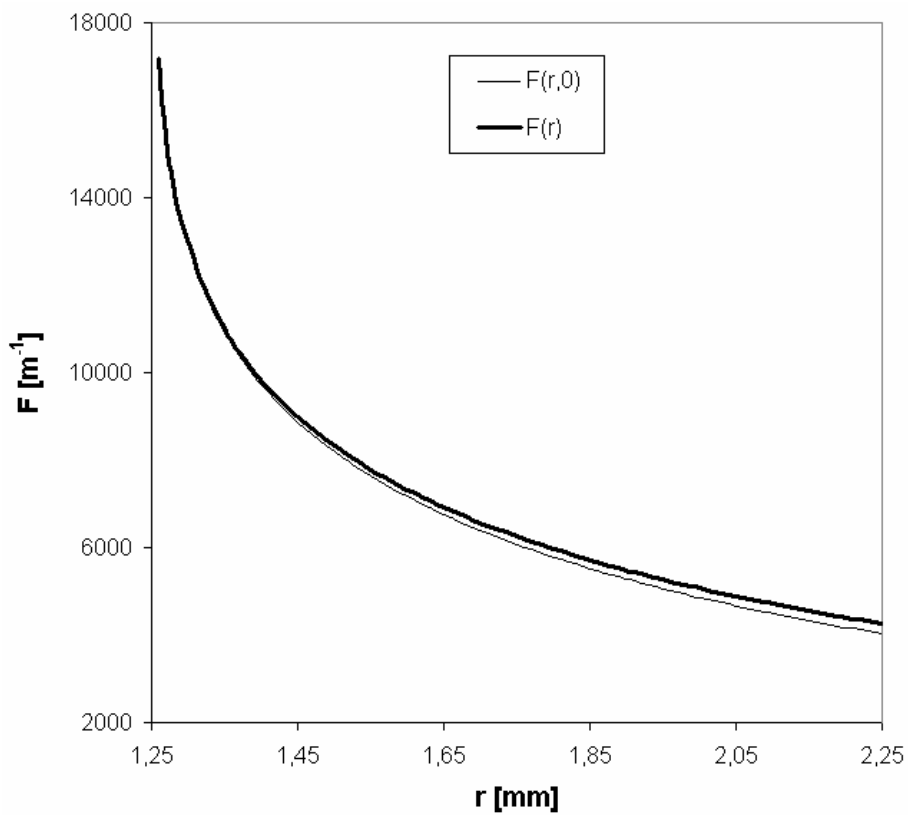


Figure 9 : Evolution de  $F(r, 0)$  et de  $F(r)$  avec  $r$ . ( $R_I = 1,25$  mm,  $h = 1$  cm).

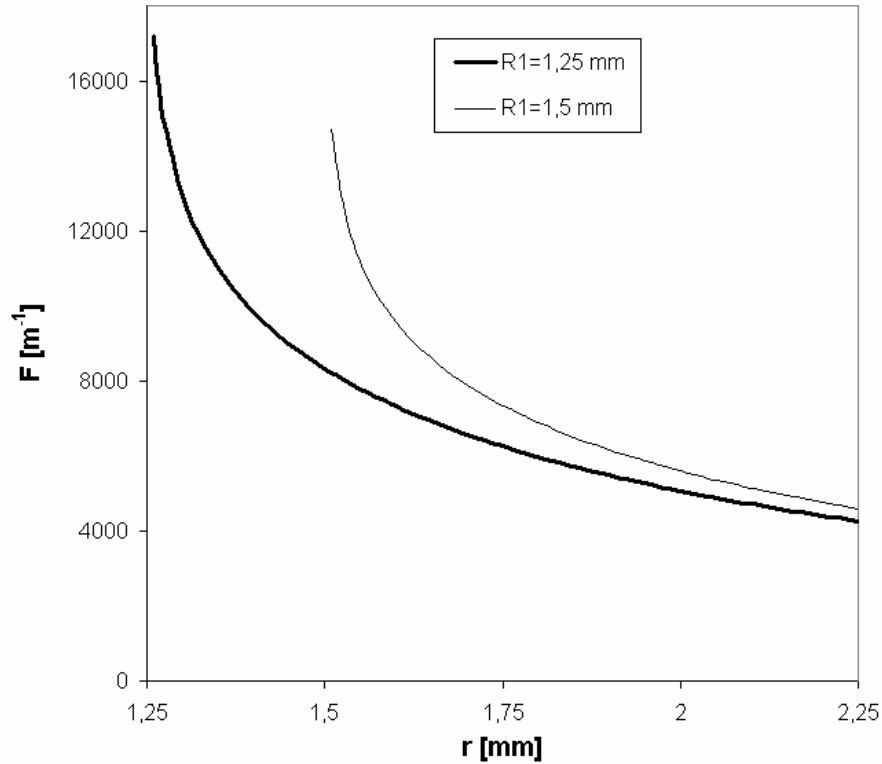


Figure 10 : Evolution de  $F(r)$  avec  $r$  pour différents rayons  $R_l$ . ( $h = 1$  cm).

### II.1.B) Coefficient $X_0$

Le coefficient  $X_0$  (cf. section II.1.A) correspond au nombre de paires de charges créées par unité de distance parcourue par un produit de fission. En utilisant le logiciel SRIM [7], nous avons obtenu pour l'argon :

$$X_0 = 1,8 \times 10^8 \times P_{[\text{bar}]} \text{ paires.m}^{-1} \quad (\text{II.1.19})$$

lorsque la chambre est remplie à température ambiante ( $T = 300$  K).  $P$  est la pression du gaz donnée en bar. Ce résultat est proche de la valeur préconisée par le rapport ICRU [8] qui vaut environ  $2.10^8 \times P_{[\text{bar}]}$  paires.m<sup>-1</sup>. Les calculs SRIM ont été effectués en moyennant les pertes d'énergie dans le gaz sur la distribution complète des produits de fission de l'uranium 235. Dans de l'argon, l'énergie moyenne  $W$  nécessaire pour former une paire vaut [8] :

$$W = \begin{cases} 26,4 \text{ eV pour des } \alpha \text{ de } 5,3 \text{ MeV} \\ 26,66 \text{ eV pour des protons de } 1,8 \text{ MeV} \\ 26,4 \pm 0,5 \text{ eV en moyenne pour des électrons} \end{cases} \quad (\text{II.1.20})$$

En absence de données pour les produits de fission, nous avons supposé que la valeur de  $W$  correspondante valait 26,4 eV. Si l'on pose maintenant :

- $E_i$ , énergie moyenne dépensée par un produit de fission pour la production d'un ion,
- $n$ , le nombre total d'électrons créés,



- $n_{ex}$ , le nombre total d'atomes excités produits,
- $E_{ex}$ , l'énergie moyenne des niveaux atomiques excités,
- $\varepsilon$ , l'énergie cinétique moyenne des électrons qui sont trop lents pour exciter ou ioniser à leur tour un atome gazeux.
- $I$ , potentiel de première ionisation (15,75 eV pour l'argon)

On écrit alors :

$$\frac{W}{I} = \frac{E_i}{I} + \frac{E_{ex}}{I} \frac{n_{ex}}{n} + \frac{\varepsilon}{I} \quad (\text{II.1.21})$$

Pour des particules qui traversent le gaz avec des énergies élevées (c'est le cas des produits de fission), on obtient pour les gaz rares [8] :

$$\begin{cases} W/I \approx 1,7 - 1,8 \\ n_{ex}/n \approx 0,4 - 0,5 \\ \varepsilon/I \approx 0,3 \end{cases} \quad (\text{II.1.22})$$

On remarque ainsi que l'on crée en moyenne un atome excité pour deux électrons produits. De plus, Behle et al [9] donnent plusieurs seuils en énergie pour quelques réactions  $\text{Ar} + e^-$  (cf. tableau 1).

Réactions	Seuil [eV]
$\text{Ar} + e^- \rightarrow \text{Ar}^+ + 2 e^-$	15,75
$\text{Ar}^+ + e^- \rightarrow \text{Ar}^{2+} + e^-$	19,22
$\text{Ar}^+ + e^- \rightarrow \text{Ar}^{2+} + 2 e^-$	34,98

**Tableau 1 :** Seuils en énergie pour quelques réactions  $\text{Ar} + e^-$ .

Les réactions qui conduisent à la formation des ions  $\text{Ar}^{+*}$  et  $\text{Ar}^{2+}$  sont des réactions du second ordre. En les négligeant, on obtient  $E_i \approx I$  ( $E_i/I = 1,06$  pour l'hélium) et on écrit pour les gaz rares :

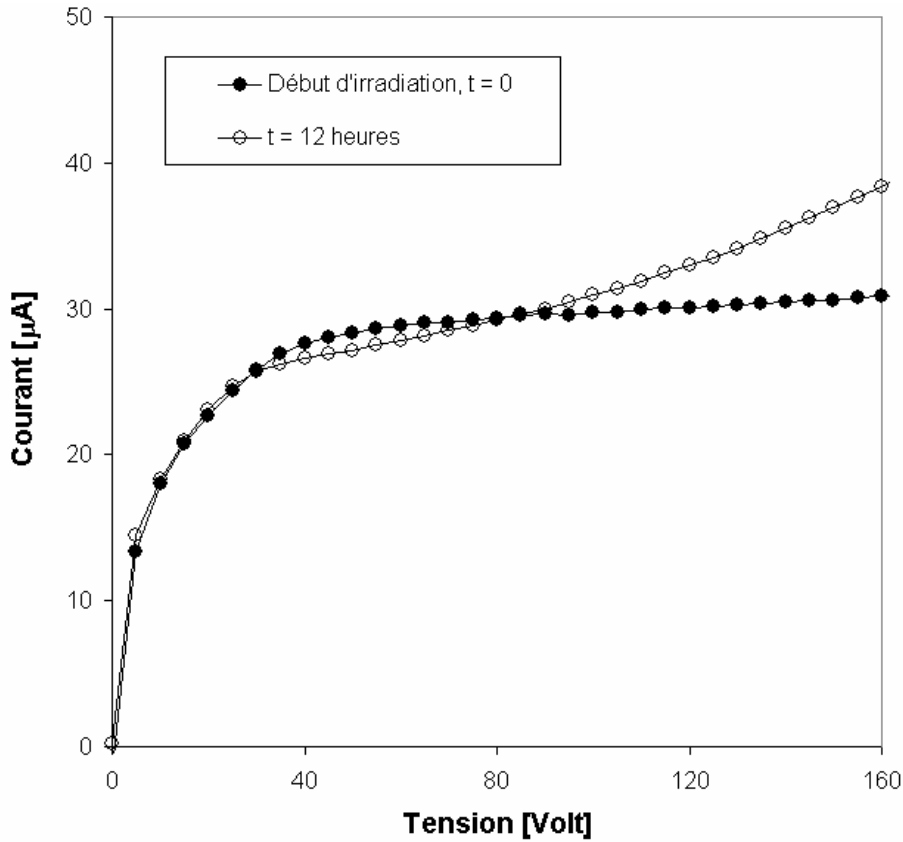
$$\frac{W}{I} = 1,3 + 0,45 \times \frac{E_{ex}}{I} \quad (\text{II.1.23})$$

Espèces gazeuses	W [eV]
Argon pur	26,4
Argon + 0,5 % $\text{C}_2\text{H}_2$	20,3
Argon + eau (traces)	25,2
Argon + $\text{O}_2$ (traces)	26

**Tableau 2 :** Impact de quelques polluants sur le coefficient  $W$  de l'argon.

Par ailleurs, le rapport ICRU présente l'évolution du coefficient  $W$  de l'argon après adjonction de plusieurs polluants (cf. tableau 2). On vérifiera ainsi sur la figure 11 qu'une contamination en eau engendre une augmentation artificielle du nombre de paires créées, et donc du courant délivré par le détecteur. On notera également que l'ajout de krypton ou d'air entraîne une diminution de  $W$ . Dans de l'hélium à un bar, l'ajout de 1 % de xénon, d'argon, de krypton ou

de CO<sub>2</sub> entraîne une augmentation de  $X_0$  d'un facteur 1,4 à 1,5. Une concentration de 0,00249 % d'argon dans de l'hélium à un bar provoque une diminution de son coefficient  $W$  de 4 eV. L'ajout de 0,0985 % d'argon dans ce même hélium s'accompagne d'une chute de  $W$  de 15 eV.



**Figure 11** : Impact d'une contamination en eau sur la forme d'une courbe de calibration. Irradiation au RHF d'une chambre CFUT-C3 dont le dépôt d'uranium n'a pas été dégazé. Le flux de neutrons vaut  $1,07 \cdot 10^{15} \text{ n.cm}^{-2}.\text{s}^{-1}$ .

L'augmentation importante du nombre de paires créées en présence de quantités, mêmes faibles, de polluants porte le nom d'effet Jesse. Nous reviendrons sur cette perturbation au paragraphe III.2.

### II.1.C) Equations de base

Le transport des charges à l'intérieur de la chambre obéit à quelques équations de base. Posons  $\rho_e$  et  $\rho_a$ , densités électriques associées respectivement aux électrons et aux ions argon. Introduisons également  $\langle \underline{v}_e \rangle$  et  $\langle \underline{v}_a \rangle$ , les vitesses de dérive moyennes des électrons et des ions. Les équations de conservation de la charge s'écrivent alors :

$$\begin{cases} \frac{\partial n_e}{\partial t} + \text{div}(\rho_e \langle \underline{v}_e \rangle) = t_{SOURCE}^e - t_{PERTES}^e \\ \frac{\partial n_a}{\partial t} + \text{div}(\rho_a \langle \underline{v}_a \rangle) = t_{SOURCE}^a - t_{PERTES}^a \end{cases} \quad (\text{II.1.24})$$

Les termes  $t_{SOURCE}$  et  $t_{PERTES}$  sont, comme l'indiquent leurs noms, les termes de création et de disparition. Ils représentent les densités de charges qui sont créées ou détruites par unité de temps dans le gaz. Nous nous attarderons un peu plus loin sur leurs expressions.

En mode courant, les chambres fonctionnent en régime permanent. Les temps caractéristiques d'acquisition sont en effet très supérieurs aux temps de parcours des charges. Les dérivées temporelles du système (II.1.24) s'annulent et il reste :

$$\begin{cases} \text{div}(\rho_e \langle \underline{v}_e \rangle) = t_{SOURCE}^e - t_{PERTES}^e \\ \text{div}(\rho_a \langle \underline{v}_a \rangle) = t_{SOURCE}^a - t_{PERTES}^a \end{cases} \quad (\text{II.1.25})$$

Dans une chambre cylindrique classique, l'anode et la cathode sont deux cylindres coaxiaux de rayons respectifs  $R_1$  et  $R_2$  (cf. figure 7). On applique une tension  $\Delta V$  entre l'anode et la cathode. Cette différence de potentiel engendre un champ électrique  $\underline{E}$ , qui obéit à l'équation de Maxwell-Gauss et s'écrit :

$$\begin{cases} \text{div}(\underline{E}) = \frac{\rho_e + \rho_a}{\epsilon_0} \\ \int \underline{E} \cdot d\underline{l} = \Delta V \end{cases} \quad (\text{II.1.26})$$

En géométrie cylindrique, si l'on suppose que les densités  $\rho_e$  et  $\rho_a$  ne dépendent que de la coordonnée radiale  $r$  (cf. paragraphe II.1.A), on écrit alors :

$$\begin{cases} \underline{E} = E(r) \underline{u}_r \\ \frac{1}{r} \frac{\partial}{\partial r} r E(r) = \frac{\rho_e(r) + \rho_a(r)}{\epsilon_0} \\ \int_{R_1}^{R_2} E(r) dr = \Delta V \end{cases} \quad (\text{II.1.27})$$

Le champ  $\underline{E}$  est dirigé vers la cathode. Les ions migrent donc vers la cathode tandis que les électrons se dirigent vers l'anode. Par conséquent, nous avons :

$$\begin{cases} \langle \underline{v}_e \rangle(r) = -v_e(r) \underline{u}_r \\ \langle \underline{v}_a \rangle(r) = +v_a(r) \underline{u}_r \end{cases} \quad (\text{II.1.28})$$

Et on obtient le système suivant :

$$\begin{cases} -\frac{1}{r} \frac{\partial}{\partial r} r \rho_e v_e = t_{SOURCE}^e - t_{PERTES}^e \\ \frac{1}{r} \frac{\partial}{\partial r} r \rho_a v_a = t_{SOURCE}^a - t_{PERTES}^a \end{cases} \quad (\text{II.1.29})$$

où  $v_e$  et  $v_a$  sont respectivement les projections radiales moyennes de la vitesse des électrons et des ions argon. Elles sont fonctions du champ électrique  $E$ .

Au cours de cette étude, nous avons considéré uniquement les ions argon une fois ionisé, noté  $Ar^+$ . Les autres espèces ioniques sont produites au cours de réactions secondaires et demandent par ailleurs plus d'énergie à la création (cf. paragraphe II.1.B). Elles seront présentes dans le gaz, mais en quantités négligeables. Le système (II.1.29) se réduit ainsi à deux équations uniquement, au lieu d'une équation pour les électrons et une pour chaque espèce d'ions  $Ar^{n+}$ . D'autres part, les valeurs absolues des termes de création et de pertes pour les électrons et les ions  $Ar^+$  deviennent égales, la disparition d'une charge moins (un électron) entraînant obligatoirement celle d'une charge plus (un ion  $Ar^+$ ). Si l'on note maintenant :

$$\begin{cases} \rho_e = -en_e \\ \rho_a = en_a \\ t_{SOURCE}^a = -t_{SOURCE}^e = eT_S \\ t_{PERTES}^a = -t_{PERTES}^e = eT_P \end{cases} \quad (II.1.30)$$

Le système (II.1.29) se réécrit :

$$\begin{cases} -\frac{1}{r} \frac{\partial}{\partial r} rn_e v_e = T_S - T_P \\ \frac{1}{r} \frac{\partial}{\partial r} rn_a v_a = T_S - T_P \end{cases} \quad (II.1.31)$$

Ce système nous permet donc de calculer les densités  $n_e(r)$  et  $n_a(r)$  des électrons et des ions dans le gaz. Les termes  $T_S$  et  $T_P$  correspondent ici aux densités de paires électron - ion respectivement créées et détruites par unité de temps dans l'espace inter électrodes.

Le courant  $I$  délivré par la chambre s'écrit :

$$I = \iint_S (-en_e v_e + en_a v_a) \cdot d\underline{S} \quad (II.1.32)$$

On peut vérifier que le courant  $I$  est une constante du système (II.1.31). En géométrie cylindrique, l'expression (II.1.32) peut se réécrire de la manière suivante :

$$I = 2\pi h e (rn_e v_e + rn_a v_a) \quad (II.1.33)$$

Les électrodes sont connectées à un réseau électrique et nous avons en régime permanent :

$$\begin{cases} n_e(r = R_2) = 0 \\ n_a(r = R_1) = 0 \end{cases} \quad (II.1.34)$$

L'expression (II.1.33) nous montre alors que :

$$I = 2\pi h e R_1 n_e(R_1) v_e(R_1) = 2\pi h e R_2 n_a(R_2) v_a(R_2) \quad (II.1.35)$$

Pour conclure, nous constaterons simplement que la résolution couplée des systèmes (II.1.27) et (II.1.31) nous donnera les grandeurs  $n_e(r)$ ,  $n_a(r)$  et  $E(r)$  en fonction de la tension appliquée aux bornes des électrodes. En utilisant les expressions (II.1.33) ou (II.1.35), nous sommes

maintenant en mesure de calculer le courant  $I$  délivré par une chambre à fission en fonction de la tension  $\Delta V$ , c'est-à-dire de tracer la courbe de calibration dans son intégralité.

### II.1.D) Termes source et termes de perte

Les termes  $T_S$  et  $T_P$  figurant dans le système (II.1.31) sont respectivement appelés termes source et termes de perte. Ils représentent les densités de paires de charges créées ou détruites par unité de temps à l'intérieur de la chambre.

#### II.1.D.a) Termes source

Le terme  $T_S$  est principalement la somme de deux contributions :

- un terme  $T_{S1}$  dû à l'ionisation du gaz par les produits de fission et donné par l'expression de  $N$  calculée au paragraphe II.1.A,
- un terme  $T_{S2}$  dû à l'ionisation secondaire du gaz par les électrons ayant acquis une énergie cinétique suffisante dans le champ électrique.

Le terme  $T_{S2}$  s'écrit classiquement :

$$T_{S2} = \alpha n_e v_e \quad (\text{II.1.36})$$

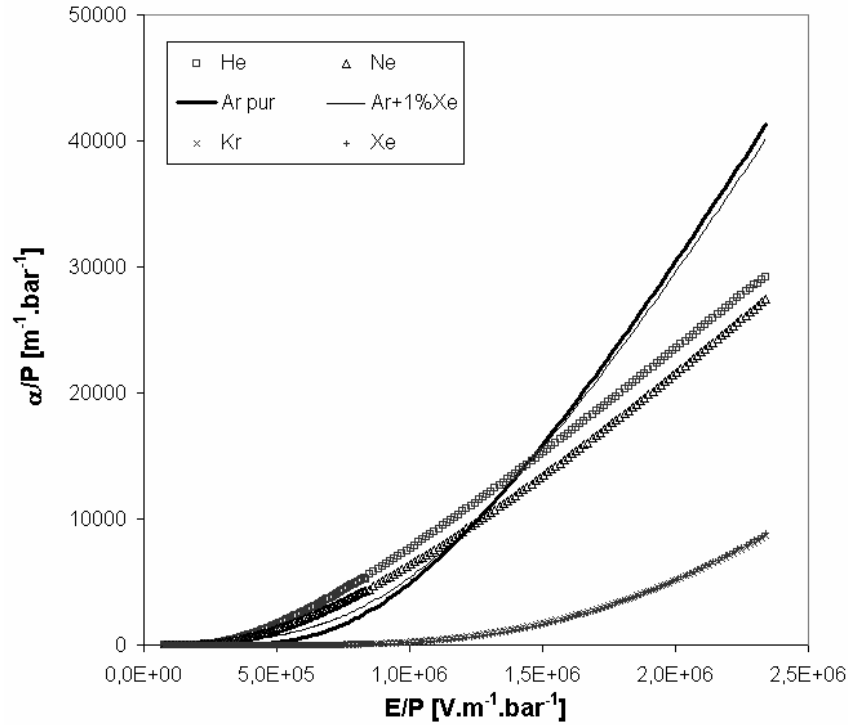
où  $\alpha$  est le coefficient de première ionisation de Townsend.

Lorsque les variations du champ électrique  $E$  sont faibles sur un libre parcours moyen d'un électron,  $\alpha$  est uniquement fonction de  $E$  et il existe de nombreuses formules théoriques ou semi-empiriques qui permettent son calcul sur des intervalles limités. Nous retiendrons notamment la formule de Townsend :

$$\alpha(E) = A e^{-\frac{B}{E}} \quad (\text{II.1.37})$$

Cette formule reproduit globalement les résultats expérimentaux et possède une justification physique. Les coefficients  $A$  et  $B$  peuvent en effet se calculer en fonction de grandeurs comme le libre parcours moyen  $l_0$  d'un électron dans le gaz ou encore la fraction moyenne d'énergie perdue par l'électron au cours d'une collision avec un atome (ou une molécule) de gaz. A. Zastawny [10] a effectué une compilation des valeurs prises par  $A$  et  $B$  pour plusieurs gaz purs et mélanges gazeux.

Lakshminarasimha et al [11] donnent quelques valeurs expérimentales de  $\alpha$  pour plusieurs gaz, dont l'argon. Néanmoins, la plupart des mesures et des expressions semi-empiriques de  $\alpha$  sont proposées pour des pressions de gaz faibles et des champs électriques limités. Pour obtenir une estimation correcte à pression atmosphérique et champ  $E$  élevé (cf. figure 12), nous avons été amené à utiliser le logiciel BOLSIG [12].



**Figure 12 :** Rapports du coefficient  $\alpha$  de première ionisation sur la pression  $P$  pour plusieurs gaz purs et mélanges gazeux (calculs BOLSIG).

### II.1.D.b) Termes de perte

Le terme  $T_p$  est essentiellement dû à la recombinaison des électrons avec les ions. Ces processus de capture se déroulent en trois étapes, classées par échelle de taille :

- initiale : l'électron éjecté se recombine avec l'ion dont il est issu. Onsager [13] propose une formule donnant la fraction de paires échappant à cette recombinaison initiale en fonction du champ électrique. Ce mode de recombinaison ne joue qu'à haute pression (10 à 100 atmosphères).
- en colonnes : les paires peuvent ensuite se recombinaison à l'intérieur des trajectoires ionisées laissées par les produits de fission dans le gaz. Ces traces présentent en effet des densités de charges élevées.
- volumique : le processus le plus général. Les électrons migrent dans le gaz sous l'effet du champ électrique et peuvent se recombinaison avec n'importe quel ion rencontré.

A des pressions de l'ordre de l'atmosphère, le processus dominant est la recombinaison volumique. Le terme  $T_p$  s'écrit ainsi :

$$T_p = kn_e n_a \quad (\text{II.1.38})$$

où  $k$  est appelé coefficient de recombinaison. L'estimation du coefficient  $k$  est difficile et il existe peu de données. Langevin (1903) donne une expression théorique de  $k$  :

$$k_{th} = \frac{4\pi(\mu_e + \mu_a)e}{\epsilon_0 \epsilon_r} \approx \frac{4\pi\mu_e(E)e}{\epsilon_0 \epsilon_r} \quad (\text{II.1.39})$$

La mobilité  $\mu_e$  des électrons est en effet très supérieure à la mobilité  $\mu_a$  des ions (cf. paragraphe II.1.G.a). Cette expression est valable quand le libre parcours moyen électronique  $l_0$  est petit devant une distance caractéristique  $a_0$  donnée par :

$$a_0 = \frac{e^2}{\varepsilon_r k_B T} \quad (\text{II.1.40})$$

où  $k_B$  est la constante de Boltzmann.  $\varepsilon_r$  vaut 1,00056 pour l'argon à une pression de 0,1 MPa [14]. Shinsaka et al [15] ont par la suite montré, pour un argon à une température  $T$  de 300 K et une pression  $P$  proche de 100 bar, que :

$$k_{\text{exp}} = 8,8 \times 10^{-3} k_{th} \quad (\text{II.1.41})$$

En imposant que le coefficient  $k$  varie en  $P^{1/2}$  [16], on dispose alors d'une évaluation grossière de  $k$  à des pressions plus faibles :

$$k = 8,8 \times 10^{-4} \sqrt{P_{[\text{bar}]}} k_{th} \quad (\text{II.1.42})$$

Pour des champs réduits  $E/P$  supérieurs à  $2 \cdot 10^5 \text{ V.m}^{-1} \cdot \text{bar}^{-1}$ ,  $\mu_e$  vaut environ  $3,5 \cdot 10^{-2} \text{ m}^2 \cdot \text{V}^{-1} \cdot \text{s}^{-1}$  à un bar. On dispose donc d'une estimation de  $k$  à 1 bar :  $k \approx 6,5 \cdot 10^{-12} \text{ m}^3 \cdot \text{s}^{-1}$ .

Biondi [17] mesure également :

- pour l'argon :  $k = 8,8 \cdot 10^{-13} \text{ m}^3 \cdot \text{s}^{-1}$  à  $P = 0,018 \text{ bar}$  et  $T = 300 \text{ K}$ ,
- pour le néon :  $k = 3,4 \cdot 10^{-13} \text{ m}^3 \cdot \text{s}^{-1}$  à  $P = 0,03 \text{ bar}$  et  $T = 300 \text{ K}$ .

En appliquant la loi en  $P^{1/2}$ , on obtient une deuxième estimation de  $k$  à un bar :  $k \approx 6,5 \cdot 10^{-12} \text{ m}^3 \cdot \text{s}^{-1}$ . On retrouve exactement la valeur extrapolée à partir des résultats de Shinsaka. Pour le néon, on obtiendrait à titre indicatif à un bar :  $k \approx 2,0 \cdot 10^{-12} \text{ m}^3 \cdot \text{s}^{-1}$ .

### II.1.E) Discussion sur la forme des courbes de calibration

En géométrie cylindrique, le courant  $I$  obéit aux égalités (II.1.33) et (II.1.35). Les densités  $n_e$  et  $n_a$  sont données par le système (II.1.31). En développant les expressions des termes source et de pertes, on obtient finalement :

$$\begin{cases} -\frac{1}{r} \frac{\partial}{\partial r} r n_e v_e = N - k n_e n_a + \alpha n_e v_e \\ \frac{1}{r} \frac{\partial}{\partial r} r n_a v_a = N - k n_e n_a + \alpha n_e v_e \end{cases} \quad (\text{II.1.43})$$

Ce système peut s'intégrer et l'on obtient :

$$I = 2\pi e h \int_{R_1}^{R_2} r (N - k n_e n_a + \alpha n_e v_e) dr \quad (\text{II.1.44})$$

L'équation (II.1.44) peut se découpler en trois contributions :

$$I = I_1 + I_2 + I_3$$

$$\left\{ \begin{array}{l} I_1 = 2\pi eh \int_{R_1}^{R_2} rN(r)dr \\ I_2 = -2\pi ehk \int_{R_1}^{R_2} rn_e n_a dr \\ I_3 = 2\pi eh \int_{R_1}^{R_2} \alpha(E(r))rn_e v_e dr \end{array} \right. \quad (\text{II.1.45})$$

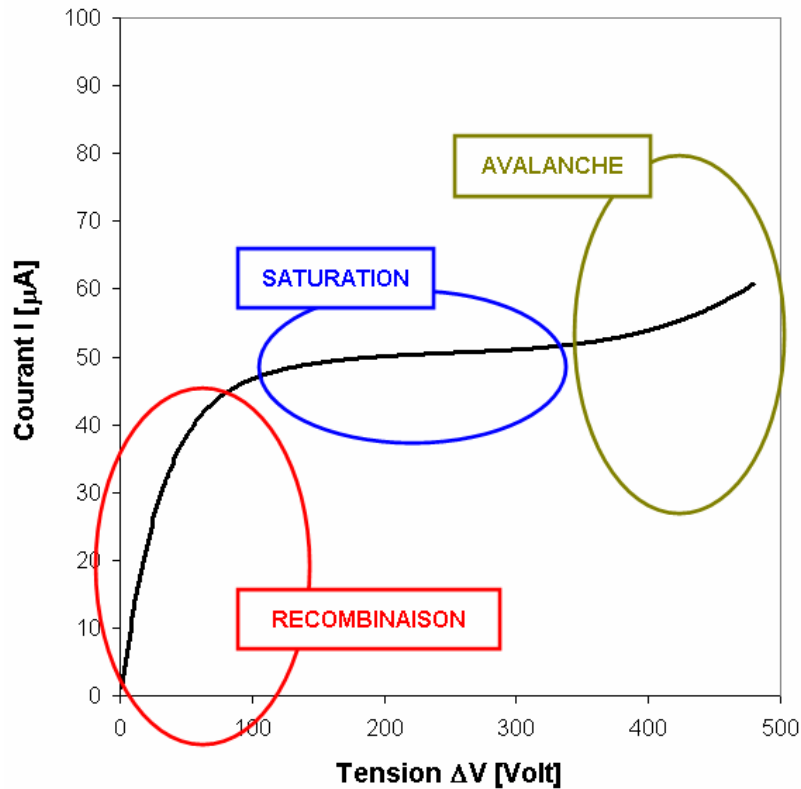


Figure 13 : Régime de recombinaison, de saturation et d'avalanche dans une courbe de calibration.

La contribution  $I_1$  est constante quelle que soit la tension  $\Delta V$  appliquée. Elle correspond à l'intensité délivrée dans une zone que l'on appelle communément « plateau de saturation » (cf. figure 13).

Si on diminue de manière conséquente la tension aux bornes des électrodes, le champ  $E$  se réduit et les charges, qui circulent de plus en plus lentement, s'accablent dans le gaz. Les densités  $n_e$  et  $n_a$  augmentent alors et le terme de recombinaison  $I_2$ , qui est négatif, prend de l'importance. Le courant délivré s'abaisse ainsi progressivement en dessous du courant de saturation  $I_1$ . Ce régime particulier est appelé « régime de recombinaison » et on peut effectivement l'observer à basse tension, à gauche de la zone de saturation (cf. figures 2 et 13).

De même, lorsque la tension augmente, le champ électrique  $E$  se renforce petit à petit. Le coefficient de première ionisation  $\alpha(E)$ , jusqu'ici quasi-nul, augmente alors lentement, jusqu'à



atteindre un seuil ( $E \approx 5 \cdot 10^5 \text{ V.m}^{-1}$  pour de l'argon à un bar) où sa croissance s'accélère brutalement (cf. figure 12). En conséquence, la contribution  $I_3$  et le courant  $I$  total augmentent rapidement. Cette augmentation rapide est appelée « régime d'avalanche » et encadre à droite le régime de saturation (cf. figures 2 et 13). Une courbe de calibration résulte donc d'un compromis entre trois régimes, recombinaison, saturation et avalanche, dont nous étudierons les paramètres clefs dans la suite de ce rapport.

### II.1.F) Charges d'espace et distorsion du champ électrique

Reprenons les équations qui gouvernent le champ électrique à l'intérieur d'une chambre cylindrique :

$$\begin{cases} \frac{1}{r} \frac{\partial}{\partial r} rE(r) = \frac{e}{\epsilon_0} (n_a(r) - n_e(r)) \\ \int_{R_1}^{R_2} E(r) dr = \Delta V \end{cases} \quad (\text{II.1.46})$$

La première équation s'intègre facilement et l'on obtient :

$$E = \frac{A}{r} + \frac{e}{r\epsilon_0} \int_{R_1}^r r(n_a - n_e) dr \quad (\text{II.1.47})$$

On montre alors que :

$$\begin{aligned} A &= \frac{\Delta V}{\ln(R_2/R_1)} - \frac{e}{\epsilon_0 \ln(R_2/R_1)} \int_{R_1}^{R_2} r \ln\left(\frac{R_2}{r}\right) (n_a - n_e) dr \\ &= R_1 E(R_1) \end{aligned} \quad (\text{II.1.48})$$

En absence de charges, on remarque que :  $A = \frac{\Delta V}{\ln(R_2/R_1)}$  (II.1.49)

et on retrouve l'expression habituelle non perturbée :  $\underline{E} = \frac{\Delta V}{r \ln(R_2/R_1)} \underline{u}_r$  (II.1.50)

La présence de charges à l'intérieur de la chambre entraîne une distorsion du champ électrique, qui ne varie plus en  $1/r$ . On constate notamment à partir de l'équation (II.1.48) qu'une augmentation de la densité d'ions  $n_a$  entraîne une diminution du champ à l'anode. Le phénomène de charges d'espace se révèle d'importance cruciale à haut taux de fission. Nous aurons l'occasion d'y revenir dans les paragraphes suivants.

### II.1.G) Vitesses de dérive des électrons et des ions

La propagation des charges dans le gaz de remplissage est régie par le système (II.1.31). En prenant en compte les processus de diffusion, on écrit alors :

$$\begin{cases} -\frac{1}{r} \frac{\partial}{\partial r} (r n_e \mu_e E) - \frac{1}{r} \frac{\partial}{\partial r} \left( r \frac{\partial}{\partial r} (n_e D_e) \right) = T_S - T_P \\ \frac{1}{r} \frac{\partial}{\partial r} (r n_a \mu_a E) - \frac{1}{r} \frac{\partial}{\partial r} \left( r \frac{\partial}{\partial r} (n_a D_a) \right) = T_S - T_P \end{cases} \quad (\text{II.1.51})$$

$\mu_e$  et  $\mu_a$  sont respectivement les mobilités électronique et ionique.  $D_e$  et  $D_a$  sont les coefficients de diffusion radiale des électrons et des ions. Ces quatre paramètres varient avec le champ électrique, en particulier pour de faibles valeurs de  $E$ .

### II.1.G.a) Mobilités électronique et ionique

La mobilité électronique  $\mu_e$  peut s'approcher par la formule de Lorentz :

$$\mu_e = \frac{2}{3} e \left( \frac{2}{\pi m_e k_B T} \right)^{1/2} \frac{1}{n \sigma} \quad (\text{II.1.52})$$

où :  $m_e$  est la masse de l'électron,  
 $e$ , la charge électrique élémentaire,  
 $n$ , la densité d'atomes d'argon neutres,  
 $k_B$ , la constante de Boltzmann,  
 $\sigma$ , la section efficace de transfert de quantité de mouvement ( $\sigma \approx 6,7 \cdot 10^{-17} \text{ cm}^2$  pour l'argon),

Toutefois, pour calculer  $\mu_e$  avec précision, nous avons fait appel au logiciel BOLSIG. Les résultats obtenus sont portés sur les figures 14 et 15. A titre indicatif, on obtient pour l'argon l'ajustement suivant :

$$V_e(E) = \mu_e(E)E = 6,5526 \times 10^{-18} \frac{E^3}{P^3} - 3,7088 \times 10^{-10} \frac{E^2}{P^2} + 3,0443 \times 10^{-2} \frac{E}{P} \quad (\text{II.1.53})$$

La vitesse  $V_e$  est donnée en  $\text{m.s}^{-1}$ , le champ  $E$  en  $\text{V.m}^{-1}$  et la pression  $P$  en bar.

En ce qui concerne la mobilité  $\mu_a$  des ions  $\text{Ar}^+$ , on peut trouver un ensemble de données expérimentales à la référence [18] (cf. figure 16). On obtient l'ajustement suivant :

$$\begin{aligned} V_a(E) = \mu_a(E)E = 4,0049 \times 10^{92} \frac{E^5}{n^5} - 2,2695 \times 10^{75} \frac{E^4}{n^4} + 4,9446 \times 10^{57} \frac{E^3}{n^3} \\ - 5,3809 \times 10^{39} \frac{E^2}{n^2} + 3,8069 \times 10^{21} \frac{E}{n} \end{aligned} \quad (\text{II.1.54})$$

où  $V_a$  est donnée en  $\text{m.s}^{-1}$ .  $n$  est la densité d'atomes d'argon neutres donnée en  $\text{m}^3$ . Cet ajustement est valable pour un rapport  $E/n$  inférieur à  $2 \cdot 10^{-18} \text{ V.m}^2$ .

Hornbeck [19] propose également un jeu de données pour les ions  $\text{He}^+$ ,  $\text{Ar}^+$  et  $\text{Ne}^+$  dans leurs gaz respectifs.

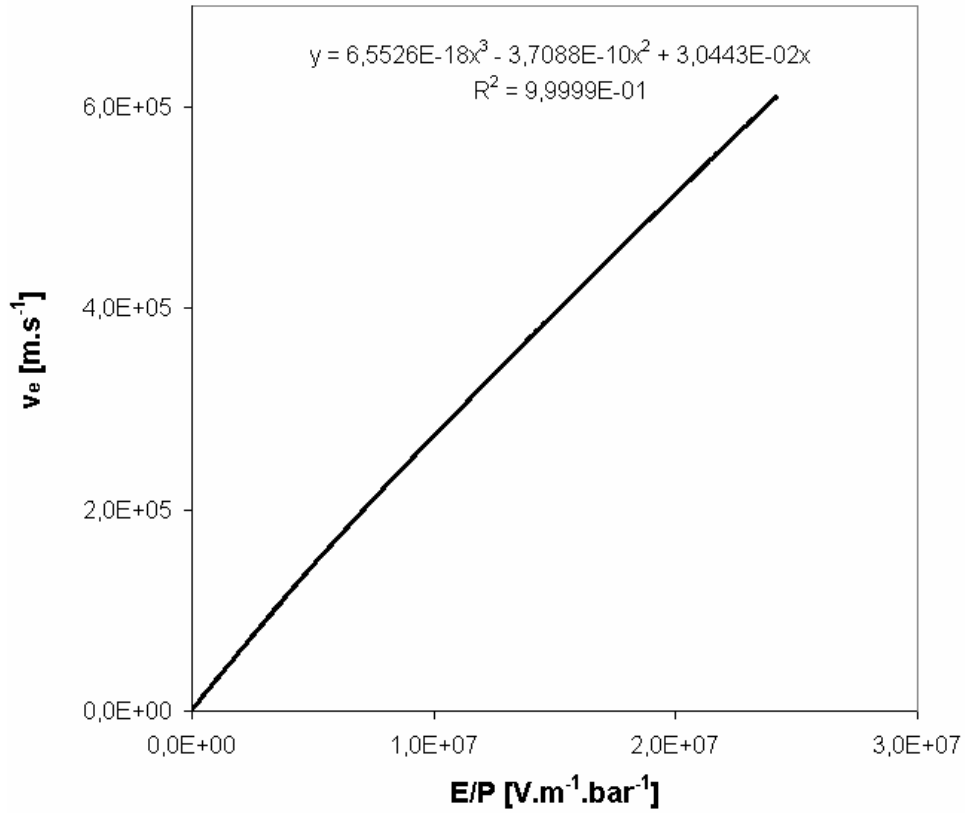


Figure 14 : Vitesse  $V_e$  des électrons dans l'argon (calculs BOLSIG).

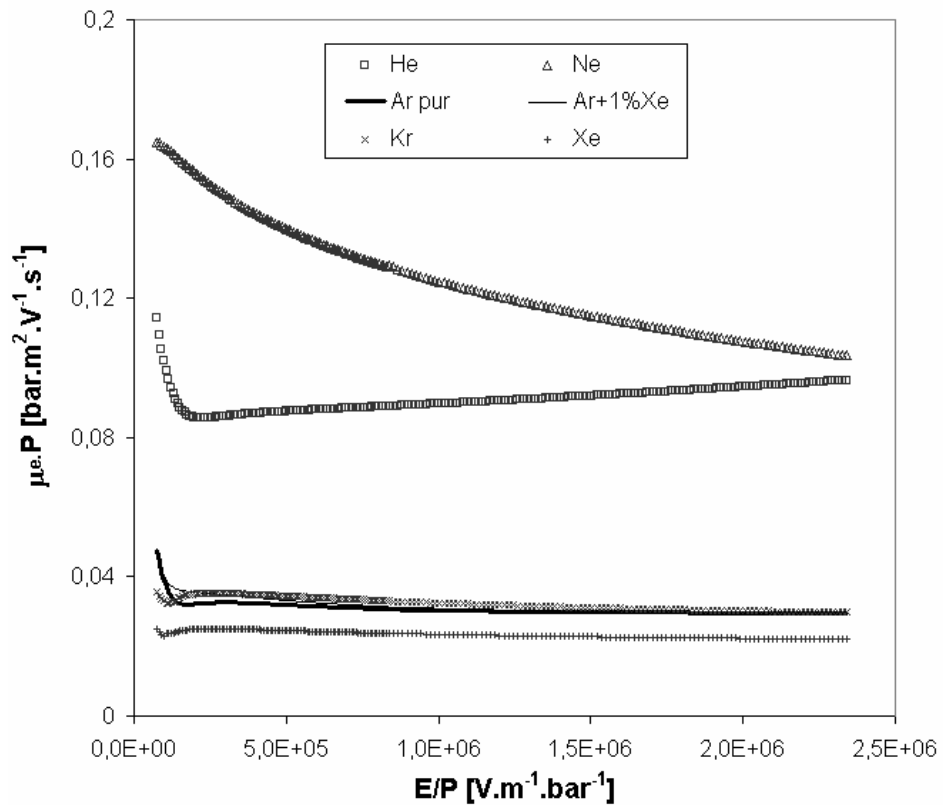


Figure 15 : Mobilités des électrons dans différents gaz purs et mélanges gazeux (calculs BOLSIG).

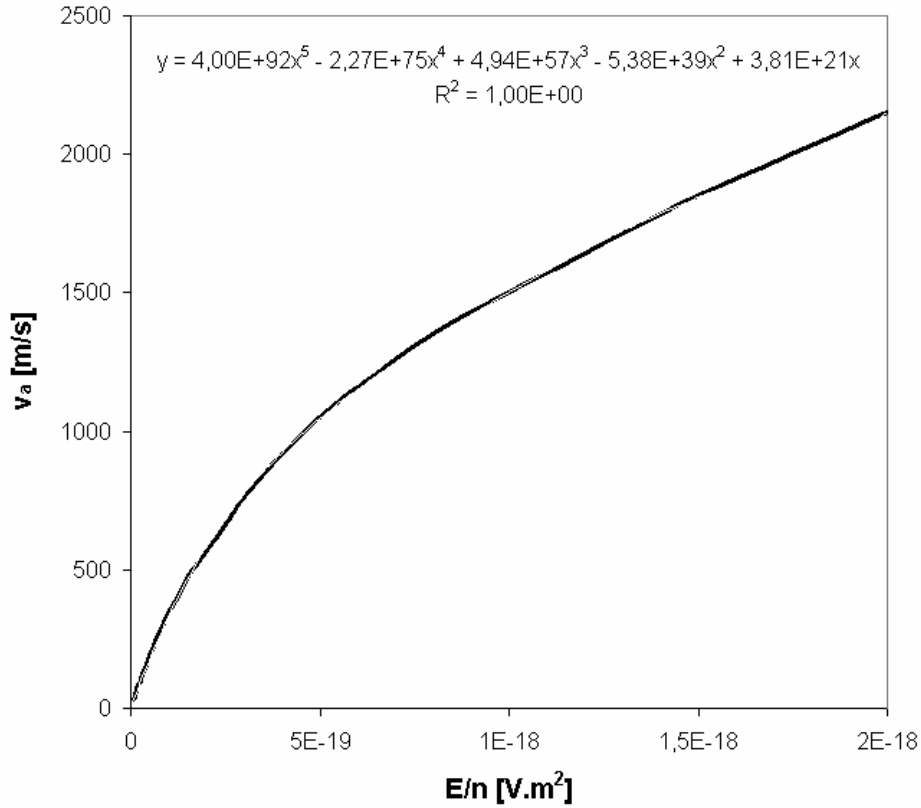


Figure 16 : Vitesse  $V_a$  des ions  $Ar^+$  dans l'argon.

### II.1.G.b) Diffusion électronique et ionique

Lakshminarasimha et al [11] donnent un ensemble de valeurs expérimentales pour le rapport  $D_e^\perp/\mu_e$ , où  $D_e^\perp$  est le coefficient de diffusion transverse à la direction de dérive des électrons. Ils montrent que ce rapport est à peu près constant et vaut environ 7 Volt pour  $E/n$  inférieur à 1000 Td. Les pertes associées à cette diffusion transverse ne seront pas prises en compte dans cette étude.

En ce qui concerne la diffusion des charges qui s'effectue dans la direction de leur dérive, peu de données expérimentales ou théoriques existent dans la littérature. Robertson et al [20] proposent quelques valeurs pour les ions argon. Toutefois, ces chiffres restent théoriques,  $D_a$  étant trop petit pour être mesuré correctement. Néanmoins, les coefficients  $D_e$  et  $D_a$  peuvent être évalués grâce aux formules d'Einstein :

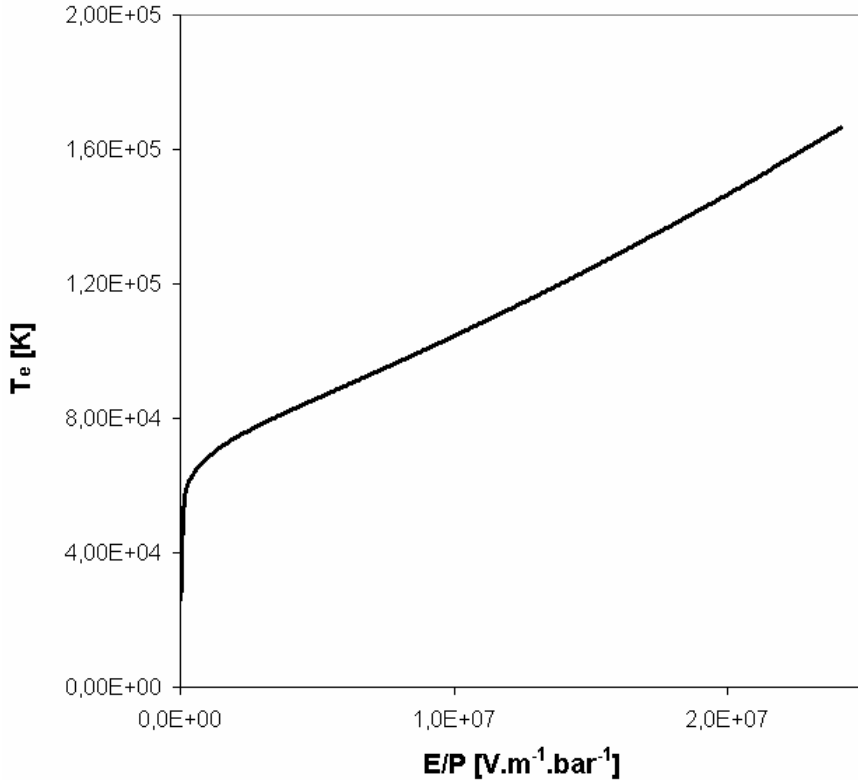
$$D_e = \frac{k_B T_e \mu_e}{e} \quad (II.1.55)$$

$$D_a = \frac{k_B T_a \mu_a}{e} \approx \frac{k_B T \mu_a}{e}$$

En ce qui concerne la diffusion des ions, en raison de leurs masses élevées et de leurs collisions fréquentes avec les atomes neutres, on admet communément que la température ionique  $T_a$  est constante, égale à la température  $T$  de la chambre. La température électronique  $T_e$ , quant à elle, peut se calculer en utilisant le logiciel BOLSIG (cf. figure 17). On obtient par exemple :

$$\begin{cases} D_e \approx 0,2 \text{ m}^2 \cdot \text{s}^{-1} \\ D_a \approx 5 \times 10^{-6} \text{ m}^2 \cdot \text{s}^{-1} \end{cases} \quad (\text{II.1.56})$$

pour une pression  $P$  de un bar, une température  $T$  de 300 K et un champ électrique  $E$  de  $10^6 \text{ V} \cdot \text{m}^{-1}$ .



**Figure 17 :** Température électronique  $T_e$  dans l'argon en fonction du champ électrique  $E$  (calculs BOLSIG).

## II.2) Application du modèle aux chambres cylindriques : formules analytiques

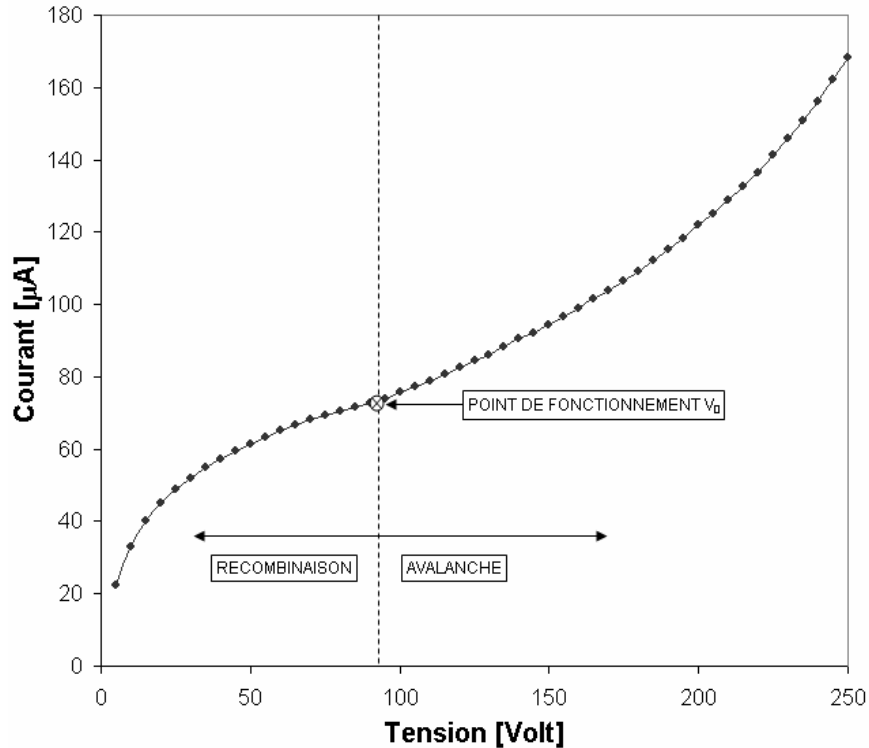
Dans cette section, nous appliquerons progressivement le cadre théorique décrit dans les pages précédentes au calcul et à l'étude des courbes de calibration des chambres à fission. Pour ce faire, nous allons introduire quelques définitions nouvelles.

A des taux de fission habituels ( $\leq 10^9 \text{ f} \cdot \text{s}^{-1}$ ), les courbes de calibration présentent une zone de plateau, où le courant  $I$  délivré par la chambre varie peu avec la tension  $\Delta V$  appliquée aux bornes des électrodes. Cette zone est communément appelée « plateau de saturation » et est illustré sur les figures 2 et 13. Le courant  $I_{sat}$  obtenu au plateau de saturation est appelé « courant de saturation ».

Toutefois, à très haut taux de fission (supérieur à  $5 \cdot 10^9 \text{ f} \cdot \text{s}^{-1}$  pour une chambre CFUT-C3), on observe une déformation notable du plateau de saturation qui disparaît progressivement (cf. figure 18). En conséquence, le courant  $I_{sat}$  ne peut plus être déterminé sans ambiguïté. On est donc amené à définir un nouveau point de référence, qui est la tension  $\Delta V_0$  obtenue au point d'inflexion de la courbe de calibration.  $\Delta V_0$  sera appelé « point de fonctionnement » de la

chambre. On appelle alors le courant  $I_0$  délivré à la tension  $\Delta V_0$ , « courant de fonctionnement » de la chambre. On définit enfin les tensions suivantes :

- $\Delta V_{min}$ , tension au point où  $I = I_{min} = 0,98 I_0$ , appelée « premier point du plateau de saturation »,
- $\Delta V_{max}$ , tension au point où  $I = I_{max} = 1,02 I_0$ , appelée « dernier point du plateau de saturation ».



**Figure 18 :** Courbe de calibration à haut taux de fission, obtenue avec une chambre CFUT-C3 à l'ILL. Déformation du plateau de saturation.

### II.2.A) Courant et densité de charges au plateau de saturation

A des taux de fission habituels, l'intensité  $I_{sat}$  mesurée au plateau de saturation est l'une des informations capitales délivrées par une chambre à fission opérant en mode courant. Nous présenterons donc dans cette section un ensemble de calculs simples qui visent à étudier l'impact de nombreux paramètres, tels que la longueur  $h$  du dépôt d'uranium ou le rayon des électrodes, sur la valeur du courant  $I_{sat}$ .

#### II.2.A.a) Courant de saturation, approximation de $N(r)$ en $1/r$ et erreur associée

Au plateau de saturation, les termes de recombinaison et d'avalanche sont négligeables<sup>7</sup>. On peut donc écrire :

<sup>7</sup> En fait, une formulation correcte serait plutôt que « le plateau existe parce que les processus de recombinaison et d'avalanche sont négligeables » sur la plage en  $\Delta V$  correspondante.

$$\begin{cases} -\frac{1}{r} \frac{\partial}{\partial r} r n_e v_e = N(r) \\ \frac{1}{r} \frac{\partial}{\partial r} r n_a v_a = N(r) \end{cases} \quad (\text{II.2.1})$$

Les expressions (II.1.17) et (II.1.44) nous permettent alors de calculer le courant à la saturation :

$$I_{sat} = I_1 = 2\pi h e \int_{R_1}^{R_2} r N(r) dr \quad (\text{II.2.2})$$

Si on approche  $N(r)$  par l'expression en  $1/r$  donnée par (II.1.2), on obtient :

$$I_{sat} = 2\pi h e X_0 R_1 N_{fst} (R_2 - R_1) = e X_0 \tau_f (R_2 - R_1) \quad (\text{II.2.3})$$

Cette approximation courante induit une erreur sur le courant  $I_{sat}$ , que nous souhaitons estimer. Soit le facteur d'erreur  $\varepsilon$  donné par :

$$\varepsilon = \frac{I_{sat} \text{ calculée pour une densité } N(r) \text{ approchée en } 1/r}{I_{sat} \text{ calculée à partir de l'expression exacte de } N(r)} \quad (\text{II.2.4})$$

On peut évaluer  $\varepsilon$  pour différents couples  $\{R_1, R_2\}$  (cf. tableau 3).

	$R_2$ [mm]				
$R_1$ [mm]	1	1,25	1,5	1,75	2
1		0,43	0,48	0,52	0,55
1,25			0,41	0,47	0,51
1,5				0,4	0,46
1,75					0,39

**Tableau 3 :** Valeurs de  $\varepsilon$  pour différents couples  $\{R_1, R_2\}$ . ( $h = 1$  cm).

On constate ainsi que l'erreur commise sur  $I_{sat}$  pour des chambres à fission de tailles millimétriques est importante (environ un facteur 2). Elle diminue progressivement quand le rayon  $R_2$  de la cathode augmente.

### II.2.A.b) Evolution du courant $I_{sat}$ avec $h$ , la longueur du dépôt

Nous souhaitons estimer dans ce paragraphe l'impact sur le courant à la saturation d'une modification de la longueur  $h$  du dépôt. Exceptionnellement, nous reviendrons pour cette étude à l'expression exacte de la densité de paires  $N(r, z)$  créée par les produits de fission et donnée par l'équation (II.1.14). Au plateau de saturation, les phénomènes de recombinaison et d'avalanche sont, comme nous l'avons déjà mentionné, négligeables. Toutes les charges créées sont donc collectées et nous pouvons écrire :

$$I_{sat} = e \iiint_{\Omega} r N(r, z) dr d\theta dz \quad (\text{II.2.5})$$

où  $\Omega$  est le volume inter électrodes. En utilisant le résultat (II.1.18), nous pouvons alors vérifier que l'erreur sur  $I_{sat}$  induite par l'approximation (II.1.17) est nulle.

Dans une chambre de type CFUT-C3, l'anode est maintenue en suspension au centre d'un cylindre en titane qui fait office de cathode. Les produits de fission émis obliquement par rapport à l'axe de rotation de l'anode peuvent ainsi créer des paires loin en dehors de la zone du dépôt (cf. figure 7). Ces paires seront elles aussi collectées et participeront au courant total délivré par la chambre. Dans les lignes suivantes, nous estimerons leur contribution au courant  $I_{sat}$ .

L'expression (II.2.5) peut se réécrire de la manière suivante :

$$I_{sat} = \frac{X_0 \tau_f e}{2\pi} G(h, R_1, R_2, z_{min}, z_{max}) \quad (II.2.6)$$

avec :

$$G = \frac{1}{h} \int_{r=R_1}^{R_2} \int_{\phi=-\arccos(R_1/r)}^{\arccos(R_1/r)} \int_{z=z_{min}}^{z_{max}} \int_{z'=-h/2}^{h/2} \frac{rdz' dz d\phi dr}{R_1^2 + r^2 - 2rR_1 \cos(\phi) + (z - z')^2} \quad (II.2.7)$$

Elle peut donc se décomposer en deux contributions  $I = I_1 + I_2$ , données par :

$$\begin{cases} I_1 = \frac{X_0 \tau_f e}{2\pi} G(h, R_1, R_2, -h/2, h/2) \\ I_2 = \frac{X_0 \tau_f e}{2\pi} (G(h, R_1, R_2, z_{min}, -h/2) + G(h, R_1, R_2, h/2, z_{max})) \end{cases} \quad (II.2.8)$$

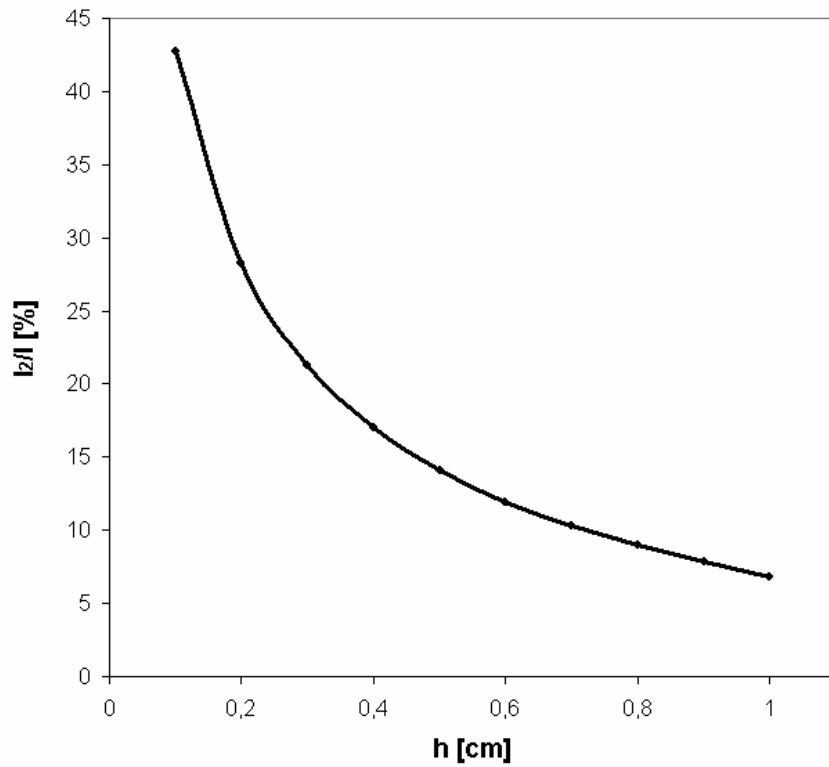
Les contributions  $I_1$  et  $I_2$  sont respectivement les courants créés à l'intérieur et en-dehors de la zone du dépôt. Pour une chambre CFUT-C3,  $R_1 = 1,25$  mm,  $R_2 = 1,75$  mm,  $z_{min} = -1,045$  cm et  $z_{max} = 0,71$  cm. En faisant varier  $h$ , on obtient alors les figures 19 et 20. On constate que :

- le courant créé en dehors de la zone du dépôt est faible pour des longueurs  $h$  conventionnelles, proches du centimètre. Le rapport  $I_2/I$  vaut en effet 6,8 % pour  $h = 1$  cm.
- le courant total (II.2.6) délivré par la chambre varie en définitive très peu avec la taille  $h$  du dépôt. Entre  $h = 1$  mm et  $h = 1$  cm, l'écart sur  $I_{sat}$  est inférieur à 1 %.

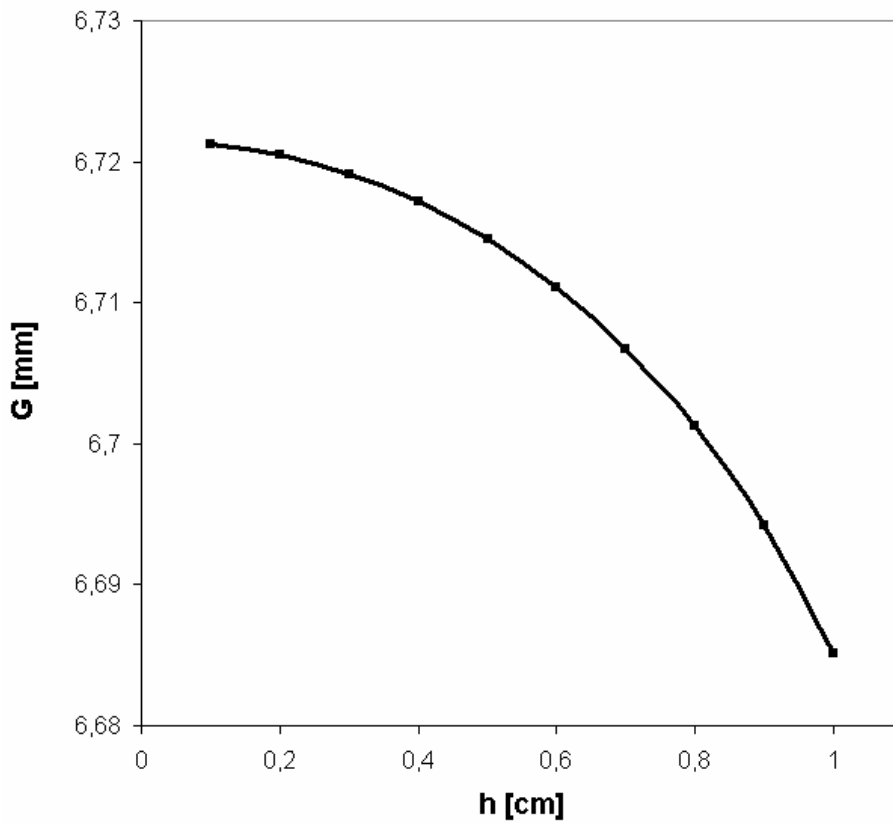
### II.2.A.c) Evolution du courant de saturation avec les rayons des électrodes

Les figures 21 à 24 présentent l'évolution du facteur  $G$ , introduit au paragraphe précédent et donné par l'équation (II.2.7), en fonction des rayons  $R_1$  et  $R_2$  de l'anode et de la cathode. Elles constituent en quelque sorte un abaque de valeurs.





**Figure 19 :** Ratios en pourcentage du courant  $I_2$  créé à l'extérieur de la zone du dépôt sur le courant total  $I_{sat}$ , en fonction de la longueur du dépôt  $h$ . ( $z_{min} = -1,045$  cm,  $z_{max} = 0,71$  cm,  $R_1 = 1,25$  mm et  $R_2 = 1,75$  mm).



**Figure 20 :** Evolution du facteur  $G$  avec la longueur  $h$  du dépôt. ( $z_{min} = -1,045$  cm,  $z_{max} = 0,71$  cm,  $R_1 = 1,25$  mm et  $R_2 = 1,75$  mm).

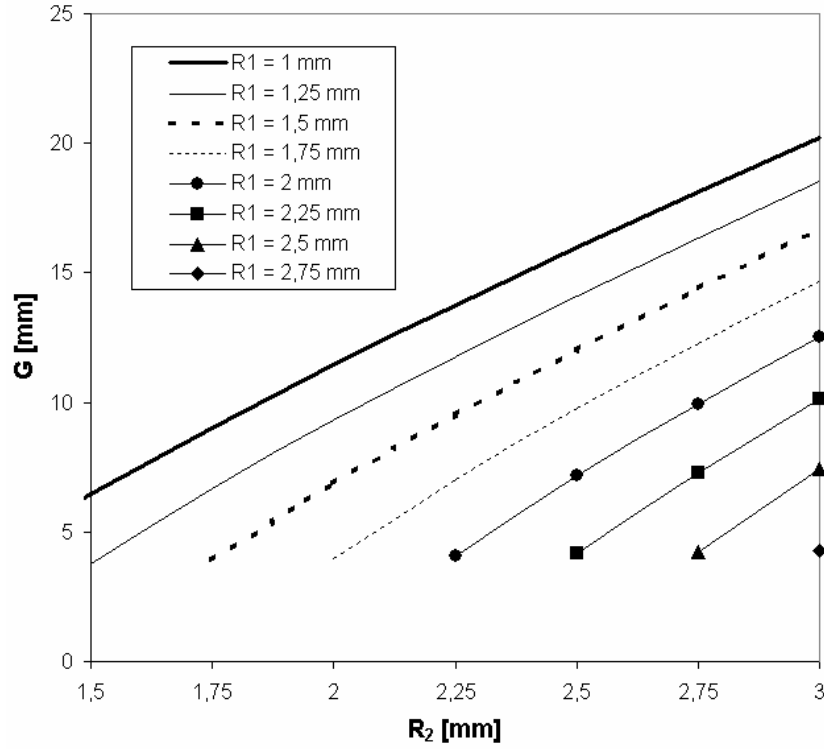


Figure 21 : Abaque de valeurs de  $G$  pour différents couples  $\{R_1, R_2\}$ . ( $h = 1$  cm,  $z_{min} = -1,045$  cm,  $z_{max} = 0,71$  cm).

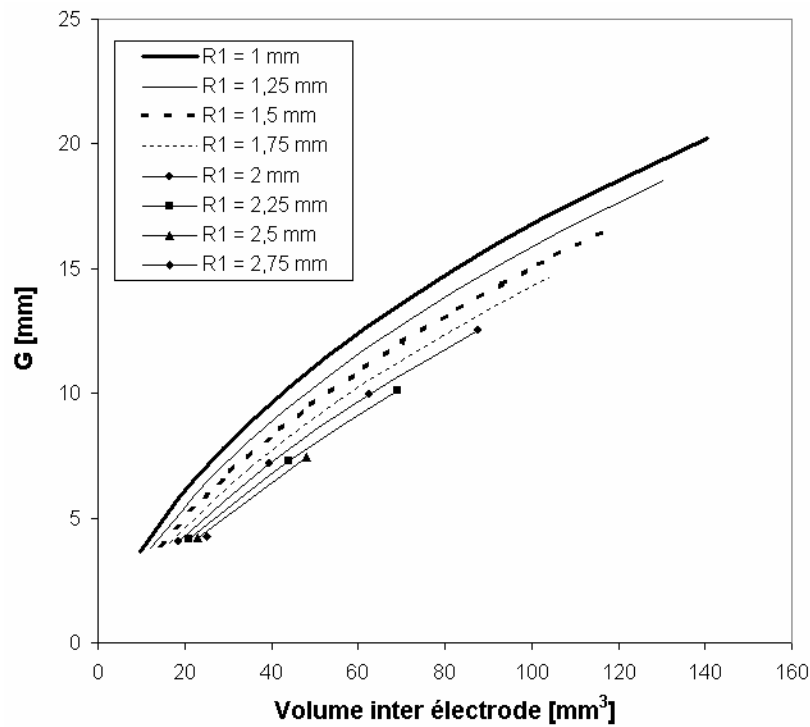
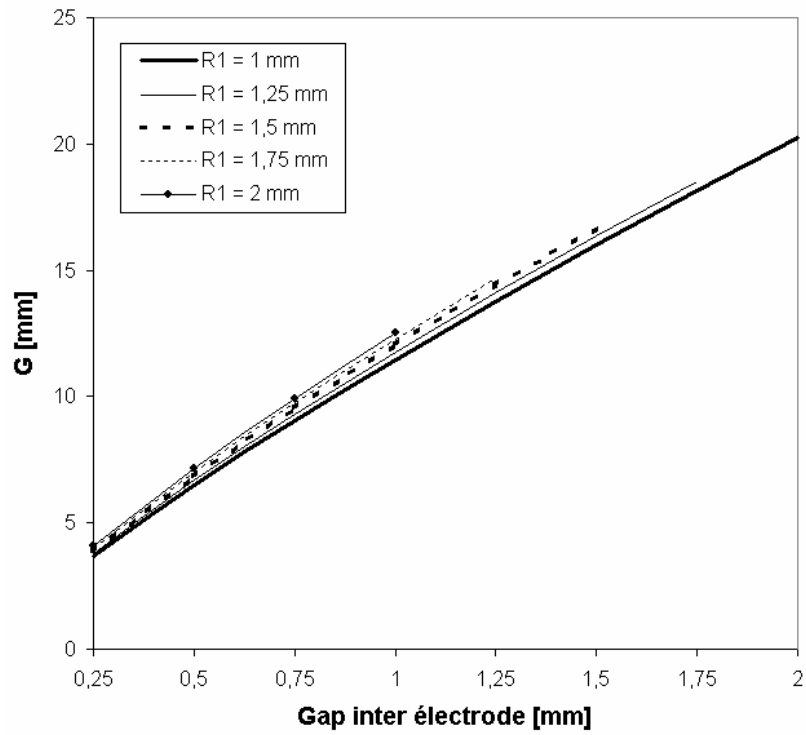
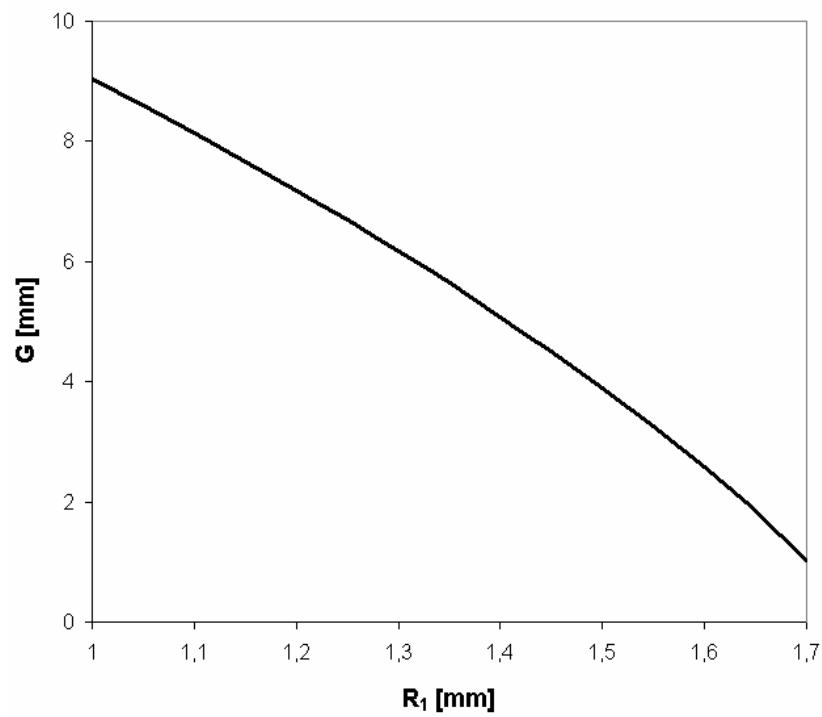


Figure 22 : Evolution du facteur  $G$  avec le volume inter électrodes  $V = (z_{max} - z_{min})(R_2^2 - R_1^2)$ . ( $h = 1$  cm,  $z_{min} = -1,045$  cm,  $z_{max} = 0,71$  cm).



**Figure 23 :** Evolution du facteur  $G$  avec le gap inter électrodes  $d = (R_2 - R_1)$ . ( $h = 1$  cm,  $z_{min} = -1,045$  cm,  $z_{max} = 0,71$  cm).



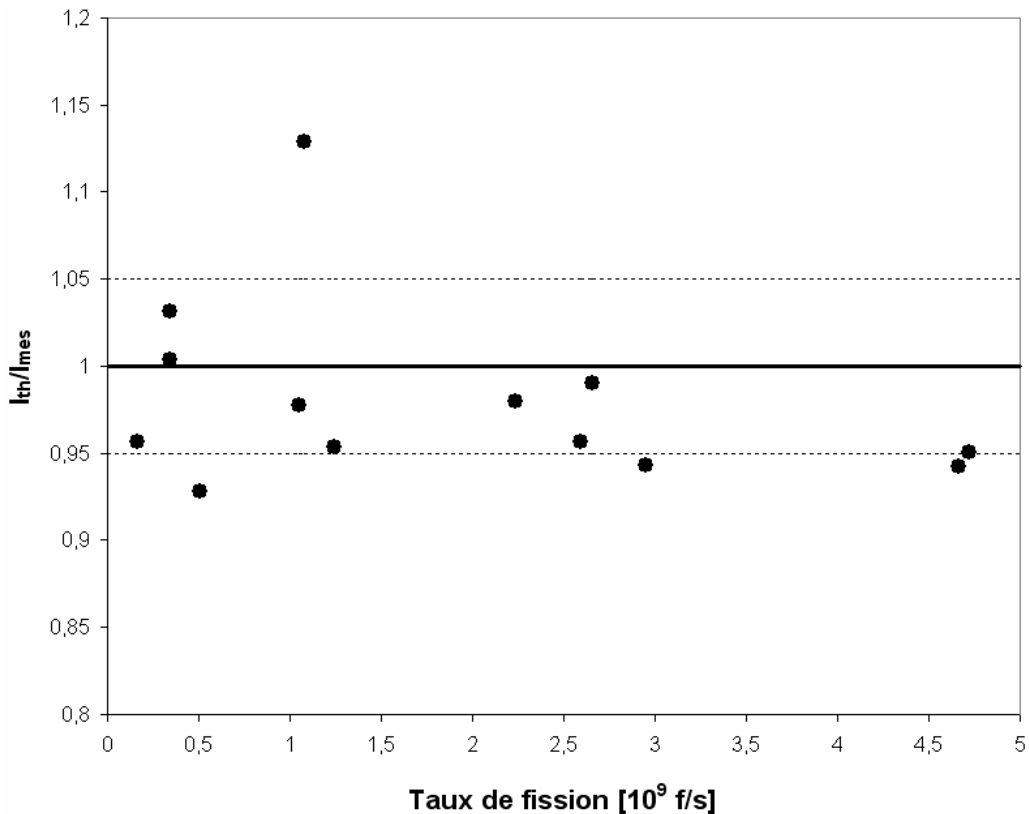
**Figure 24 :** Evolution du facteur  $G$  avec le rayon de l'anode  $R_1$ . ( $R_2 = 1,75$  mm,  $h = 1$  cm,  $z_{min} = -1,045$  cm,  $z_{max} = 0,71$  cm).

II.2.A.d) Comparaison entre les valeurs théoriques et expérimentales de  $I_{sat}$

Pour une chambre CFUT-C3 standard, le facteur  $G$  vaut 6,685 mm (cf. figure 21). Pour  $X_0 \approx 1,8 \cdot 10^8 \times P_{[bar]}$  paires.m<sup>-1</sup> (cf. paragraphe II.1.B), on obtient :

$$I_{sat} = \frac{X_0 \tau_f e}{2\pi} G = 3,068 \times 10^{-14} P_{[bar]} \tau_f \quad (\text{II.2.9})$$

Au cours des trois dernières années, nous avons irradié à de nombreuses reprises des chambres à fission type CFUT-C3 au Réacteur à Haut Flux de l'Institut Laue Langevin à Grenoble (cf. chapitre VII). Les pressions d'argon variaient entre 0,9 et 1,16 bar, le flux de neutrons entre  $6 \cdot 10^{13}$  et  $1 \cdot 10^{15}$  n.cm<sup>-2</sup>.s<sup>-1</sup> et les masses de dépôt entre 4 et 40 µg. Les rapports des courants calculés sur les courants expérimentaux sont portés sur la figure 25. L'accord est bon, l'écart entre les valeurs théoriques et expérimentales ne dépassant pas 10 % en majorité.



**Figure 25 :** Rapports des courants calculés à la saturation sur les courants expérimentaux en fonction du taux de fission.

II.2.B) *Distorsion du champ électrique à la saturation*

En géométrie cylindrique, le champ électrique  $E$  obéit à l'équation (II.1.47). En absence de charges,  $E$  se réduit à l'expression (II.1.50). On peut donc décomposer  $E$  en deux contributions :

$$E = E_{\text{sans charges}} + \delta E \quad (\text{II.2.10})$$

avec :

$$\begin{cases} E_{\text{sans charges}} = \frac{\Delta V}{r \ln(R_2/R_1)} \\ \delta E = \frac{e}{\varepsilon_0 r} \int_{R_1}^r r(n_a - n_e) dr - \frac{e}{\varepsilon_0 r \ln(R_2/R_1)} \int_{R_1}^{R_2} r \ln\left(\frac{R_2}{r}\right) (n_a - n_e) dr \end{cases} \quad (\text{II.2.11})$$

On peut estimer les densités  $n_e$  et  $n_a$  à la saturation en utilisant le système (II.2.1) et on obtient :

$$\begin{cases} rn_e v_e = \int_r^{R_2} rN(r) dr \\ rn_a v_a = \int_{R_1}^r rN(r) dr \end{cases} \quad (\text{II.2.12})$$

En réinjectant ces expressions dans les équations (II.2.11), on a :

$$\frac{\delta E}{E_{\text{sans charges}}} = \frac{e}{\varepsilon_0 \Delta V} \left[ \int_{R_1}^r \ln\left(\frac{R_2}{R_1}\right) \left( \frac{1}{v_a} \int_{R_1}^r rN(r) dr - \frac{1}{v_e} \int_r^{R_2} rN(r) dr \right) dr - \int_{R_1}^{R_2} \ln\left(\frac{R_2}{r}\right) \left( \frac{1}{v_a} \int_{R_1}^r rN(r) dr - \frac{1}{v_e} \int_r^{R_2} rN(r) dr \right) dr \right] \quad (\text{II.2.13})$$

Au premier ordre (lorsque les perturbations associées aux charges d'espace ne sont pas trop élevées) et en négligeant les processus de diffusion, les vitesses de dérive électronique et ionique s'écrivent :

$$\begin{cases} v_a \approx \mu_a (E_{\text{sans charges}}) \times E_{\text{sans charges}} \approx \mu_a(r) \frac{\Delta V}{r \ln(R_2/R_1)} \\ v_e \approx \mu_e (E_{\text{sans charges}}) \times E_{\text{sans charges}} \approx \mu_e(r) \frac{\Delta V}{r \ln(R_2/R_1)} \end{cases} \quad (\text{II.2.14})$$

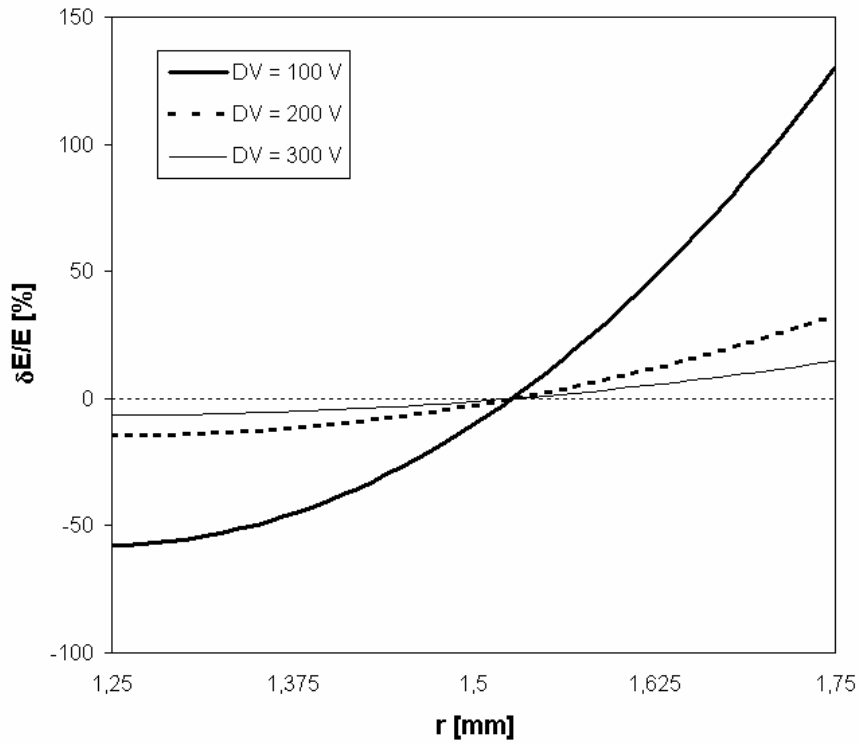
Dans les calculs qui suivront, les mobilités  $\mu_e$  et  $\mu_a$  obéiront aux expressions (II.1.53) et (II.1.54). Par ailleurs, comme :

$$N(r) = \frac{N_{fst} X_0 R_1}{2\pi} F(r) = \frac{\tau_f X_0}{4\pi^2 h} F(r) \quad (\text{II.2.15})$$

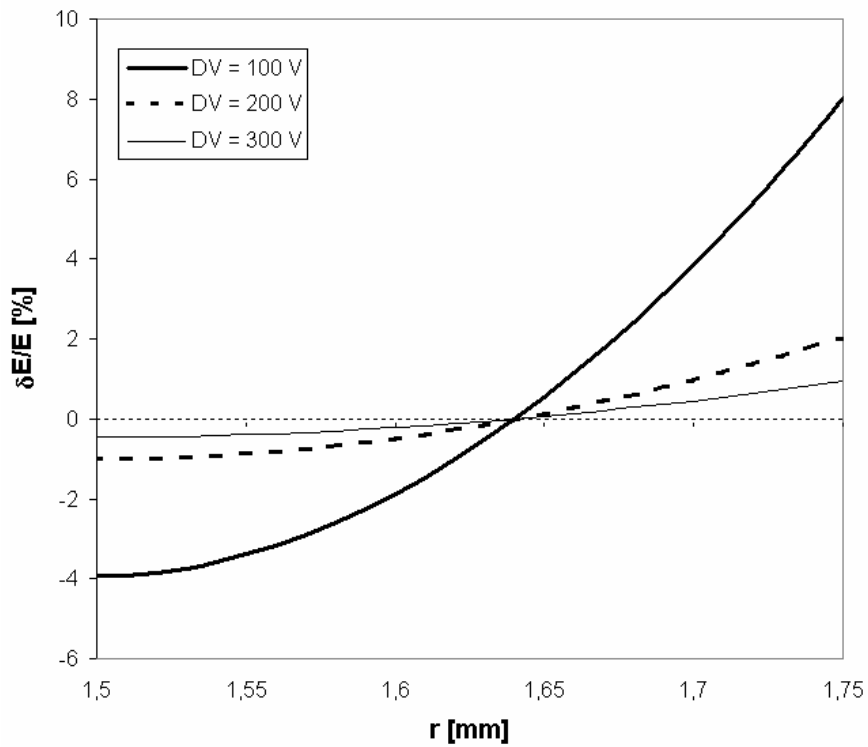
On a donc :

$$\frac{\delta E}{E} \propto \tau_f \quad (\text{II.2.16}).$$

Plus le taux de fission sera élevé et plus la perturbation due aux charges d'espace prendra de l'importance.



**Figure 26 :** Distorsion du champ électrique en fonction de la distance radiale  $r$  pour différentes tensions  $\Delta V$ . (Le gaz de remplissage est de l'argon à une pression de 1 bar,  $R_1 = 1,25$  mm,  $R_2 = 1,75$  mm,  $h = 1$  cm,  $\tau_f = 10^9$  f.s $^{-1}$ ).



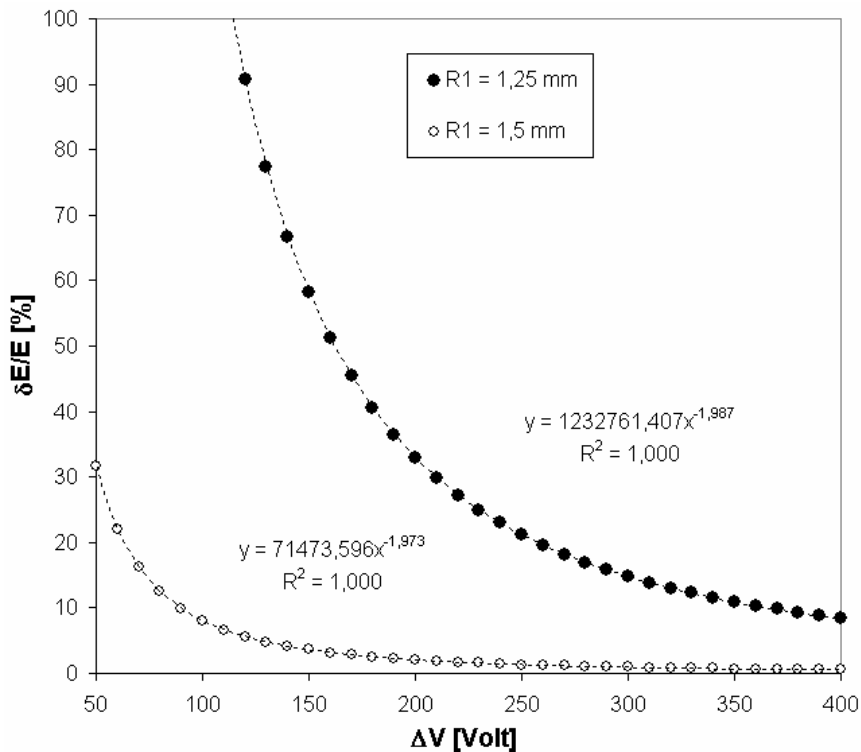
**Figure 27 :** Distorsion du champ électrique en fonction de la distance radiale  $r$  pour différentes tensions  $\Delta V$ . (Le gaz de remplissage est de l'argon à une pression de 1 bar,  $R_1 = 1,5$  mm,  $R_2 = 1,75$  mm,  $h = 1$  cm,  $\tau_f = 10^9$  f.s $^{-1}$ ).

On constate sur les figures 26 et 27 que :

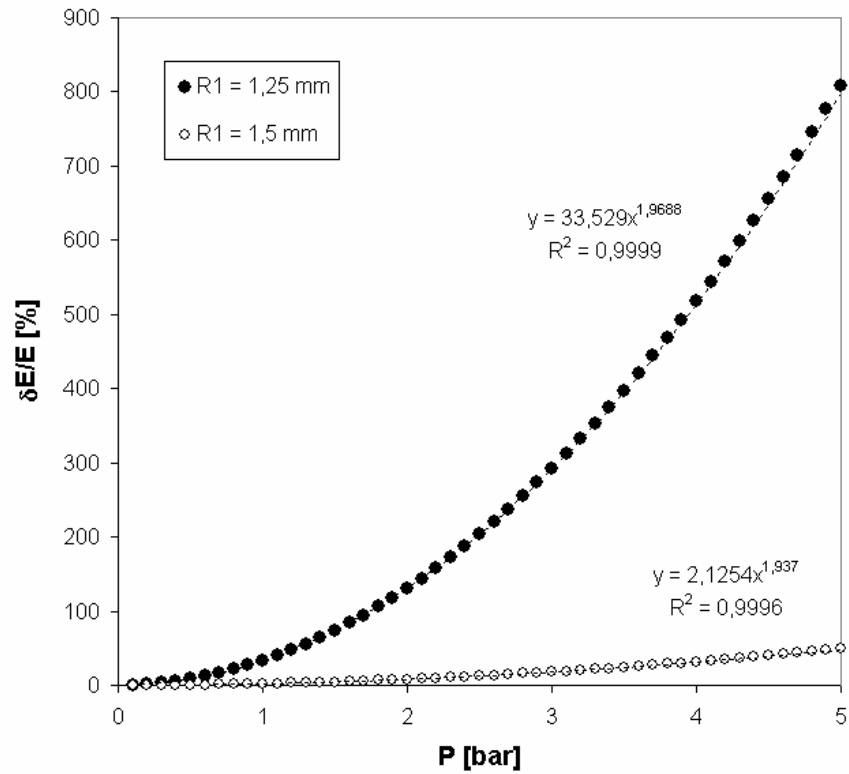
- les charges d'espace ont pour effet de diminuer le champ électrique à l'anode et de l'augmenter à la cathode. Cet effet de distorsion du champ est d'autant plus fort que la tension aux bornes des électrodes diminue. Ce constat n'est guère surprenant. Lorsque  $\Delta V$  est faible, le champ  $E$  est réduit et les charges, qui se déplacent plus lentement, voient leur temps de collection s'allonger. Elles s'accumulent donc dans le gaz et perturbent le champ électrique.
- Cette perturbation est maximale à la cathode :  $(\delta E/E)_{\max} = (\delta E/E) (r = R_2)$ .
- Pour une géométrie de chambre donnée,  $\delta E$  change de signe à la même distance  $r_0$ , quelle que soit la tension appliquée. Pour  $P = 1$  bar,  $R_1 = 1,25$  mm et  $R_2 = 1,75$  mm, on a par exemple  $r_0 \approx 1,52$  mm. Pour  $R_1 = 1,5$  mm,  $r_0$  vaut environ 1,64 mm.
- $\delta E/E$  chute fortement quand la distance inter électrodes diminue.

Les figures 28 à 30 nous montrent respectivement que :

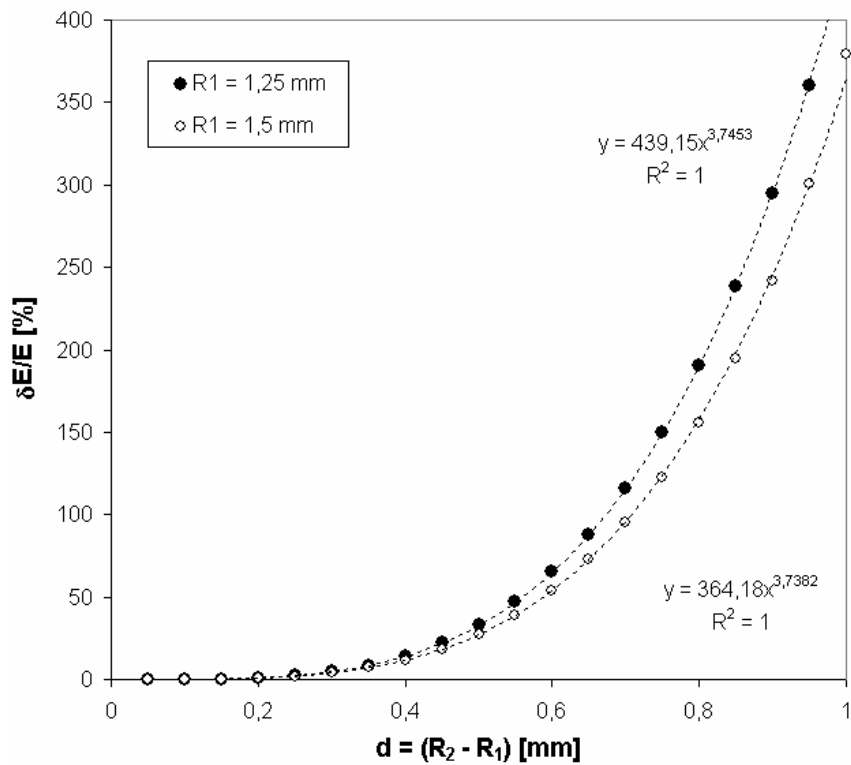
- $(\delta E/E)_{\max}$  varie en  $1/\Delta V^2$ .
- $(\delta E/E)_{\max}$  varie en  $P^2$ . Ce résultat s'explique en grande partie par les dépendances quasi-linéaires en  $P$  de  $N(r)$ ,  $1/\mu_e$  et  $1/\mu_a$ .
- $(\delta E/E)_{\max}$  varie à peu près, à rayon  $R_1$  fixé, comme  $d^{15/4}$  pour un gap inter électrodes  $d \leq 1$  mm. Cette dépendance nous montre qu'une réduction d'un facteur 2 sur le gap entraîne une diminution d'un facteur 13 sur les charges d'espace. Elle confirme les résultats observés sur les figures 26 et 27.



**Figure 28 :** Distorsion maximale du champ électrique en fonction de la tension  $\Delta V$ . (Le gaz de remplissage est de l'argon à une pression de 1 bar,  $R_2 = 1,75$  mm,  $h = 1$  cm,  $\tau_f = 10^9$  f.s $^{-1}$ ).



**Figure 29 :** Distorsion maximale du champ électrique en fonction de la pression  $P$ . ( $R_2 = 1,75$  mm,  $h = 1$  cm,  $\Delta V = 200$  V,  $\tau_f = 10^9$  f.s $^{-1}$ ).



**Figure 30 :** Distorsion maximale du champ électrique en fonction du gap inter électrodes  $d$ . (Le gaz de remplissage est de l'argon à une pression de 1 bar,  $R_2 = 1,75$  mm,  $h = 1$  cm,  $\Delta V = 200$  V,  $\tau_f = 10^9$  f.s $^{-1}$ ).



En utilisant le résultat (II.2.16), nous pouvons finalement écrire :

$$\left(\frac{\delta E}{E}\right)_{\max} \approx K(R_1) \frac{P^2 \tau_f d^{15/4}}{\Delta V^2} \quad (\text{II.2.17})$$

où le facteur  $K$  se déduit des figures 26 et 27. On obtient :

- pour  $R_1 = 1,25$  mm,  $K \approx 3,1 \cdot 10^7 \text{ V}^2 \cdot \text{s} \cdot \text{bar}^{-2} \cdot \text{m}^{-15/4}$
- pour  $R_1 = 1,5$  mm,  $K \approx 2,7 \cdot 10^7 \text{ V}^2 \cdot \text{s} \cdot \text{bar}^{-2} \cdot \text{m}^{-15/4}$

Nous pouvons dès lors donner un critère sur le taux de fission  $\tau_f$  à ne pas dépasser si l'on souhaite éviter les perturbations associées aux charges d'espace. On considérera que la perturbation associée est négligeable si :

$$\left(\frac{\delta E}{E}\right)_{\max} \leq 5\% \quad (\text{II.2.18})$$

En utilisant la formule (II.2.17), cette condition est équivalente à :

$$\tau_f \leq 0,05 \frac{\Delta V^2}{K(R_1) P^2 d^{15/4}} \quad (\text{II.2.19})$$

Pour une chambre CFUT-C3,  $R_1 = 1,25$  mm et  $R_2 = 1,75$  mm. A  $P = 1$  bar, on obtient ainsi :

- $\tau_f \leq 4 \cdot 10^7 \text{ f.s}^{-1}$  pour  $\Delta V = 100$  V.
- $\tau_f \leq 1,5 \cdot 10^8 \text{ f.s}^{-1}$  pour  $\Delta V = 200$  V.
- $\tau_f \leq 3,5 \cdot 10^8 \text{ f.s}^{-1}$  pour  $\Delta V = 300$  V.

Pour une chambre à gap réduit CFUT-C6 (cf. paragraphe IV.1),  $R_1 = 1,5$  mm et  $R_2 = 1,75$  mm et on obtient à  $P = 1$  bar :

- $\tau_f \leq 6,2 \cdot 10^8 \text{ f.s}^{-1}$  pour  $\Delta V = 100$  V.
- $\tau_f \leq 2,5 \cdot 10^9 \text{ f.s}^{-1}$  pour  $\Delta V = 200$  V.
- $\tau_f \leq 5,6 \cdot 10^9 \text{ f.s}^{-1}$  pour  $\Delta V = 300$  V.

Utiliser des chambres à gap réduit est donc un excellent moyen de limiter les perturbations associées aux charges d'espace.

### II.2.C) *Calculs simplifiés de la forme des courbes de calibration*

Lorsque la distance inter électrodes  $d = (R_2 - R_1)$  est petite devant  $R_2$ , on peut modéliser le fonctionnement d'une chambre à fission cylindrique par un système d'équations en géométrie plane. En négligeant par ailleurs les processus de diffusion et les charges d'espace, ce système s'écrit :

$$\begin{cases} -\frac{\partial}{\partial r} n_e v_e = \langle N \rangle - kn_e n_a + \alpha n_e v_e \\ \frac{\partial}{\partial r} n_a v_a = \langle N \rangle - kn_e n_a + \alpha n_e v_e \\ E = \frac{\Delta V}{R_2 - R_1} \\ n_e(R_2) = 0, n_a(R_1) = 0 \end{cases} \quad (\text{II.2.20})$$

Le courant à la saturation obtenu avec cette approximation est donné par :

$$I_{sat} = e \langle SN \rangle (R_2 - R_1) \quad (\text{II.2.21})$$

Le facteur  $\langle SN \rangle$  est moyenné sur le volume inter électrodes et on a :

$$\langle SN \rangle = \frac{1}{(R_2 - R_1)} \int_{r=R_1}^{R_2} S(r)N(r)dr = \frac{2\pi h}{(R_2 - R_1)} \int_{r=R_1}^{R_2} rN(r)dr \quad (\text{II.2.22})$$

On vérifiera alors que le courant (II.2.21) est égal au courant exact (II.2.2). Le système (II.2.20) peut se résoudre analytiquement et l'on obtient :

$$n_e(r) = \frac{C_1 \mu_a E}{2k} - \frac{Y}{2\mu_e k} \tan\left(\frac{Y(r + C_2)}{2\mu_e \mu_a E}\right) \quad (\text{II.2.23})$$

avec :

$$Y = \sqrt{4\mu_a \mu_e \langle N \rangle k - C_1^2 \mu_e^2 \mu_a^2 E^2} \quad (\text{II.2.24})$$

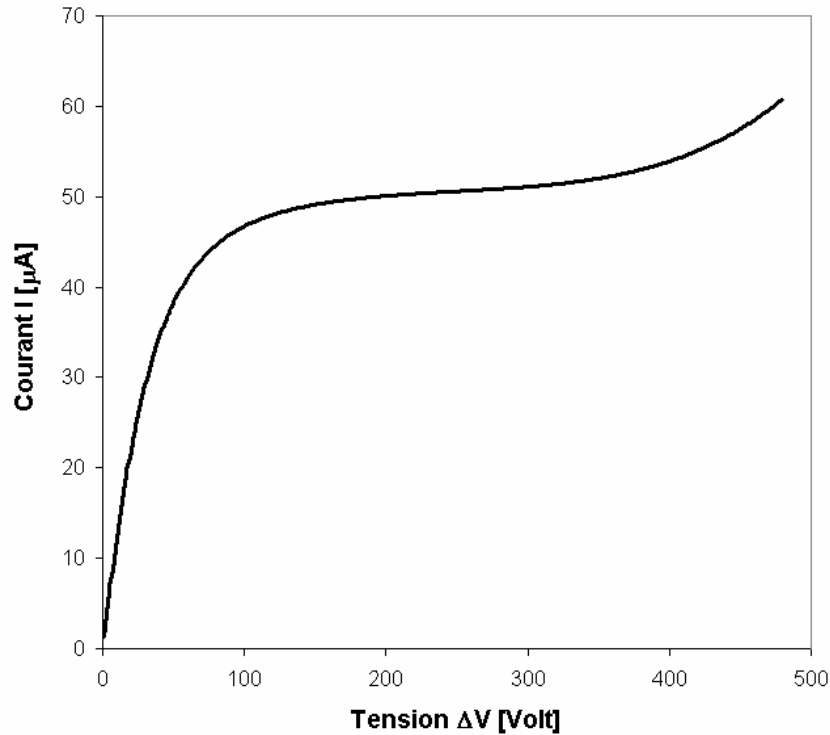
$C_1$  et  $C_2$  sont deux fonctions du champ  $E$  qui obéissent au système suivant :

$$\begin{cases} C_1 = -R_2 + \frac{2\mu_a \mu_e E}{Y} \arctan\left(\frac{\mu_a \mu_e E C_1}{Y}\right) \\ C_2 = -R_1 - \frac{2\mu_a \mu_e E}{Y} \arctan\left(\frac{\mu_a \mu_e E}{Y} (C_1 + 2\alpha(E))\right) \end{cases} \quad (\text{II.2.25})$$

L'expression (II.2.23) nous permet alors d'accéder au courant  $I$  délivré par la chambre en fonction de la tension  $\Delta V$  appliquée aux bornes des électrodes.

$$I = \frac{2\pi h e R_1 \Delta V}{R_2 - R_1} \mu_e n_e(r = R_1) \quad (\text{II.2.26})$$

Pour  $R_1 = 1,25$  mm,  $R_2 = 1,75$  mm,  $h = 1$  cm,  $z_{min} = -1,045$  cm,  $z_{max} = 0,71$  cm,  $X_0 = 2 \cdot 10^8$  paires.m<sup>-1</sup>,  $k = 5,0 \cdot 10^{-11}$  m<sup>3</sup>.s,  $P = 1$  bar et  $\tau_f = 1,5 \cdot 10^9$  f.s<sup>-1</sup>, on obtient la courbe de calibration  $I = f(\Delta V)$  portée sur la figure 31.



**Figure 31 :** Courbe de calibration obtenue à partir du système (II.2.20). (Le gaz de remplissage est de l'argon à une pression  $P$  de 1 bar,  $R_1 = 1,25$  mm,  $R_2 = 1,75$  mm,  $h = 1$  cm,  $z_{min} = -1,045$  cm,  $z_{max} = 0,71$  cm,  $X_0 = 2 \cdot 10^8$  paires.m<sup>-1</sup>,  $k = 5 \cdot 10^{-11}$  m<sup>3</sup>.s et  $\tau = 1,5 \cdot 10^9$  f.s<sup>-1</sup>. Le coefficient  $\alpha$  est évalué en utilisant la formule de Townsend).

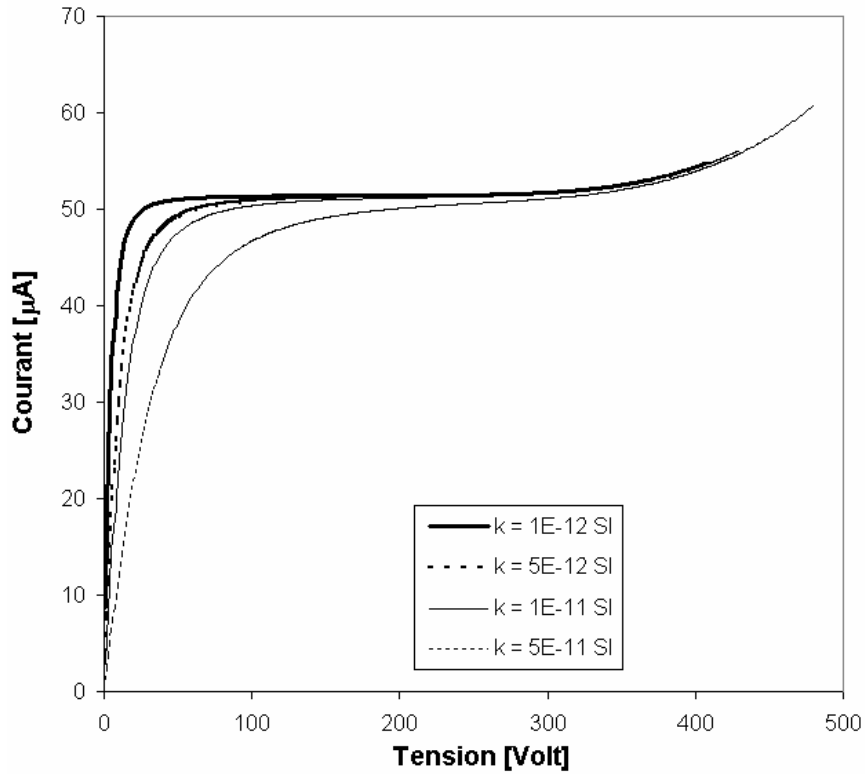
Les mobilités  $\mu_e(E)$  et  $\mu_a(E)$  sont données par les expressions (II.1.53) et (II.1.54). Le coefficient  $\alpha(E)$  est donné par l'expression (II.1.37) de Townsend avec les coefficients proposés par Zastawny [10] :

$$\begin{cases} A = 2,011 \times 10^5 \times P_{[\text{bar}]} \\ B = 54,7 \times 10^5 \times P_{[\text{bar}]} \end{cases} \quad (\text{II.2.27})$$

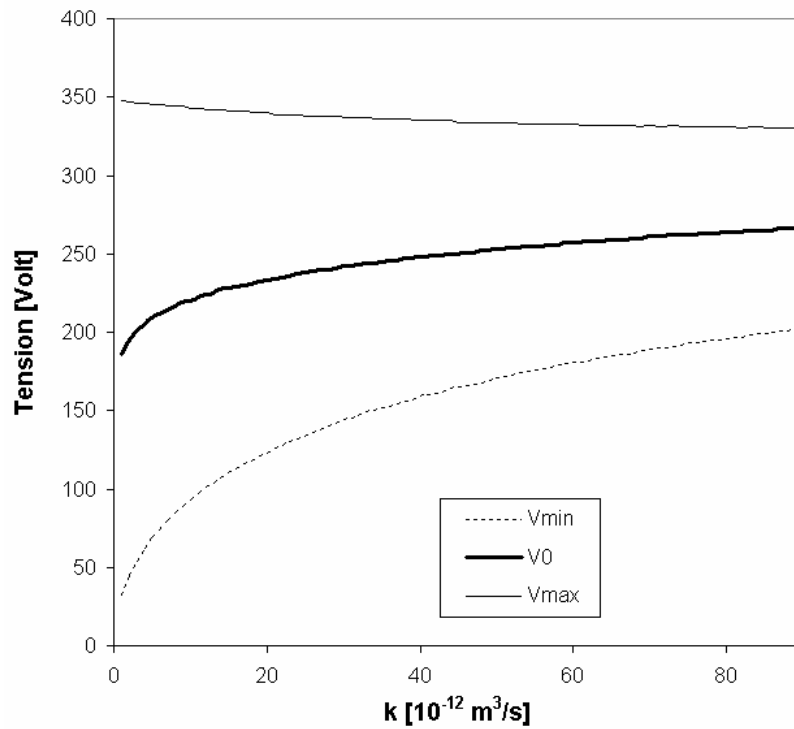
La formule de Townsend est simpliste et ne reproduit pas avec exactitude les données expérimentales à faible champ électrique. On s'attend donc à une description du début de l'avalanche de mauvaise qualité. Pour une détermination plus précise du coefficient  $\alpha$ , l'utilisation du logiciel BOLSIG sera incontournable. Ce travail sera présenté au chapitre III. Malgré tout, on constate que l'on reproduit déjà globalement la forme d'une courbe de calibration expérimentale (cf. figures 2 et 11). On distingue sur la figure 31 la zone de saturation, encadrée par le régime de recombinaison à gauche et le régime d'avalanche à droite. Nous pouvons maintenant étudier la déformation d'une courbe de calibration en fonction de paramètres tels que la pression du gaz ou la distance inter électrodes.

#### II.2.C.a) Evolution de la forme d'une courbe de calibration avec le coefficient $k$ de recombinaison

Lorsque le coefficient  $k$  de recombinaison diminue, on observe sur la figure 32 une augmentation de la taille et de la qualité du plateau de saturation.

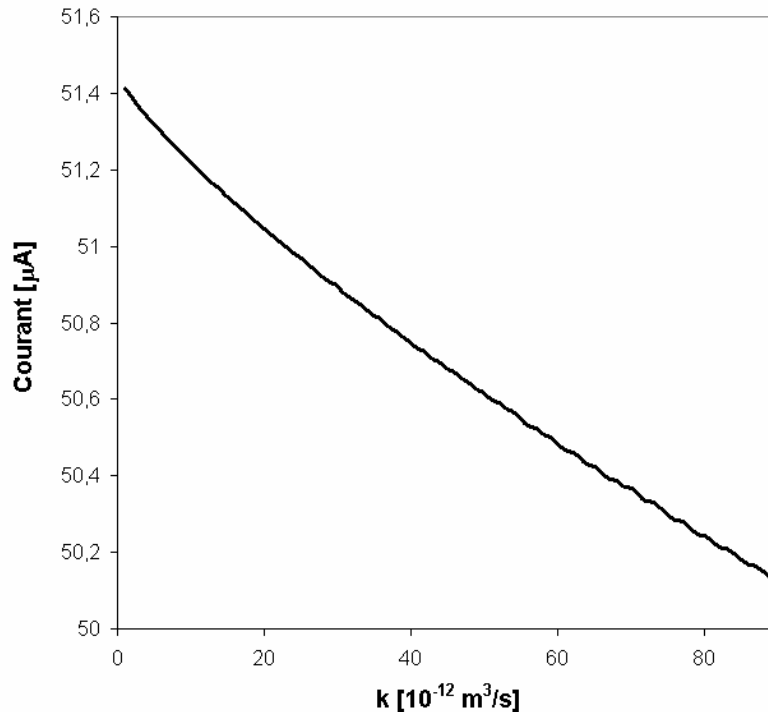


**Figure 32 :** Courbes de calibration théoriques pour différents coefficients  $k$ . (Le gaz de remplissage est de l'argon à une pression  $P$  de 1 bar,  $R_1 = 1,25$  mm,  $R_2 = 1,75$  mm,  $X_0 = 2 \cdot 10^8$  paires.m<sup>-1</sup>,  $\tau_f = 1,5 \cdot 10^9$  f.s<sup>-1</sup>. Le coefficient  $\alpha$  est évalué en utilisant la formule de Townsend).



**Figure 33 :** Evolution de  $\Delta V_{min}$ ,  $\Delta V_0$  et  $\Delta V_{max}$  avec le coefficient  $k$ . (Le gaz de remplissage est de l'argon à une pression  $P$  de 1 bar,  $R_1 = 1,25$  mm,  $R_2 = 1,75$  mm,  $X_0 = 2 \cdot 10^8$  paires.m<sup>-1</sup>,  $\tau_f = 1,5 \cdot 10^9$  f.s<sup>-1</sup>. Le coefficient  $\alpha$  est évalué en utilisant la formule de Townsend).

Si l'on trace l'évolution de  $\Delta V_{min}$  (tension au premier point du plateau de saturation),  $\Delta V_0$  (tension au point de fonctionnement),  $\Delta V_{max}$  (tension au dernier point du plateau) et  $I_0$  (courant au point de fonctionnement) en fonction du coefficient  $k$  de recombinaison, on obtient les figures 33 et 34.



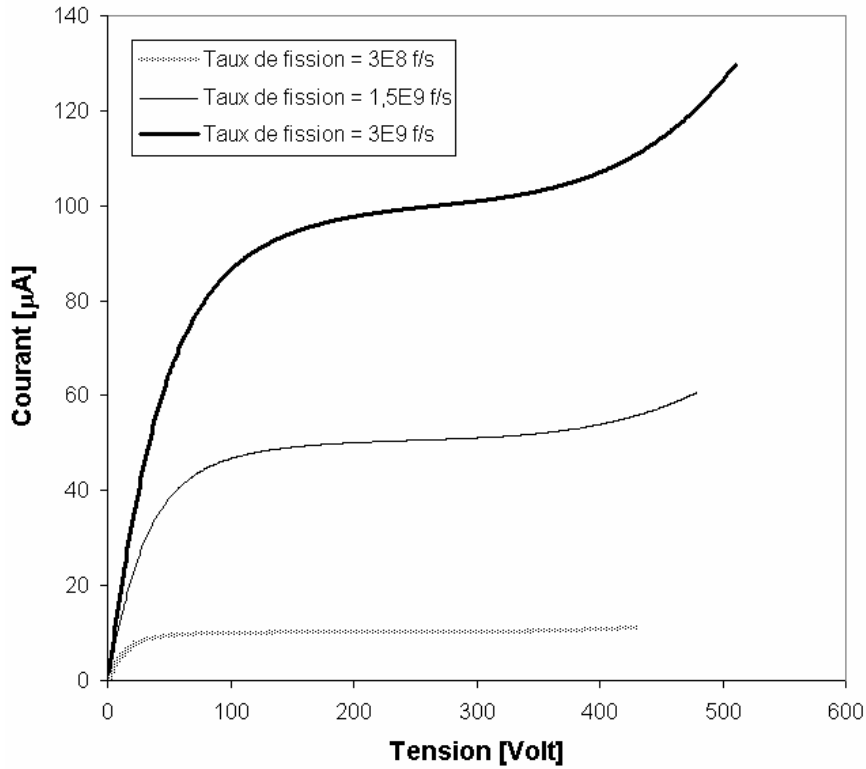
**Figure 34 :** Evolution de  $I_0$  avec le coefficient  $k$ . (Le gaz de remplissage est de l'argon à une pression  $P$  de 1 bar,  $R_1 = 1,25$  mm,  $R_2 = 1,75$  mm,  $X_0 = 2 \cdot 10^8$  paires. $\text{m}^{-1}$ ,  $\tau_f = 1,5 \cdot 10^9$  f. $\text{s}^{-1}$ . Le coefficient  $\alpha$  est évalué en utilisant la formule de Townsend).

On constate ainsi que :

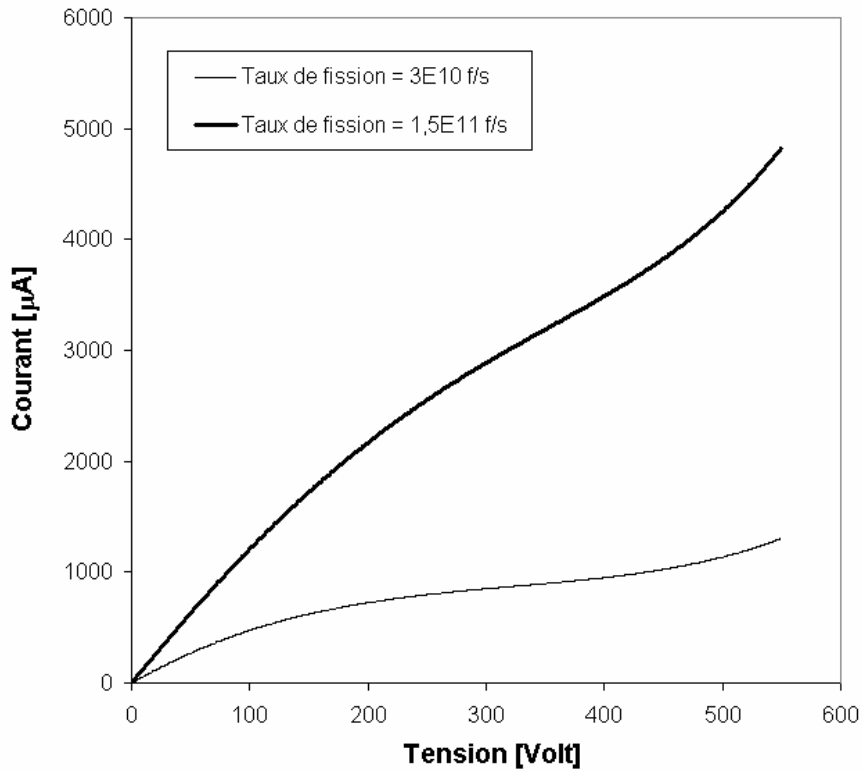
- la tension  $\Delta V_{max}$  et le courant  $I_0$  sont quasiment indépendants de  $k$  sur deux ordres de grandeurs. Ce résultat n'est pas surprenant, les processus de recombinaison sont en effet négligeables à la saturation et à l'avalanche (cf. paragraphes II.1.E ou II.2.A).
- Lorsque le coefficient  $k$  augmente, la taille du plateau de saturation, donnée par la différence entre  $\Delta V_{max}$  et  $\Delta V_{min}$ , se réduit. Les processus de recombinaison restent non négligeables à tension élevée (cf. terme  $I_2$  dans la formule (II.1.45)) et la transition avec le régime de saturation est de plus en plus tardive. Sur la figure 33, on remarque ainsi que  $\Delta V_{min}$  augmente avec  $k$ .

### II.2.C.b) Evolution de la forme d'une courbe de calibration avec le taux de fission $\tau_f$

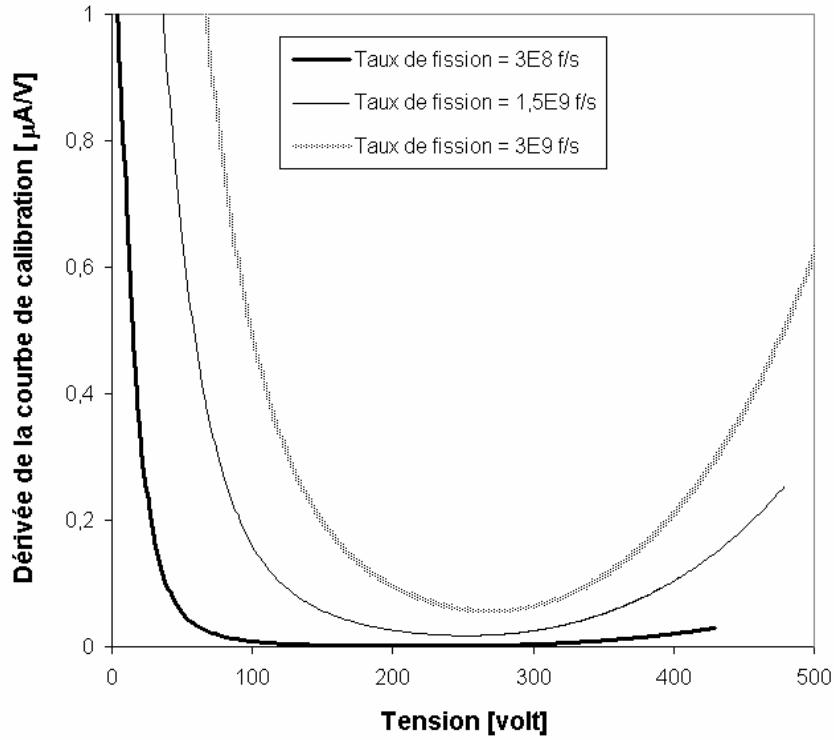
Lorsque le taux de fission augmente, on observe expérimentalement une déformation progressive des courbes de calibration (cf. figures 2 et 18). Le plateau s'estompe peu à peu, jusqu'à disparaître complètement. A haut taux de fission, on saute directement du régime de recombinaison au régime d'avalanche, sans passer par la saturation. Cette évolution est correctement reproduite sur les courbes théoriques présentées figures 35 à 37.



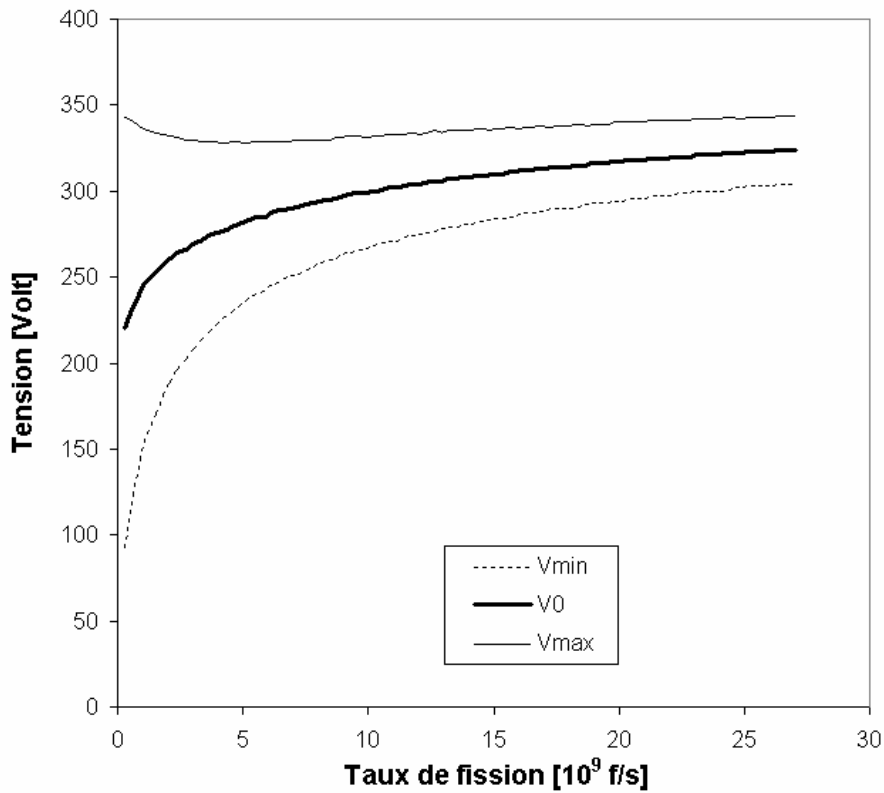
**Figure 35 :** Déformation des courbes de calibration à haut taux de fission. (Le gaz de remplissage est de l'argon à une pression  $P$  de 1 bar,  $R_1 = 1,25$  mm,  $R_2 = 1,75$  mm,  $X_0 = 2 \cdot 10^8$  paires. $m^{-1}$ ,  $k = 5 \cdot 10^{-11}$   $m^3/s$ . Le coefficient  $\alpha$  est évalué en utilisant la formule de Townsend).



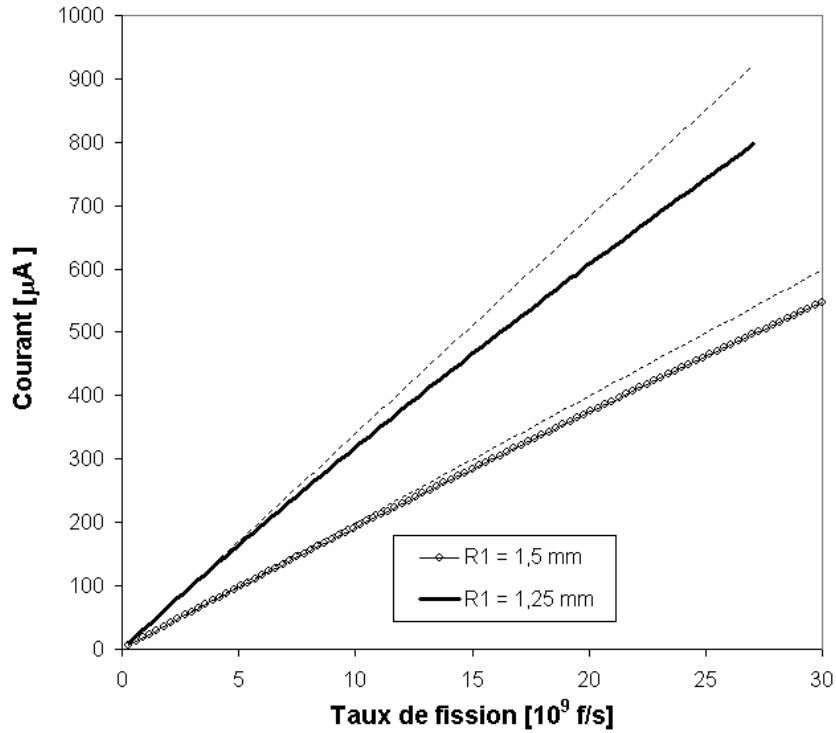
**Figure 36 :** Déformation des courbes de calibration à haut taux de fission. (Le gaz de remplissage est de l'argon à une pression  $P$  de 1 bar,  $R_1 = 1,25$  mm,  $R_2 = 1,75$  mm,  $X_0 = 2 \cdot 10^8$  paires. $m^{-1}$ ,  $k = 5 \cdot 10^{-11}$   $m^3/s$ . Le coefficient  $\alpha$  est évalué en utilisant la formule de Townsend).



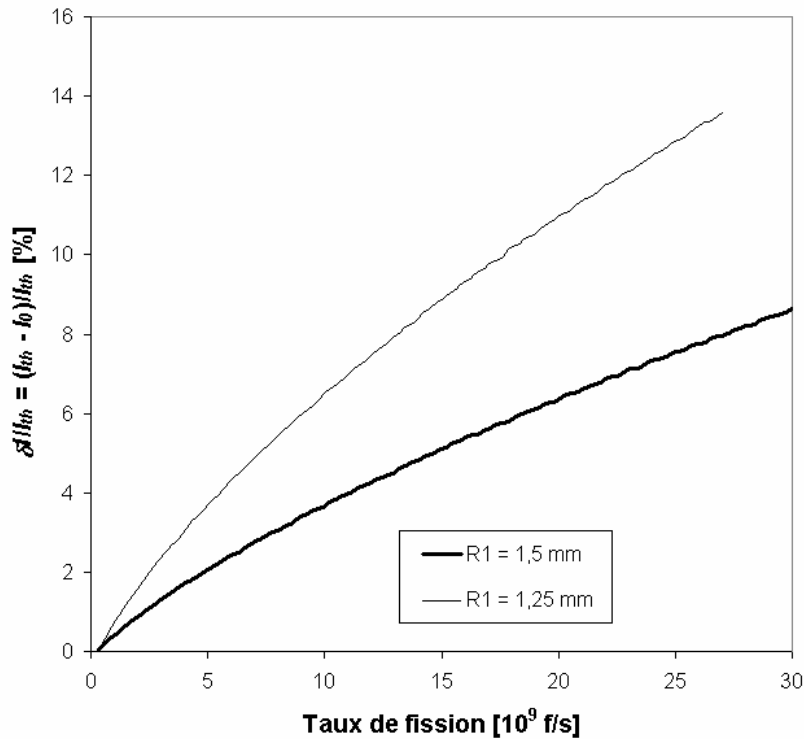
**Figure 37 :** Pentes  $P = \partial I / \partial V$  des courbes de calibration et disparition du plateau à haut taux de fission. (Le gaz de remplissage est de l'argon à une pression  $P$  de 1 bar,  $R_1 = 1,25$  mm,  $R_2 = 1,75$  mm,  $X_0 = 2 \cdot 10^8$  paires. $m^{-1}$ ,  $k = 5 \cdot 10^{-11}$   $m^3/s$ . Le coefficient  $\alpha$  est évalué en utilisant la formule de Townsend).



**Figure 38 :** Tensions caractéristiques des régimes de recombinaison, de saturation et d'avalanche en fonction du taux de fission. (Le gaz de remplissage est de l'argon à une pression  $P$  de 1 bar,  $R_2 = 1,75$  mm,  $X_0 = 2 \cdot 10^8$  paires. $m^{-1}$ ,  $k = 5 \cdot 10^{-11}$   $m^3/s$ . Le coefficient  $\alpha$  est évalué en utilisant la formule de Townsend).



**Figure 39 :** Evolution du courant  $I_0$  avec le taux de fission  $\tau_f$  pour deux rayons d'anode  $R_1$  différents. (Le gaz de remplissage est de l'argon à une pression  $P$  de 1 bar,  $R_2 = 1,75 \text{ mm}$ ,  $X_0 = 2 \cdot 10^8 \text{ paires.m}^{-1}$ ,  $k = 5 \cdot 10^{-11} \text{ m}^3/\text{s}$ . Le coefficient  $\alpha$  est évalué en utilisant la formule de Townsend).



**Figure 40 :** Ecart à la loi linéaire  $I_0 \propto \tau_f$  en fonction du taux de fission.  $I_{th}$  est le courant attendu si la loi linéaire était vérifiée. (Le gaz de remplissage est de l'argon à une pression  $P$  de 1 bar,  $R_2 = 1,75 \text{ mm}$ ,  $X_0 = 2 \cdot 10^8 \text{ paires.m}^{-1}$ ,  $k = 5 \cdot 10^{-11} \text{ m}^3/\text{s}$ . Le coefficient  $\alpha$  est évalué en utilisant la formule de Townsend).

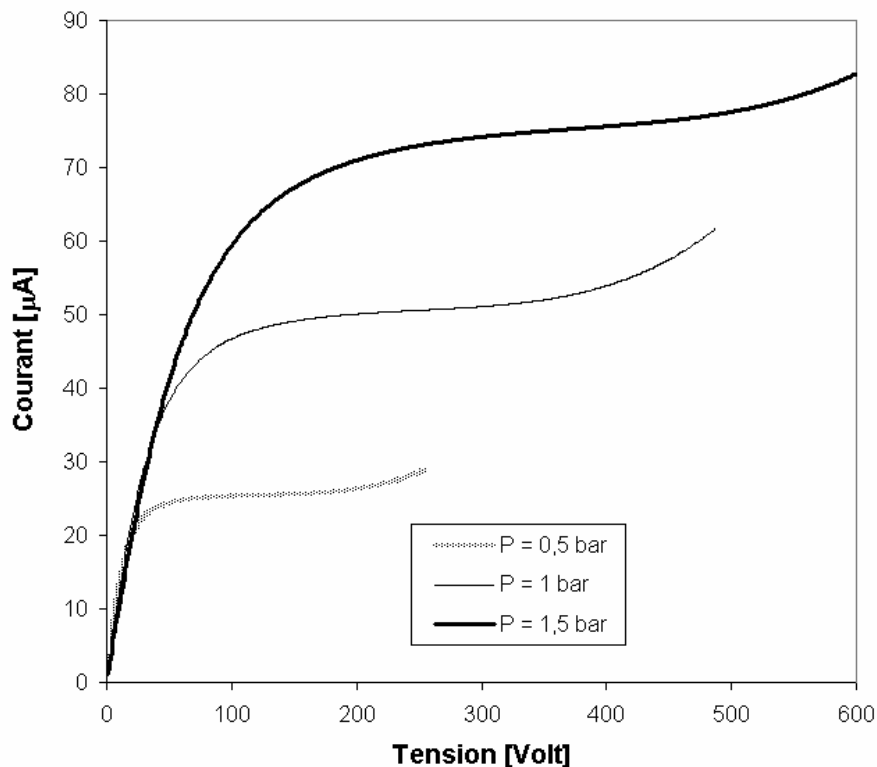


On constate par ailleurs sur les figures 38 à 40 que :

- la tension  $\Delta V_0$  diminue progressivement quand le taux de fission diminue.
- Le courant  $I_0$  au point de fonctionnement ne varie plus linéairement avec  $\tau_f$  à haut taux de fission (cf. figure 39). Cette perturbation majeure est principalement due au renforcement du terme de recombinaison  $k.n_e.n_a$ , les densités de charges augmentant avec  $\tau_f$ .
- Une réduction du gap inter électrodes  $d$  doit logiquement s'accompagner d'une diminution du nombre de charges présentes dans le gaz. En conséquence, on s'attend à ce que l'écart par rapport à la loi linéaire  $I_0 \propto \tau_f$  se réduise quand  $d$  diminue. Cette conclusion est vérifiée figure 40. On constate en effet que l'écart atteint 4 % environ pour  $R_I = 1,25$  mm et tombe à 2 % pour  $R_I = 1,5$  mm, à  $\tau_f = 5 \cdot 10^9$  f.s<sup>-1</sup>.

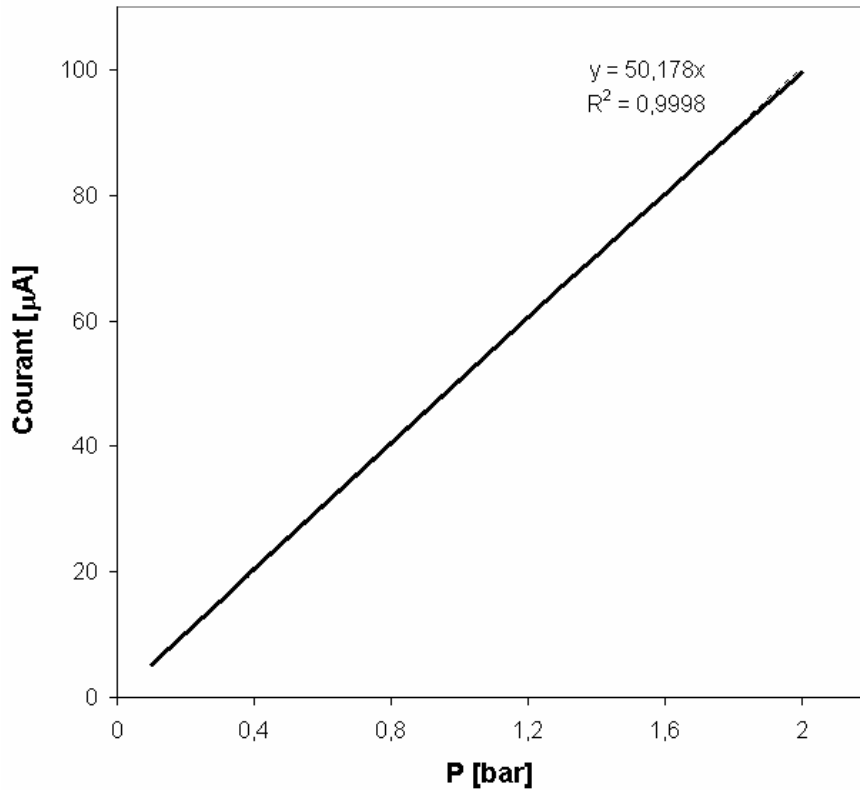
### II.2.C.c) Evolution de la forme d'une courbe de calibration avec la pression $P$ du gaz

Lorsque la pression du gaz de remplissage augmente, les charges électriques se déplacent plus lentement et le nombre d'ionisations secondaires est en conséquence réduit. Pour atteindre l'avalanche, il est alors nécessaire de transmettre plus d'énergie cinétique aux électrons. Une augmentation de la pression  $P$  doit donc s'accompagner d'un décalage de l'avalanche vers les tensions élevées, comme on le vérifie sur la figure 41.



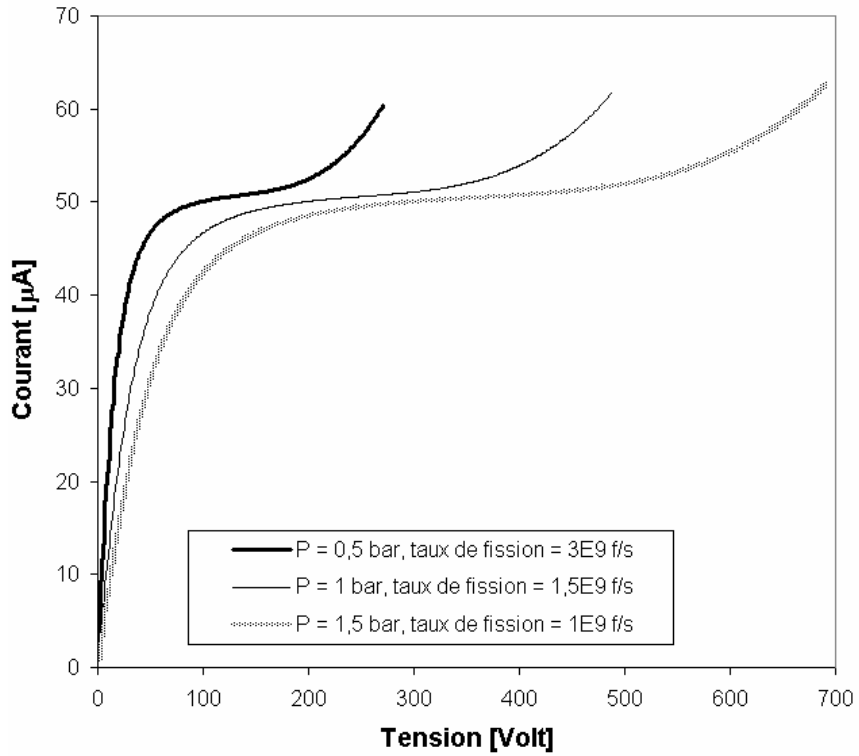
**Figure 41** : Courbes de calibration théoriques pour plusieurs pressions  $P$ . (Le gaz de remplissage est de l'argon,  $R_I = 1,25$  mm,  $R_2 = 1,75$  mm,  $\tau_f = 1,5 \cdot 10^9$  f.s<sup>-1</sup>. Le coefficient  $\alpha$  est évalué en utilisant la formule de Townsend).

La densité  $N$  de paires créées par les produits de fission augmente linéairement avec la pression  $P$  (via le coefficient  $X_0$ ). De plus, le courant  $I_{sat}$  est indépendant des mobilités et du coefficient de première ionisation. Par conséquent, comme nous pouvons le constater figure 42, le courant  $I_0$  est une fonction quasi-linéaire de  $P$  pour des pressions proches du bar.

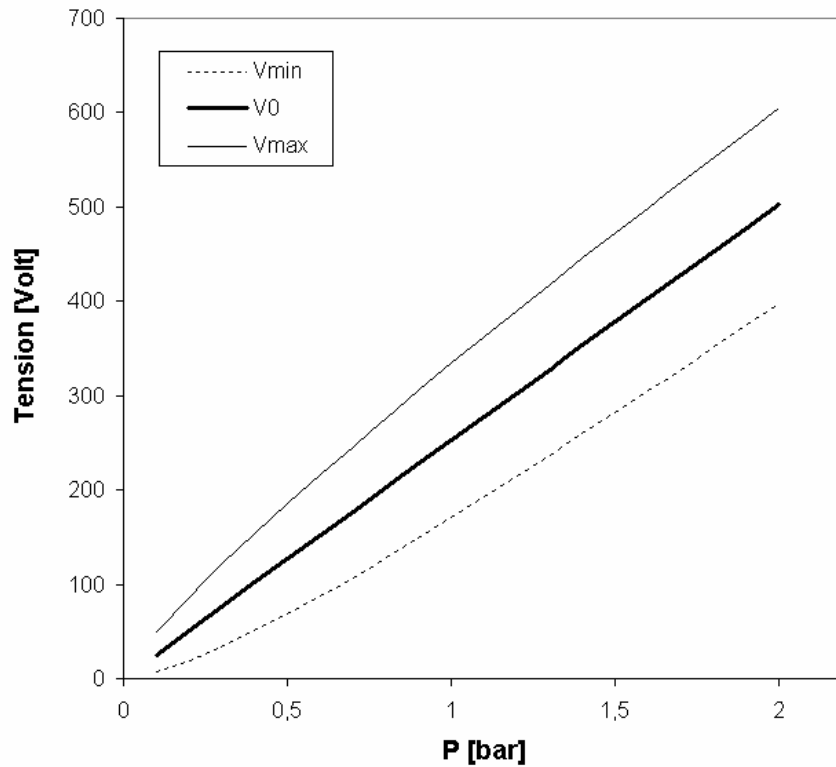


**Figure 42 :** Evolution de  $I_0$  avec la pression  $P$ . (Le gaz de remplissage est de l'argon,  $R_1 = 1,25$  mm,  $R_2 = 1,75$  mm,  $\tau_f = 1,5 \cdot 10^9$  f.s<sup>-1</sup>. Le coefficient  $\alpha$  est évalué en utilisant la formule de Townsend).

Nous avons ensuite fait varier la pression  $P$  et le taux de fission  $\tau_f$  afin de maintenir le courant à la saturation constant. En accord avec l'équation (II.2.9), fixer le courant  $I_{sat}$  revient à conserver le produit  $P \times \tau_f$ . On remarque alors sur la figure 43 qu'une augmentation de la pression s'accompagne d'une dilatation des courbes de calibration dans leur ensemble. Les tailles des régimes de recombinaison, de saturation et d'avalanche sont simultanément augmentées (cf. figure 44). Par conséquent, travailler à des pressions élevées permet d'améliorer la mesure du courant de saturation, et donc la détermination expérimentale du taux de fission. Attention toutefois aux phénomènes de charges d'espace, qui augmentent en  $P^2$  (cf. chapitre II.2.B).



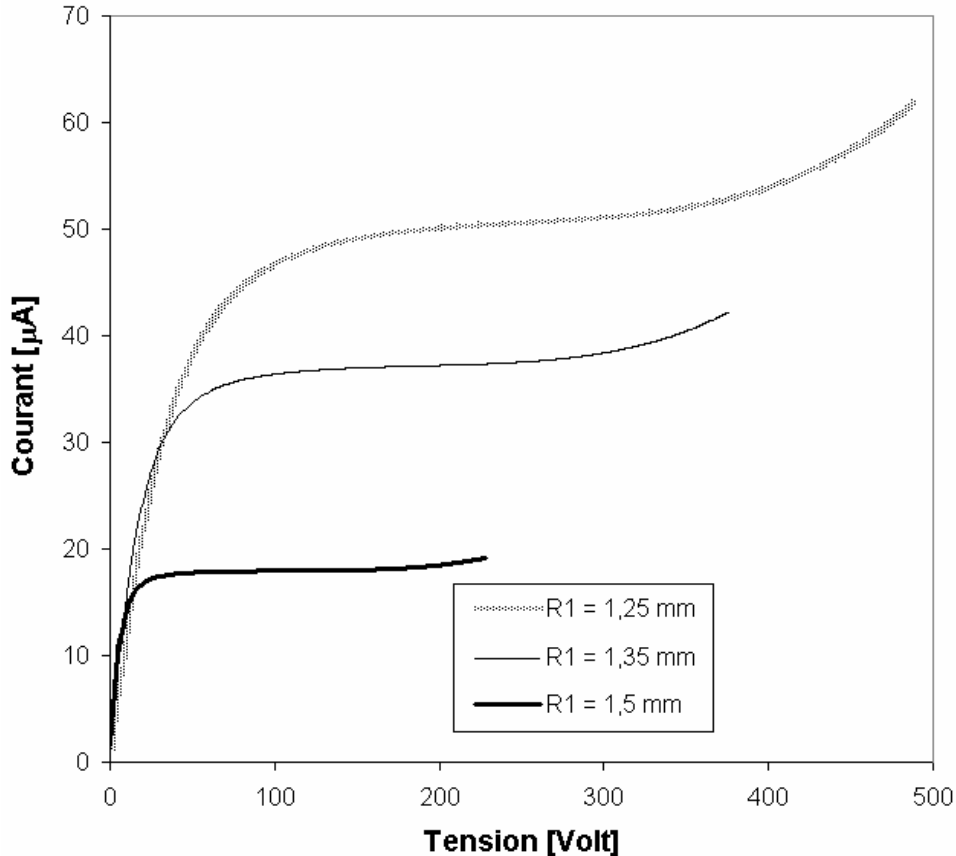
**Figure 43 :** Courbes de calibration théoriques pour différentes pressions  $P$ . Le taux de fission est ajusté afin de maintenir le courant de saturation constant. (Le gaz de remplissage est de l'argon,  $R_1 = 1,25$  mm,  $R_2 = 1,75$  mm. Le coefficient  $\alpha$  est évalué en utilisant la formule de Townsend).



**Figure 44 :** Evolution de  $\Delta V_{min}$ ,  $\Delta V_0$  et  $\Delta V_{max}$  avec la pression  $P$ . (Le gaz de remplissage est de l'argon,  $R_1 = 1,25$  mm,  $R_2 = 1,75$  mm,  $\tau_f = 1,5 \cdot 10^9$  f.s<sup>-1</sup>. Le coefficient  $\alpha$  est évalué en utilisant la formule de Townsend).

II.2.C.d) Evolution de la forme d'une courbe de calibration avec  $R_1$ , le rayon de l'anode

A rayon cathodique  $R_2$  fixé, une augmentation de  $R_1$  induit un renforcement du champ électrique  $E$ , en accord avec l'expression (II.1.50). Les vitesses des charges augmentent donc et les électrons induisent plus aisément des réactions d'ionisation secondaire. Par conséquent, le régime d'avalanche commence à des tensions plus basses, comme l'illustre la figure 45. Nous remarquerons toutefois que cet inconvénient est compensé par une amélioration de la qualité du plateau de saturation. En effet, sa pente se réduit progressivement quand  $d = R_2 - R_1$  diminue, ce qui autorise une détermination plus précise du courant  $I_{sat}$ .



**Figure 45 :** Courbes de calibration théoriques pour différents rayons d'anode  $R_1$ . (Le gaz de remplissage est de l'argon à une pression de 1 bar,  $R_2 = 1,75$  mm,  $X_0 = 2 \cdot 10^8$  paires.m<sup>-1</sup>,  $\tau_f = 1,5 \cdot 10^9$  f.s<sup>-1</sup>. Le coefficient  $\alpha$  est évalué en utilisant la formule de Townsend).

Le courant  $I_0$  au point de fonctionnement demeure proche de  $I_{sat}$  pour des taux de fissions conventionnels (inférieurs à  $10^9$  f.s<sup>-1</sup>). Par conséquent, sa sensibilité aux rayons  $R_1$  et  $R_2$  est conforme aux résultats obtenus au paragraphe II.2.A.c.

II.2.D) *Calcul de la tension à ne pas dépasser si l'on souhaite éviter le régime d'avalanche*

Nous déterminerons dans cette section la tension au dernier point du plateau de saturation  $\Delta V_{max}$  pour différents gaz purs et mélange gazeux. En fin de saturation, c'est-à-dire au début de l'avalanche, les processus de recombinaison sont négligeables. Le système (II.2.20) se réécrit donc :

$$\begin{cases} -\frac{\partial}{\partial r} n_e v_e = \langle N \rangle + \alpha n_e v_e \\ \frac{\partial}{\partial r} n_a v_a = \langle N \rangle + \alpha n_e v_e \\ E = \frac{\Delta V}{R_2 - R_1} \\ n_e(R_2) = 0, n_a(R_1) = 0 \end{cases} \quad (\text{II.2.28})$$

On obtient alors :

$$n_e(r) = \frac{\langle N \rangle}{\alpha(E) \mu_e(E) E} \left[ e^{(R_2-r)\alpha(E)} - 1 \right] \quad (\text{II.2.29})$$

Le courant délivré s'écrit ainsi :

$$I = 2\pi h e R_1 \frac{\langle N \rangle}{\alpha(E)} \left[ e^{(R_2-R_1)\alpha(E)} - 1 \right] \quad (\text{II.2.30})$$

Pour estimer le dernier point du plateau de saturation, il suffira donc de poser par exemple :

$$I_{\max} = I(\Delta V_{\max}) = 1,05 \times I_{\text{sat}} \quad (\text{II.2.31})$$

Cette condition se traduit par l'équation en  $E_{\max}$  suivante :

$$\frac{e^{(R_2-R_1)\alpha(E_{\max})} - 1}{\alpha(E_{\max})} = 1,05 \times (R_2 - R_1) \quad (\text{II.2.32})$$

Cette égalité peut se résoudre et on obtient une condition sur le coefficient de première ionisation  $\alpha$  :

$$\alpha(E_{\max}) \approx \frac{0,098}{R_2 - R_1} \quad (\text{II.2.33})$$

Pour  $R_1 = 1,25$  mm,  $R_2 = 1,75$  mm et  $P = 1$  bar, on obtient ainsi :

$$\alpha(E_{\max}) \approx 193,6 \text{ m}^{-1} \quad (\text{II.2.34})$$

En utilisant les résultats BOLSIG présentés figure 12, on calcule alors les champ électriques solutions de l'équation (II.2.34) pour différents gaz. Les résultats sont récapitulés dans le tableau 4.

Gaz	$E_{max}$ [ $10^6$ V.m <sup>-1</sup> ]
Hélium	0,289
Néon	0,289
Argon	0,502
Ar + 1 ‰ Xe	0,464
Ar + 1 % Xe	0,319
Krypton	0,942
Xénon	1,0

**Tableau 4 :** Champs électriques au début du régime d’avalanche dans une chambre CFUT-C3 pour différents gaz.

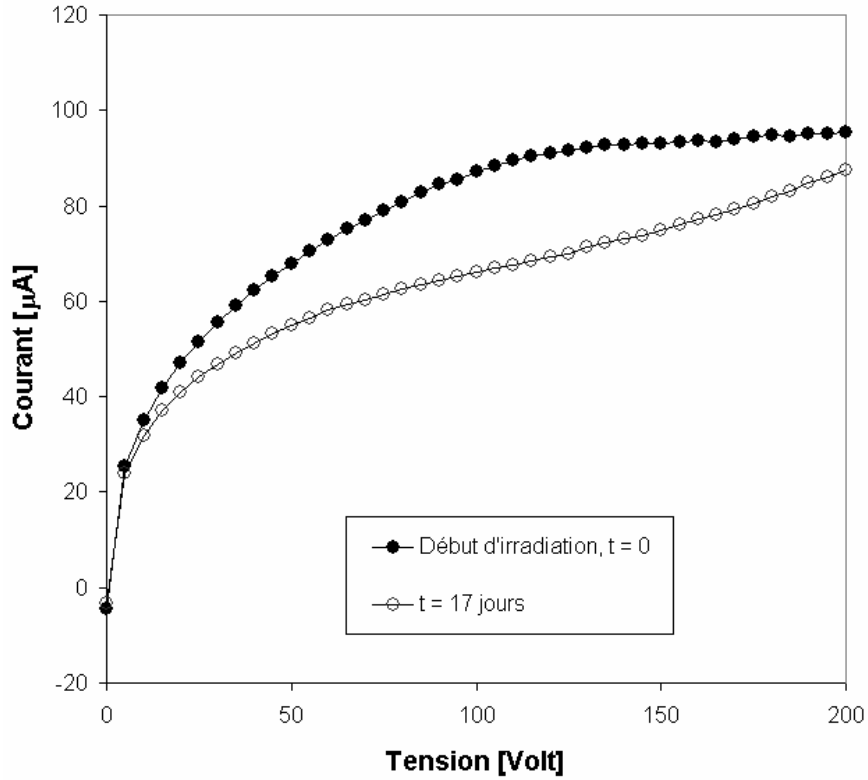
En utilisant l’expression du champ électrique donnée en (II.2.28), on obtient finalement :

Gaz	$\Delta V_{max}$ [Volt]
Hélium	140
Néon	140
Argon	250
Ar + 1 ‰ Xe	230
Ar + 1 % Xe	160
Krypton	470
Xénon	500

**Tableau 5 :** Tensions au début du régime d’avalanche dans une chambre CFUT-C3 pour différents gaz.

En conclusion, on observe que (cf. tableau 5) :

- rajouter à l’argon un contaminant dont le potentiel d’ionisation est plus faible entraîne logiquement une accélération de l’ionisation secondaire et un décalage vers les basses tensions du régime d’avalanche.
- En particulier, une contamination de l’argon en xénon a des conséquences catastrophiques sur la taille du plateau de saturation. La tension  $\Delta V_{max}$  diminue en effet rapidement avec le pourcentage de xénon présent. Or, ce gaz fait précisément partie des produits de fission les plus probables de l’uranium 235 (3 % des produits de fission sont des isotopes du xénon, stables ou non). Pour un dépôt de 4  $\mu\text{g}$  d’uranium 235 dans un flux thermique de  $10^{15}$  n.cm<sup>-2</sup>.s<sup>-1</sup>, la contamination de l’argon en xénon atteint au bout de 40 jours environ 1 ‰ dans une chambre CFUT-C3 standard à une pression de un bar. L’impact du xénon est illustré sur les courbes de calibration expérimentales présentées figure 46. Nous y observons un décalage progressif du régime d’avalanche vers les basses tensions au cours de l’irradiation.
- Une chambre à l’hélium ou au néon ne peut fonctionner en régime de saturation à des taux de fissions élevés. L’avalanche intervient trop tôt et le plateau de saturation est en conséquence réduit, voire inexistant.
- A l’opposé, une chambre qui utiliserait une atmosphère de krypton présenterait des caractéristiques intéressantes. Bien que le potentiel de première ionisation du krypton soit proche de celui de l’argon (14 eV au lieu de 15,75 eV), on remarque que l’avalanche y intervient très tardivement et on peut donc s’attendre à des tailles de plateaux de saturation exceptionnelles.



**Figure 46 :** Evolution de la forme des courbes de calibration en cours d'irradiation pour une chambre CFUT-C3 avec un dépôt d'uranium 235 dans un flux thermique de  $10^{15}$  n.cm<sup>-2</sup>.s<sup>-1</sup>. Contamination progressive du gaz d'argon, décalage de l'avalanche vers les tensions basses et disparition du plateau de saturation.

### II.2.E) Calcul de la tension au premier point du plateau de saturation

Dans ce dernier paragraphe, nous calculerons la tension  $\Delta V_{min}$  au premier point du plateau de saturation pour une chambre à fission cylindrique. Ce point  $\Delta V_{min}$  caractérise également la fin du régime de recombinaison. Dans cette zone, les processus d'ionisation secondaire sont négligeables et le système (II.1.43) se réécrit :

$$\begin{cases} -\frac{1}{r} \frac{\partial}{\partial r} r n_e v_e = N(r) - k n_e n_a \\ \frac{1}{r} \frac{\partial}{\partial r} r n_a v_a = N(r) - k n_e n_a \end{cases} \quad (\text{II.2.35})$$

On effectuera par ailleurs les simplifications suivantes :

- la densité  $N(r)$  sera moyennée sur l'espace inter électrodes et remplacée par une constante  $\langle N \rangle$  indépendante de  $r$ ,
- les processus de diffusion seront négligés,
- le taux de fission sera suffisamment faible pour que les charges d'espace soient négligeables,
- les mobilités  $\mu_e$  et  $\mu_a$  des électrons et des ions seront considérées comme constantes. Elles sont portées au tableau 6 pour différents gaz [12, 18].

Mobilité [ $\text{m}^2 \cdot \text{V}^{-1} \cdot \text{s}^{-1}$ ]	Hélium	Néon	Argon	Krypton
$\mu_e$	0,259	0,086	0,035	0,02
$\mu_a$	$3,3 \cdot 10^{-4}$	$1,110^{-4}$	$4,45 \cdot 10^{-5}$	$2,6 \cdot 10^{-5}$

**Tableau 6 :** Mobilités électroniques et ioniques pour différents gaz [12, 18].

Sous ces conditions, les vitesses  $v_e$  et  $v_a$  des électrons et des ions obéissent aux équations (II.2.14) et le système (II.2.35) devient :

$$\begin{cases} E = \frac{\Delta V}{r \ln(R_2/R_1)} \\ -X_1 \frac{\partial}{\partial r} n_e = r \langle N \rangle - k r n_e n_a \\ X_2 \frac{\partial}{\partial r} r n_a = r \langle N \rangle - k r n_e n_a \end{cases} \quad (\text{II.2.36})$$

$$\text{avec : } X_1 = \frac{\mu_e \Delta V}{\ln(R_2/R_1)}, \quad X_2 = \frac{\mu_a \Delta V}{\ln(R_2/R_1)} \quad (\text{II.2.37})$$

On remarquera que le courant  $I_{sat}$  à la saturation vaut :

$$I_{sat} = \langle N \rangle \pi h e (R_2^2 - R_1^2) \quad (\text{II.2.38})$$

Par conséquent, nous avons :

$$\langle N \rangle = \frac{X_0 \tau_f G}{2\pi^2 h (R_2^2 - R_1^2)} \quad (\text{II.2.39})$$

En utilisant l'expression (II.1.33), la deuxième équation du système (II.2.36) peut se réécrire :

$$-X_1 \frac{\partial}{\partial r} n_e = r \langle N \rangle - k r n_e \left( \frac{I}{2\pi h e X_2} - \frac{X_1}{X_2} n_e \right) \quad (\text{II.2.40})$$

Cette équation admet pour solution :

$$n_e(r) = \frac{kI - K \tan\left(\frac{K}{8\pi h e X_1 X_2} (r^2 + 2C)\right)}{4\pi h e k X_1} \quad (\text{II.2.41})$$

$$\text{où : } K = \sqrt{16k \langle N \rangle \pi^2 h^2 e^2 X_1 X_2 - k^2 I^2} \quad (\text{II.2.42})$$

$C$  est une constante d'intégration que l'on déterminera à partir de la condition limite  $n_e(R_2) = 0$ . On calcule alors :



$$C = \frac{4\pi h e X_1 X_2}{K} \arctan\left(\frac{kI}{K}\right) - \frac{R_2^2}{2} \quad (\text{II.2.43})$$

En utilisant l'égalité (II.1.35), on montre ensuite que :

$$I = 2\pi h e X_1 n_e(R_1) \quad (\text{II.2.44})$$

Et en y réinjectant l'expression (II.2.41) en  $r = R_1$ , on obtient finalement l'équation suivante :

$$\frac{I}{I_{sat}} = \frac{\sin(X)}{X} \quad (\text{II.2.45})$$

avec :

$$\begin{cases} X = \frac{2}{Y} \sqrt{Y - \left(\frac{I}{I_{sat}}\right)^2} \\ Y = \frac{16\mu_e\mu_a}{k\langle N \rangle (R_2^2 - R_1^2)^2 \ln(R_2/R_1)^2} \Delta V^2 \end{cases} \quad (\text{II.2.46})$$

Pour résoudre cette équation, nous aurons besoin de définir la fonction inverse de  $\sin(x)/x$ . Pour  $x \in [0, \pi]$ ,  $\sin(x)/x$  est continue, décroissante et comprise entre 0 et 1 (cf. figure 47). Nous poserons par conséquent  $\Xi : [0, 1] \rightarrow [0, \pi]$ , fonction telle que :

$$\Xi\left(\frac{\sin(Y)}{Y}\right) = Y \quad (\text{II.2.47})$$

Nous avons calculé le graphe de  $\Xi$ , porté figure 48. En utilisant les relations  $\{\Delta V = 0, I = 0\}$  et  $\{\Delta V = +\infty, I = I_{sat}\}$  (absence d'avalanche, cf. système (II.2.35)), on calcule alors la solution en  $\Delta V$ , qui s'écrit :

$$\Delta V = \Delta V_{NORM} \begin{cases} \frac{\left[1 + \sqrt{1 - \left(\frac{I}{I_{sat}}\right)^2} \Xi\left(\frac{I}{I_{sat}}\right)\right]^{1/2}}{\Xi\left(\frac{I}{I_{sat}}\right)} \text{ quand } \left(\frac{I}{I_{sat}}\right) \geq \beta \\ \frac{\left[1 - \sqrt{1 - \left(\frac{I}{I_{sat}}\right)^2} \Xi\left(\frac{I}{I_{sat}}\right)\right]^{1/2}}{\Xi\left(\frac{I}{I_{sat}}\right)} \text{ quand } \left(\frac{I}{I_{sat}}\right) \leq \beta \end{cases} \quad (\text{II.2.48})$$

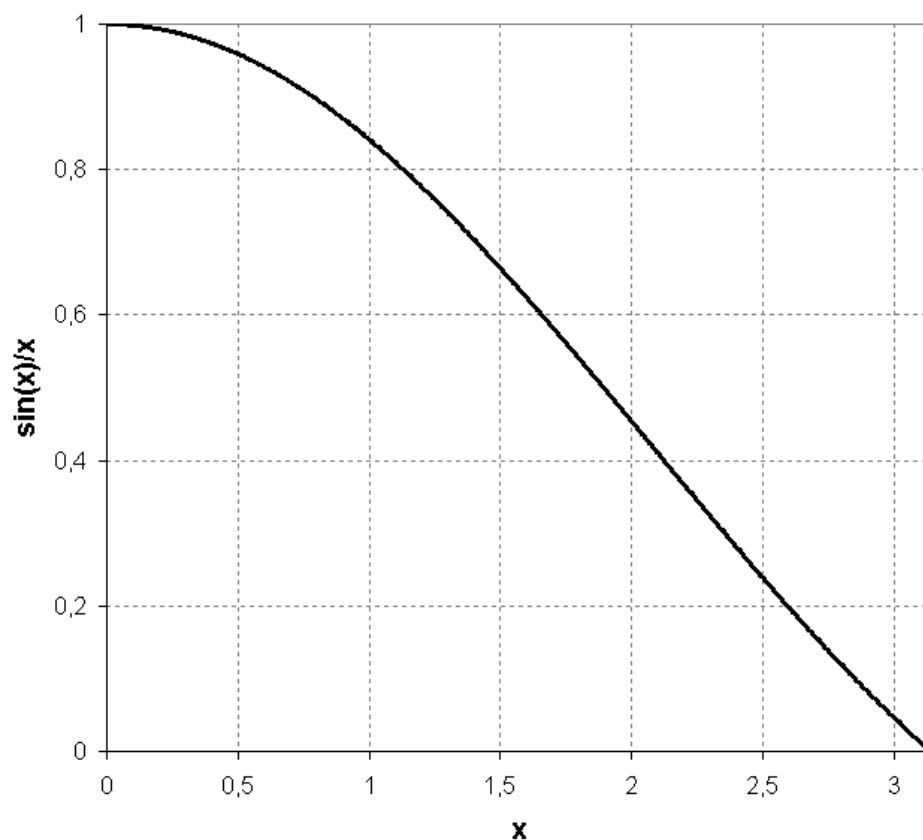


Figure 47 : Graphe de la fonction  $\sin(x)/x$ .

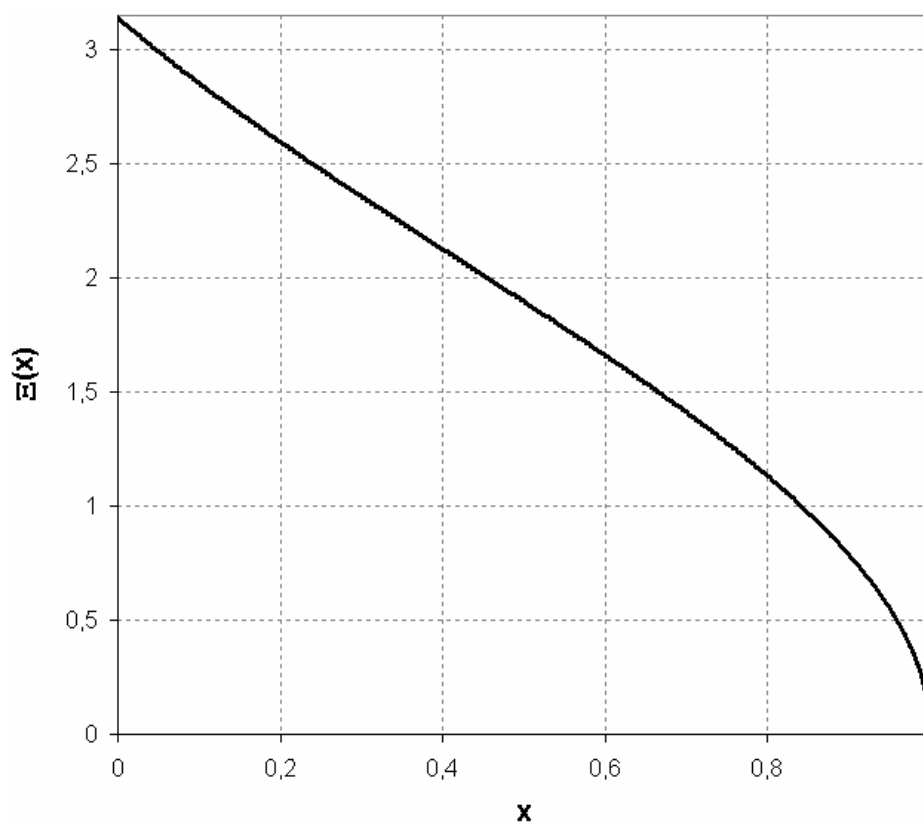


Figure 48 : Graphe de la fonction  $\Xi(x)$ .

$$\text{où : } \Delta V_{NORM} = \frac{(R_2^2 - R_1^2)}{2\sqrt{2}} \ln\left(\frac{R_2}{R_1}\right) \sqrt{\frac{k\langle N \rangle}{\mu_e \mu_a}} \quad (\text{II.2.49})$$

Le coefficient  $\beta$  qui figure dans l'expression (II.2.48) obéit à l'équation :

$$\Xi(\beta) = \frac{1}{\beta} \quad (\text{II.2.50})$$

$$\text{qui admet pour solution : } \beta = \frac{2}{\pi} \approx 0,6366 \quad (\text{II.2.51})$$

L'expression (II.2.48) définit entièrement la courbe de calibration dans la zone de recombinaison (cf. figure 49) pour une chambre à fission cylindrique où les charges d'espace sont négligeables. Pour calculer  $\Delta V_{min}$ , il suffit ensuite de poser (par exemple) :

$$I_{min} = I(\Delta V_{min}) = 0,95 \times I_{sat} \quad (\text{II.2.52})$$

Comme  $\Xi(0,95) = 0,55191$  (cf. figure 48), on obtient finalement :

$$\begin{aligned} \Delta V_{min} &= 0,8717 \times (R_2^2 - R_1^2) \ln\left(\frac{R_2}{R_1}\right) \sqrt{\frac{k\langle N \rangle}{\mu_e \mu_a}} \quad (\text{II.2.53}) \\ &= 0,1962 \times \Pi \times \Theta \times \sqrt{\tau_f} \end{aligned}$$

où  $\Pi$  et  $\Theta$  sont deux facteurs qui ne dépendent respectivement que des dimensions de la chambre à fission, et que de la pression et de la nature de son gaz de remplissage:

$$\begin{cases} \Pi = \sqrt{\frac{(R_2^2 - R_1^2)G}{h}} \ln\left(\frac{R_2}{R_1}\right) \\ \Theta = \sqrt{\frac{kX_0}{\mu_e \mu_a}} \end{cases} \quad (\text{II.2.54})$$

En absence de charges d'espace,  $\Delta V_{min}$  varie donc comme  $\tau_f^{1/2}$ . On vérifie ainsi que le régime de recombinaison se décale progressivement vers les tensions élevées lorsque le taux de fission augmente (cf. figure 38). Si l'on pose  $L$ , longueur de la zone de saturation, donnée par :

$$L = \Delta V_{max} - \Delta V_{min} \quad (\text{II.2.55})$$

on constate à nouveau que le plateau de saturation d'une chambre à fission se rétrécit quand le flux neutronique augmente. En effet, conformément à l'équation (II.2.33), la tension de début d'avalanche  $\Delta V_{max}$  est indépendante du taux de fission.

Par ailleurs, il est possible de démontrer à partir de l'équation (II.2.45) que le courant  $I$  délivré par la chambre obéit au développement limité en  $\Delta V \rightarrow +\infty$  suivant [21] :

$$\frac{I_{sat}}{I} = 1 + \sum_{n=1}^{+\infty} (-1)^{n+1} \lambda_n \left( \frac{k \langle N \rangle (R_2^2 - R_1^2)^2 \ln(R_2/R_1)^2}{\mu_e \mu_a} \right)^n \frac{1}{\Delta V^{2n}} \quad (\text{II.2.56})$$

où :  $\lambda_1 = \frac{1}{24}$ ,  $\lambda_2 = \frac{1}{720}$ ,  $\lambda_3 = \frac{47}{483840}$ ,  $\lambda_4 = \frac{83}{9676800}$ ,  $\lambda_5 = \frac{2609}{3065610240}$ , etc. (II.2.57)

Nous utiliserons cette loi pour calculer le coefficient  $k$  de recombinaison de l'argon en ajustant l'expression (II.2.56) aux premiers ordres sur une courbe de calibration expérimentale enregistrée à très bas taux de fission (charges d'espace négligeables). Les résultats obtenus figureront au paragraphe VIII.2.

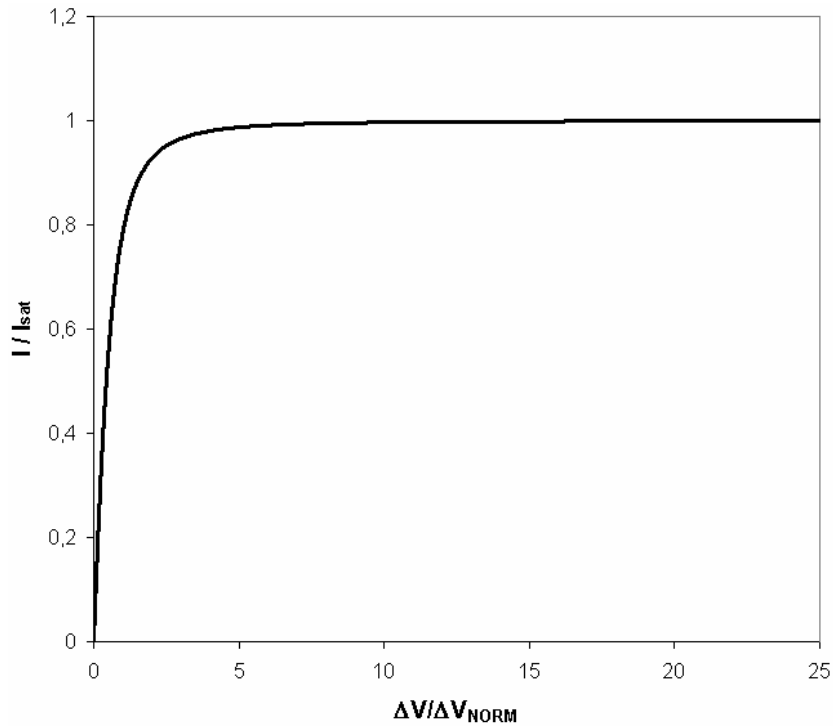
Enfin, conformément au développement (II.2.56), on constatera qu'au premier ordre :

$$\frac{I_{sat}}{I(\Delta V_{min})} = \frac{1}{0,95} \approx 1 + \frac{1}{24} \frac{k \langle N \rangle (R_2^2 - R_1^2)^2 \ln(R_2/R_1)^2}{\mu_e \mu_a} \frac{1}{\Delta V_{min}^2} \quad (\text{II.2.58})$$

ce qui donne :

$$\Delta V_{min} \approx 0,8898 \times (R_2^2 - R_1^2) \ln\left(\frac{R_2}{R_1}\right) \sqrt{\frac{k \langle N \rangle}{\mu_e \mu_a}} \quad (\text{II.2.59})$$

Cette valeur s'écarte de 2 % environ de l'expression (II.2.53) calculée à partir de la formule exacte (II.2.48), ce qui confirme la pertinence du développement limité (II.2.56).



**Figure 49** : Evolution du courant obtenu à l'aide de la formule (II.2.48) dans la zone de recombinaison et de saturation d'une chambre cylindrique où le taux de fission est suffisamment faible pour que les charges d'espace soient négligeables.

# CHAPITRE III

## Processus complexes et approche numérique

Dans les sections précédentes, nous avons décrit les processus physiques qui se déroulent à l'intérieur d'une chambre à fission fonctionnant en mode courant. De ces études, nous avons extrait un modèle permettant le calcul analytique des courbes de calibration en fonction de paramètres tels que la pression du gaz de remplissage ou le taux de fission. La forme des courbes obtenues est en bon accord avec le retour d'expérience accumulé auprès du RHF de l'ILL. Les modélisations présentées se sont révélées efficaces. Toutefois, le calcul analytique des courbes de calibration n'incorpore pas les perturbations associées aux charges d'espace, dont nous avons démontré précédemment l'importance à des taux de fission élevés. Le modèle analytique n'intègre pas non plus les interactions qui existent entre les atomes d'argon excités et les espèces auxquelles nous nous sommes jusqu'ici limités, à savoir les électrons, les ions et les atomes gazeux qui se trouvent dans leur état fondamental.

En conséquence, nous décrirons dans ce chapitre les processus physiques additionnels qui peuvent influencer subtilement le courant délivré par la chambre. Nous détaillerons ensuite les procédures numériques utilisées pour un calcul précis des courbes de calibration. Nous présenterons enfin un exemple d'application du modèle numérique à l'analyse des courbes de calibration expérimentale, avant de discuter des améliorations à apporter.

### III.1) Impact des atomes métastables sur le courant délivré

Comme nous le mentionnions brièvement au paragraphe II.1.B, les produits de fission qui traversent le gaz de remplissage dissipent une partie de leur énergie en excitant ou en ionisant les atomes gazeux. Pour les gaz rares, un produit de fission génère en moyenne 0,8 à 1 atome excité pour deux ions formés. Cependant, les durées de vie radiatives des niveaux excités sont généralement très courtes. Ces derniers disparaissent donc avant d'interagir avec les électrons, les ions ou les atomes gazeux et n'influencent donc pas la réponse de la chambre à fission.

Toutefois, l'atome d'argon possède également deux niveaux particuliers dont la durée de vie radiative est supérieure à la seconde. Ces niveaux, dits métastables, sont dénotés  $^3P_2$  et  $^3P_0$  et ont respectivement une énergie d'excitation de 11,55 eV et 11,72 eV (cf. figure 50). Comme nous le constaterons par la suite, les métastables peuvent induire un effet non négligeable sur le courant délivré, essentiellement en raison de leur exceptionnelle longévité et de leurs faibles potentiels d'ionisation : 4,2 eV pour l'état  $^3P_2$  et 4,03 eV pour  $^3P_0$ .

Les atomes métastables  $^3P_2$  et  $^3P_0$  sont créés ou détruits au cours de réactions variées que nous recenserons dans les paragraphes suivants. Leurs densités respectives  $n_2$  et  $n_0$  obéissent à deux équations de conservation, dont la forme est identique à celles qui régissent les densités électroniques et ioniques  $n_e$  et  $n_a$ .

$$\begin{cases} -D\Delta n_0 = T_S^{(0)} - T_P^{(0)} \\ -D\Delta n_2 = T_S^{(2)} - T_P^{(2)} \end{cases} \quad (\text{III.1.1})$$

Les termes  $T_S^{(2)}$ ,  $T_S^{(0)}$ ,  $T_P^{(2)}$  et  $T_P^{(0)}$  sont les densités d'atomes métastables  $^3P_2$  et  $^3P_0$  créés ou détruits par seconde.  $D$  est le coefficient de diffusion des métastables dans le gaz.

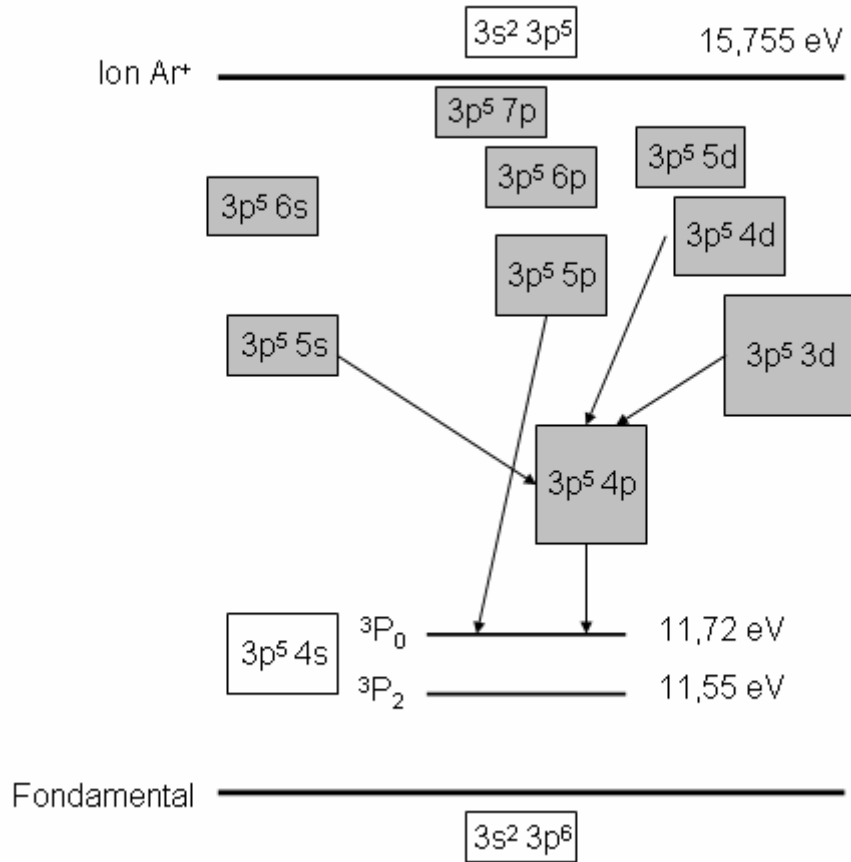


Figure 50 : Schéma de niveaux de l'argon.

### III.1.A) Processus de création des atomes métastables

- Les produits de fission excitent une partie des atomes avec lesquels ils entrent en collision. Une fraction de ces atomes excités se retrouve directement dans un des deux états  $^3P_2$  ou  $^3P_0$ . Les autres décroissent progressivement vers le fondamental et peuvent à leur tour transiter par un niveau métastable lorsque leur énergie d'excitation l'autorise. Ce phénomène de peuplement des niveaux métastables à partir des états excités est appelé « cascading ». Dans les deux cas de figure, les densités  $N_0^*$  et  $N_2^*$  d'atomes métastables  $^3P_0$  et  $^3P_2$  créés par les produits de fission par unité de temps seront proportionnelles à la densité  $N$  que nous avons calculée section II.1.A.

$$\begin{cases} N_0^* = \varepsilon_0 N \\ N_2^* = \varepsilon_2 N \end{cases} \quad (\text{III.1.2})$$

La somme des coefficients  $\varepsilon_0$  et  $\varepsilon_2$  est inférieure à 0,5, un produit de fission ne générant en moyenne qu'un atome excité pour deux paires électron - ion formées. Par la suite, nous poserons (arbitrairement) :

$$\varepsilon_0 = \varepsilon_2 = \varepsilon = 0,25 \quad (\text{III.1.3})$$

Au paragraphe III.3.A.b, nous constaterons que cette approximation ne porte pas à conséquence. En effet, nous remarquerons que la contribution des produits de fission est dominée à pression atmosphérique par les processus d'excitation impliquant les électrons.

- excitation des atomes neutres par les électrons : les électrons accélérés dans le champ électrique effectuent par seconde un nombre élevé de collisions avec les atomes du gaz de remplissage. Sous l'impact, ces atomes peuvent être excités, voire ionisés si l'électron incident dispose d'une énergie cinétique suffisante. Les atomes excités viendront ensuite peupler les niveaux métastables par « cascading ». Les sections efficaces totales de production de métastables par collisions électroniques sont données par Borst [22] pour l'hélium et l'argon, et par Mason et al [23] pour l'hélium, le néon, l'argon, le krypton et le xénon. Elles incluent le « cascading » et évitent en conséquence de s'intéresser aux populations des autres niveaux excités. Les contributions de ces processus aux termes  $T_S^{(0)}$  et  $T_S^{(2)}$  s'écrivent :

$$\begin{cases} T_S^{(0)}(\text{excitation}) = \left\langle \sigma_{Ar+e^- \rightarrow Ar(^3P_0)+e^-} v \right\rangle n_e n = k_{ex}^{(0)} n_e n \\ T_S^{(2)}(\text{excitation}) = \left\langle \sigma_{Ar+e^- \rightarrow Ar(^3P_2)+e^-} v \right\rangle n_e n = k_{ex}^{(2)} n_e n \end{cases} \quad (\text{III.1.4})$$

Les densités  $n_e$  et  $n$  sont respectivement les densités électroniques et les densités d'atomes gazeux. Les produits  $\sigma.v$  sont moyennés sur les distributions en vitesse des électrons, que nous approcherons par des maxwelliennes. On obtient alors les taux de réaction  $k$ , caractéristiques du processus considéré :

$$k = \langle \sigma v \rangle = \frac{\int_0^{+\infty} \sigma(v) v^3 e^{-Bv^2} dv}{\int_0^{+\infty} v^2 e^{-Bv^2} dv} = \frac{8}{m_e^2 \sqrt{\pi}} B^{3/2} \int_0^{+\infty} \sigma(E_c) E_c e^{-\frac{E_c}{k_B T_e}} dE_c \quad (\text{III.1.5})$$

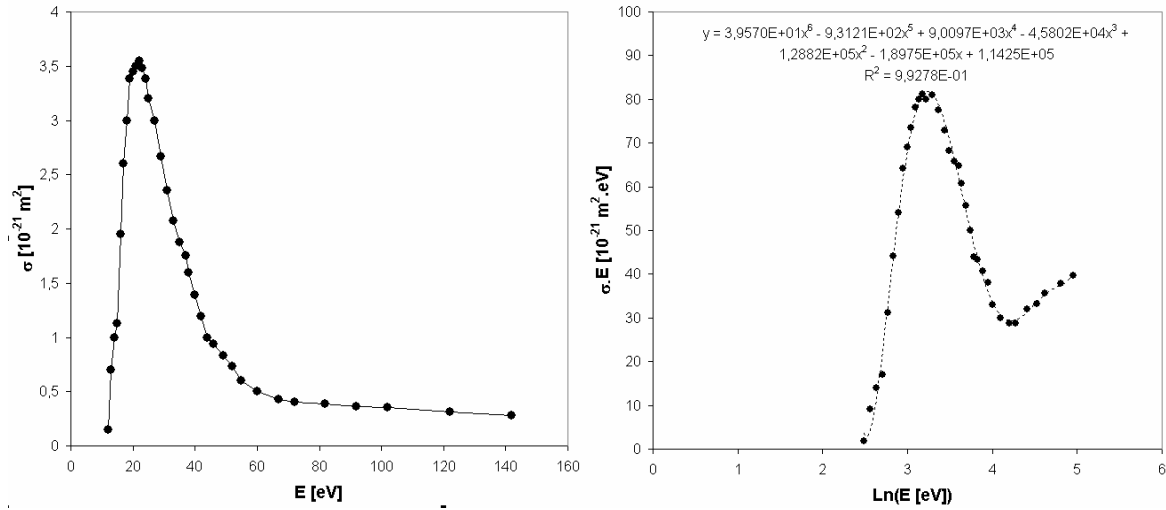
où :  $B = m_e/(2k_B T_e)$ ,  
 $m_e$  est la masse de l'électron,  
 $k_B$ , la constante de Boltzmann,  
 $T_e$ , la température électronique (cf. paragraphe II.1.G.b),  
 $E_c$ , l'énergie cinétique des électrons incidents.

En utilisant les résultats de Mason [23] pour l'argon (cf. figures 51), nous obtenons ainsi le coefficient d'excitation total, dont l'évolution en fonction du champ électrique est portée figure 52.

$$k_{ex}^{TOT} = k_{ex}^{(0)} + k_{ex}^{(2)} \quad (\text{III.1.6})$$

Finalement, en s'appuyant sur les conclusions de Ferreira [24], nous poserons :

$$\begin{cases} k_{ex}^{(0)} = 0,05 \times k_{ex}^{TOT} \\ k_{ex}^{(2)} = 0,95 \times k_{ex}^{TOT} \end{cases} \quad (\text{III.1.7})$$



Figures 51a et 51b : Section efficace totale de production des métastables  ${}^3P_0 + {}^3P_2$  par collisions électroniques pour l'argon (gauche et droite) [23].

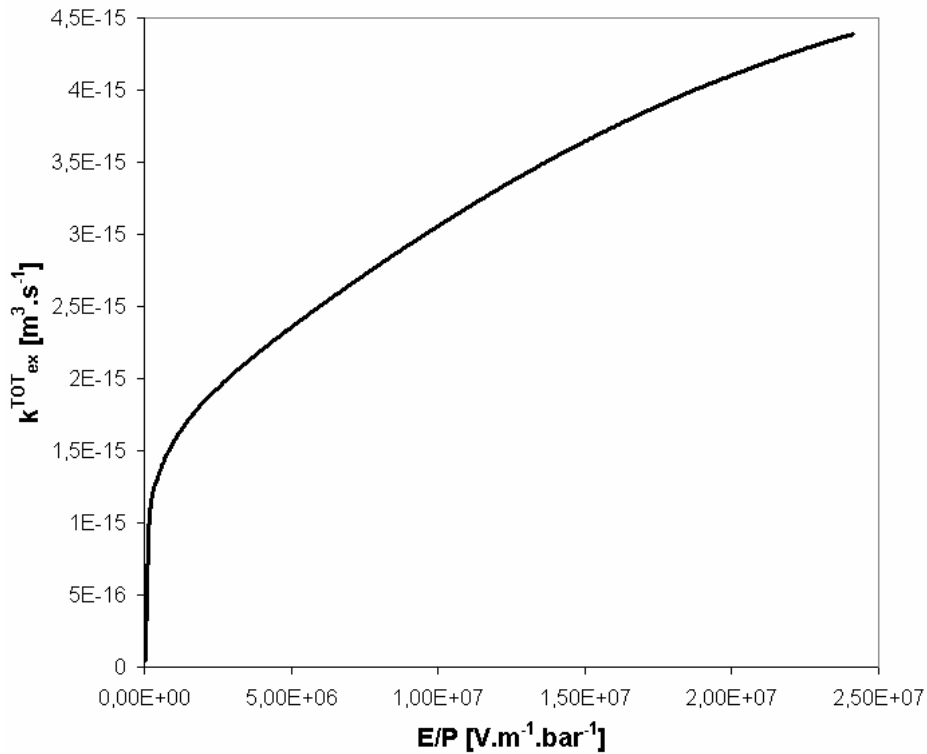


Figure 52 : Coefficient d'excitation électronique total en fonction du champ électrique réduit  $E/P$ .

- recombinaison : les atomes formés après recombinaison d'un ion et d'un électron peuvent transiter par un état excité. Ils participeront donc après cascading à l'augmentation du nombre de métastables dans le gaz. Leurs contributions aux termes sources sont proportionnelles au terme de recombinaison volumique, et donc au produit des densités électroniques et ioniques  $n_e$  et  $n_a$ .

$$\begin{cases} T_S^{(0)}(\text{recombinaison}) = k_r^{(0)} n_e n_a \\ T_S^{(2)}(\text{recombinaison}) = k_r^{(2)} n_e n_a \end{cases} \quad (\text{III.1.8})$$



Il n'existe pas à notre connaissance de données expérimentales donnant les coefficients  $k_r$  (il n'existe d'ailleurs aucune mesure expérimentale du coefficient de recombinaison  $k$  à pression atmosphérique). Ces processus sont donc couramment négligés (à tort ou à raison ?).

- production par piégeage du rayonnement : les photons issus de la décroissance radiative des métastables peuvent à leur tour exciter les atomes neutres et contribuer à l'augmentation des densités  $n_0$  et  $n_2$ . Ces processus de piégeage peuvent jouer à haute pression. Aux pressions atmosphériques, ils sont considérés comme négligeables devant les réactions d'excitation que nous avons évoquées précédemment.
- production par interaction avec le rayonnement gamma : les chambres qui fonctionnent en réacteur sont traversées par des flux importants de rayonnements gammas et X. Ces rayonnements peuvent interagir avec les atomes neutres et conduire à leur ionisation ou à leur excitation. Toutefois, le nombre d'atomes gazeux et les sections efficaces d'interaction sont faibles aux pressions atmosphériques. La section efficace d'excitation des atomes d'argon neutres vaut notamment 3,68 barns pour des X durs d'un keV [25]. Elle tombe à  $5,69 \cdot 10^{-3}$  barns pour des rayons  $\gamma$  d'un MeV. Nous négligerons donc par la suite les processus d'excitation associés au bruit  $\gamma$  ou X.

Au final, les termes  $T_S^{(0)}$  et  $T_S^{(2)}$  s'écrivent donc :

$$\begin{cases} T_S^{(0)} = \varepsilon N + k_{ex}^{(0)} n_e n \\ T_S^{(2)} = \varepsilon N + k_{ex}^{(2)} n_e n \end{cases} \quad (\text{III.1.9})$$

### III.1.B) Processus de destruction des atomes métastables

Les processus qui contribuent à réduire les populations d'atomes métastables sont nombreux et variés. Malheureusement, les données expérimentales qui concernent ces réactions restent rares à basse pression et inexistantes à pression atmosphérique. Nous serons donc contraints d'extrapoler les valeurs que nous avons collectées en supposant qu'elles restent valables dans nos conditions de fonctionnement.

- décroissance radiative : l'une des premières cause de disparition des métastables est bien évidemment leur décroissance radiative vers le fondamental. Les durées de vie radiatives des niveaux  $^3P_2$  et  $^3P_0$  ont été calculées par Small-Waren et al [26] pour plusieurs gaz rares et valent respectivement 55,9 s et 44,9 s pour l'argon. On a ainsi :

$$\begin{cases} T_p^{(0)} \text{ (décroissance)} = \frac{n_0}{\tau_0} \\ T_p^{(2)} \text{ (décroissance)} = \frac{n_2}{\tau_2} \end{cases} \quad (\text{III.1.10})$$

A cette occasion, il nous faut émettre une remarque importante. Un champ électrique, même faible, engendre normalement une diminution de la durée de vie des niveaux métastables. Ce phénomène, que l'on désigne sous le nom de « quenching de métastabilité », peut donc revêtir une importance particulière dans le cadre des

chambres à fission. Toutefois, nous n'avons pu trouver aucune donnée chiffrée sur ce processus et nous serons donc contraint de le négliger.

- ionisation directe : les électrons qui entrent en collision avec les atomes métastables peuvent aisément induire leur ionisation. En effet, les potentiels d'ionisation des états  $^3P_2$  et  $^3P_0$  valent respectivement 4,2 et 4,04 eV, contre 15,75 eV pour des atomes au niveau fondamental. Thon-That et al [27] ont mesuré les sections efficaces totales de ces processus pour différents gaz rares. De ces mesures, on obtient la formule d'ajustement suivante, identique pour les deux espèces de métastables :

$$\sigma_{Ar^*+e^- \rightarrow Ar^++2e^-}(E) = \begin{cases} 0 & \text{si } E_c \leq 4,1 \text{ eV} \\ 1,189 \frac{\ln(E_c)}{E_c} - 1,678 \frac{1}{E_c} & \text{sinon} \end{cases} \quad (\text{III.1.11})$$

La section efficace  $\sigma$  est donnée en  $10^{-14} \text{ cm}^2$ .  $E_c$  est l'énergie des électrons incidents, donnée en eV. On écrira alors :

$$\begin{cases} T_P^{(0)}(\text{ionisation}) = \langle \sigma_{Ar(^3P_0)+e^- \rightarrow Ar^++e^-} v \rangle n_e n_0 = k_{ion} n_e n_0 \\ T_P^{(2)}(\text{ionisation}) = \langle \sigma_{Ar(^3P_2)+e^- \rightarrow Ar^++e^-} v \rangle n_e n_2 = k_{ion} n_e n_2 \end{cases} \quad (\text{III.1.12})$$

où les produits  $\sigma.v$  sont moyennés sur les distributions en vitesse des électrons. Comme précédemment, on approchera ces distributions par des maxwelliennes. En utilisant les expressions (III.1.5), (III.1.11) et les simulations BOLSIG présentées figure 17, le calcul du coefficient  $k_{ion}$  est immédiat. Son évolution avec le champ électrique réduit  $E/P$  est portée figure 53.

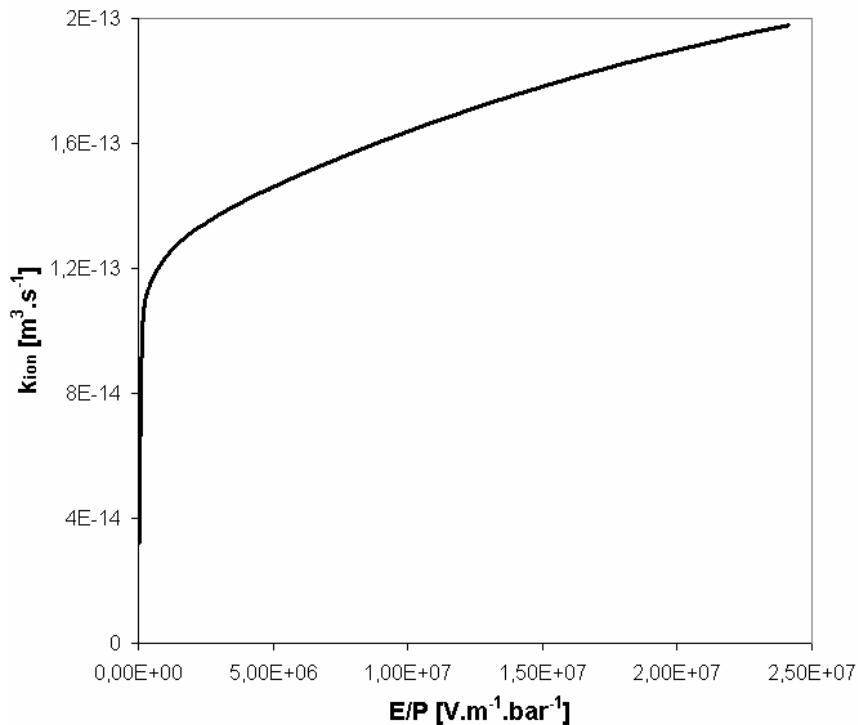


Figure 53 : Coefficient  $k_{ion}$  d'ionisation des métastables en fonction du champ électrique réduit  $E/P$ .

- collisions à deux ou trois corps : ces processus destructifs concernent les collisions simultanées entre un atome métastable et 1 ou 2 atomes de gaz qui se trouvent dans leur état fondamental. Leurs contributions aux termes de pertes s'écrivent :

$$\begin{cases} T_P^{(0)}(\text{collision}) = k_{2c}^{(0)} n_0 n + k_{3c}^{(0)} n_0 n^2 \\ T_P^{(2)}(\text{collision}) = k_{2c}^{(2)} n_2 n + k_{3c}^{(2)} n_2 n^2 \end{cases} \quad (\text{III.1.13})$$

Les valeurs des taux de réactions  $k_{2c}$  et  $k_{3c}$  sont données par Kolts et al [28] :

$$\begin{cases} k_{2c}^{(0)} = k_{2c}^{(2)} = 2,1 \times 10^{-15} \text{ cm}^3 \cdot \text{s}^{-1} \\ k_{3c}^{(0)} = k_{3c}^{(2)} = 1,1 \times 10^{-32} \text{ cm}^6 \cdot \text{s}^{-1} \end{cases} \quad (\text{III.1.14})$$

- quenching par les électrons : au cours d'une collision avec un électron, un atome métastable peut passer dans un état excité. Ce dernier décroîtra par la suite vers le fondamental en quelques fractions de nanosecondes. On écrit alors :

$$\begin{cases} T_P^{(0)}(\text{quenching}) = k_q^{(0)} n_0 n_e \\ T_P^{(2)}(\text{quenching}) = k_q^{(2)} n_2 n_e \end{cases} \quad (\text{III.1.15})$$

Les taux de réaction  $k_q$  sont donnés par Ferreira et al [24] :

$$\begin{cases} k_q^{(0)} = 3,5 \times 10^{-8} \text{ cm}^3 \cdot \text{s}^{-1} \\ k_q^{(2)} = 2 \times 10^{-7} \text{ cm}^3 \cdot \text{s}^{-1} \end{cases} \quad (\text{III.1.16})$$

- quenching par les neutres : les atomes métastables peuvent être détruits au cours de collisions avec des atomes gazeux excités. Toutefois, ces processus restent négligeables devant les collisions à deux corps.
- collision superélastique : dans ce cas de figure, l'atome métastable transmet son énergie d'excitation à un électron et passe directement au fondamental. Ces interactions sont négligeables devant les réactions de quenching électronique.
- ionisation associative : deux métastables qui entrent en collision peuvent donner naissance à un ion. La réaction est notée :  $\text{Ar}^* + \text{Ar}^* \rightarrow \text{Ar}^+ + \text{Ar} + e^-$ . La fréquence de ces collisions est faible et elles sont négligeables devant les processus d'ionisation par collision électronique.
- interaction avec les polluants : les atomes métastables peuvent enfin interagir avec les polluants présents dans le gaz. Les réactions mises en jeu sont les réactions Penning. Nous les présenterons de manière plus détaillée dans la suite du rapport.

Au final, les termes de pertes obéissent au système suivant :

$$\begin{cases} T_P^{(0)} = \frac{n_0}{\tau_0} + k_{ion} n_0 n_e + k_{2c} n_0 n + k_{3c} n_0 n^2 + k_q^{(0)} n_0 n_e \\ T_P^{(2)} = \frac{n_2}{\tau_2} + k_{ion} n_2 n_e + k_{2c} n_2 n + k_{3c} n_2 n^2 + k_q^{(2)} n_2 n_e \end{cases} \quad (\text{III.1.17})$$

### III.1.C) Calcul de la densité des métastables et impact sur le courant

A partir des systèmes (II.1.43) et (III.1.1), on montre que les densités électronique, ionique et métastables obéissent aux équations suivantes :

$$\begin{cases} -\frac{1}{r} \frac{\partial}{\partial r} r n_e v_e = N - k n_e n_a + \alpha n_e v_e + k_{ion} n_e (n_0 + n_2) \quad (\text{E}_1) \\ \frac{1}{r} \frac{\partial}{\partial r} r n_a v_a = N - k n_e n_a + \alpha n_e v_e + k_{ion} n_e (n_0 + n_2) \quad (\text{E}_2) \\ -D \frac{1}{r} \frac{\partial}{\partial r} \left( r \frac{\partial}{\partial r} n_0 \right) = \varepsilon N + k_{ex}^{(0)} n_e n \\ \quad \quad \quad - n_0 / \tau_0 - k_{ion} n_0 n_e - k_{2c} n_0 n - k_{3c} n_0 n^2 - k_q^{(0)} n_0 n_e \quad (\text{E}_3) \\ -D \frac{1}{r} \frac{\partial}{\partial r} \left( r \frac{\partial}{\partial r} n_2 \right) = \varepsilon N + k_{ex}^{(2)} n_e n \\ \quad \quad \quad - n_2 / \tau_2 - k_{ion} n_2 n_e - k_{2c} n_2 n - k_{3c} n_2 n^2 - k_q^{(2)} n_2 n_e \quad (\text{E}_4) \end{cases} \quad (\text{III.1.18})$$

Le coefficient de diffusion d'un atome neutre varie avec la température. Il peut être approché par la formule suivante :

$$D(T) = \beta \left( \frac{T}{273} \right)^\alpha \quad (\text{III.1.19})$$

où la température  $T$  est donnée en Kelvin. Entre 77 et 353 K, les coefficients  $\alpha$  et  $\beta$  valent respectivement 1,92 et 0,156 cm<sup>2</sup>.s<sup>-1</sup> pour de l'argon à une pression de 0,1 MPa [14]. En conséquence, on a :

$$D \frac{1}{r} \frac{\partial}{\partial r} \left( r \frac{\partial}{\partial r} n_0 \right) \approx D \frac{R_2}{R_1} \frac{n_0}{(R_2 - R_1)^2} \approx 90 \times \left( \frac{T}{273} \right)^{1,92} n_0 \quad (\text{III.1.20})$$

En comparaison, le terme de pertes dues aux collisions à deux corps vaut :

$$k_{2c} n_0 n \approx k_{2c} n_0 \left( \frac{P}{k_B T} \right) \approx 5,6 \times 10^4 P_{[bar]} \left( \frac{273}{T} \right) n_0 \quad (\text{III.1.21})$$

$k_B$  est la constante de Boltzmann, la pression  $P$  est donnée en bar. Aux pressions atmosphériques, le terme de diffusion est donc négligeable. Nous avons par conséquent :

$$\begin{cases} 0 = \varepsilon N + k_{ex}^{(0)} n_e n - \frac{n_0}{\tau_0} - k_{ion} n_0 n_e - k_{2c} n_0 n - k_{3c} n_0 n^2 - k_q^{(0)} n_0 n_e \\ 0 = \varepsilon N + k_{ex}^{(2)} n_e n - \frac{n_2}{\tau_2} - k_{ion} n_2 n_e - k_{2c} n_2 n - k_{3c} n_2 n^2 - k_q^{(2)} n_2 n_e \end{cases} \quad (III.1.22)$$

Et le système (III.1.18) se réécrit :

$$\begin{cases} -\frac{1}{r} \frac{\partial}{\partial r} r n_e v_e = N - k n_e n_a + \alpha n_e v_e + k_{ion} n_e (n_0 + n_2) \\ \frac{1}{r} \frac{\partial}{\partial r} r n_a v_a = N - k n_e n_a + \alpha n_e v_e + k_{ion} n_e (n_0 + n_2) \\ n_0 = \frac{\varepsilon N + k_{ex}^{(0)} n_e n}{\frac{1}{\tau_0} + k_{ion} n_e + k_{2c} n + k_{3c} n^2 + k_q^{(0)} n_e} \\ n_2 = \frac{\varepsilon N + k_{ex}^{(2)} n_e n}{\frac{1}{\tau_2} + k_{ion} n_e + k_{2c} n + k_{3c} n^2 + k_q^{(2)} n_e} \end{cases} \quad (III.1.23)$$

On remarquera donc que la prise en compte des états métastables s'accompagne d'une augmentation  $\delta I$  du courant délivré par la chambre qui vaut :

$$\delta I = 2\pi e h \int_{R_1}^{R_2} r k_{ion} n_e (n_0 + n_2) dr \quad (III.1.24)$$

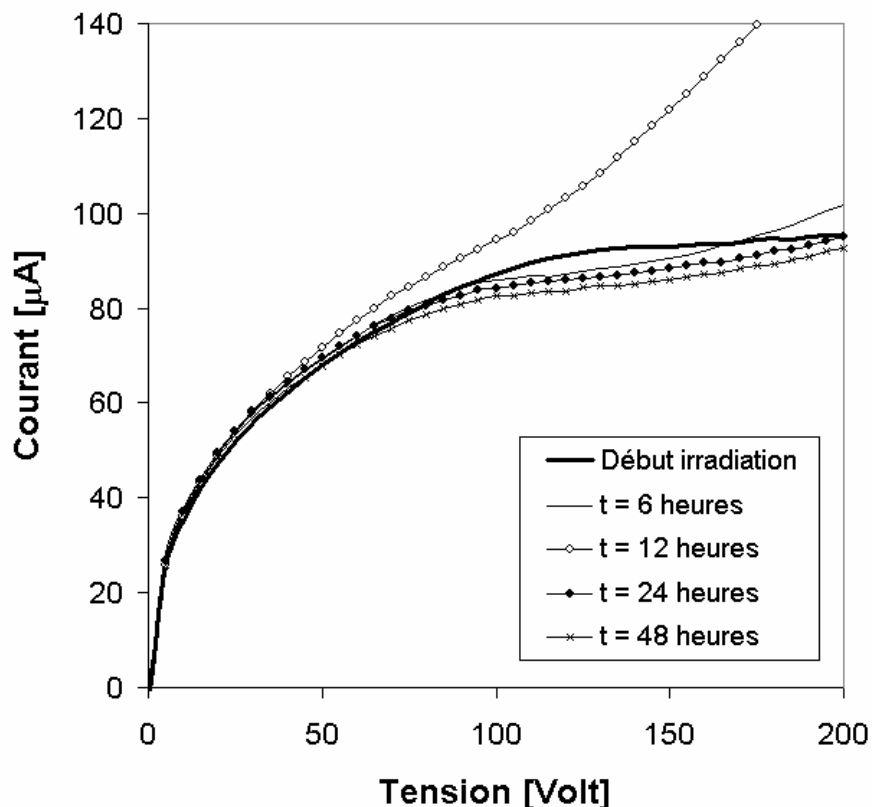
Nous estimerons la contribution  $\delta I$  dans les paragraphes suivants.

## III.2) Perturbations associées à une modification du gaz de remplissage

Comme nous l'évoquons brièvement à la fin de la section II.2, une évolution de la composition du gaz de remplissage s'accompagne d'une modification notable de la forme des courbes de calibration. Nous présenterons dans cette partie les principaux contaminants responsables du vieillissement, leur mécanisme de formation et leur impact sur les courbes de calibration.

### III.2.A) Vieillessement par dégazage

Sous irradiation, les produits de dégazage des pièces constitutives des chambres à fission entraînent une augmentation importante du nombre de charges créées par seconde dans l'argon. Il en résulte un accroissement artificiel du courant délivré par le détecteur et une déformation préjudiciable des courbes de calibration, illustrée figure 54. En effet, ces contaminants, qu'ils soient ou non sous forme moléculaire, possèdent en général des potentiels d'ionisation inférieurs à celui de l'argon (cf. tableau 7).



**Figure 54 :** Modification de la forme des courbes de calibration en présence de produits de dégazage. Ces courbes expérimentales ont été enregistrées par une chambre à fission triple corps (cf. paragraphe IV.2) dans les premières heures d'irradiation au RHF de l'ILL. Le flux thermique vaut  $10^{15}$  n.cm<sup>-2</sup>.s<sup>-1</sup> et la température atteint 230°C environ. Les perturbations durent environ 12 heures, avant de diminuer progressivement.

Sous l'effet des radiations, les produits de dégazage seront progressivement dissociés. Leurs constituants migreront vers les électrodes, avant d'y être piégés chimiquement pour certains. L'atmosphère d'argon se nettoiera donc petit à petit. Toutefois, la cinétique de ce phénomène est lente. Sous un flux de neutrons thermiques de  $10^{15}$  n.cm<sup>-2</sup>.s<sup>-1</sup>, il faut compter environ 12 heures avant de constater une diminution des perturbations associées aux produits de dégazage. Dans des flux plus réduits, plus conventionnels, cet effet peut donc perdurer, faussant insidieusement les mesures effectuées. Par conséquent, lorsque l'on construit une chambre à fission, il faut :

- s'assurer impérativement de la pureté du gaz employé dans l'espace inter électrodes,
- procéder au dégazage préventif et consciencieux de l'ensemble des pièces utilisées dans la fabrication de la partie sensible du détecteur (électrodes, céramiques du passage étanche, dépôt fissile, etc.), afin d'éviter toute libération de polluants en cours d'exploitation. Pour prévenir toute nouvelle contamination, les pièces devront ensuite être conservées sous atmosphère neutre avant d'être assemblées.

Cette procédure, plus contraignante que les méthodes communément employées, a été mise en œuvre au Service de Physique Expérimentale (DEN/DER/SPEX, CEA Cadarache). Elle nous a permis de supprimer en quasi totalité les perturbations associées aux produits de dégazage.

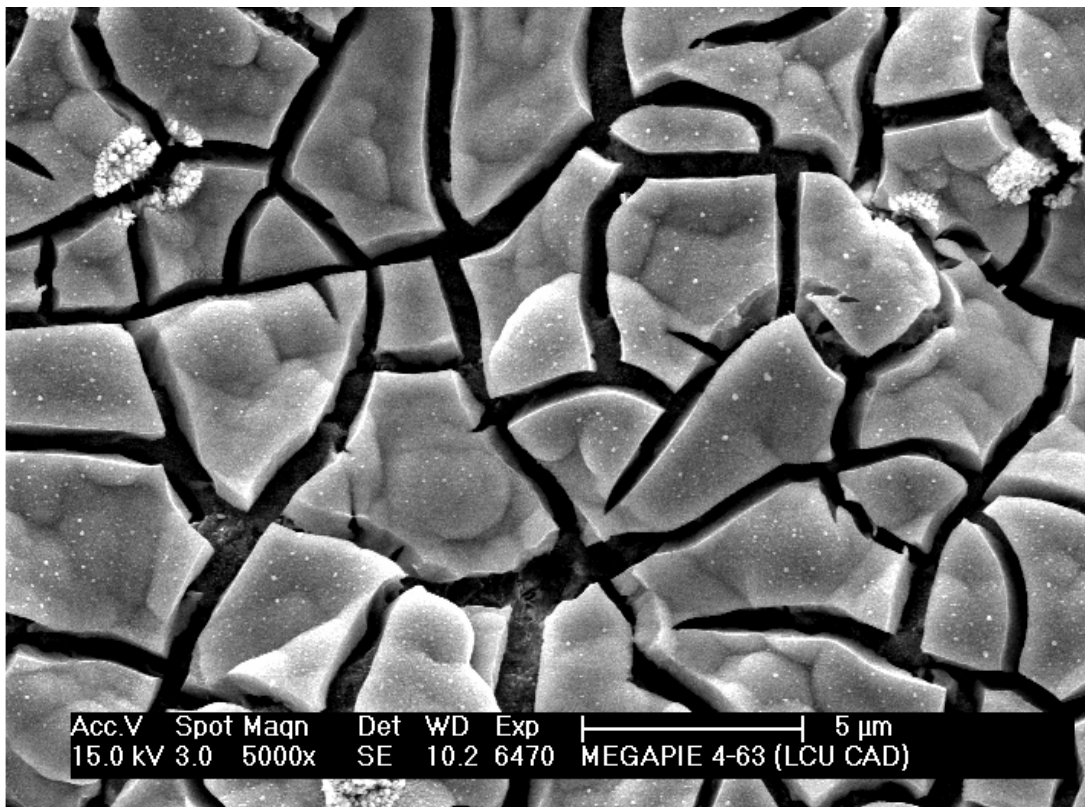
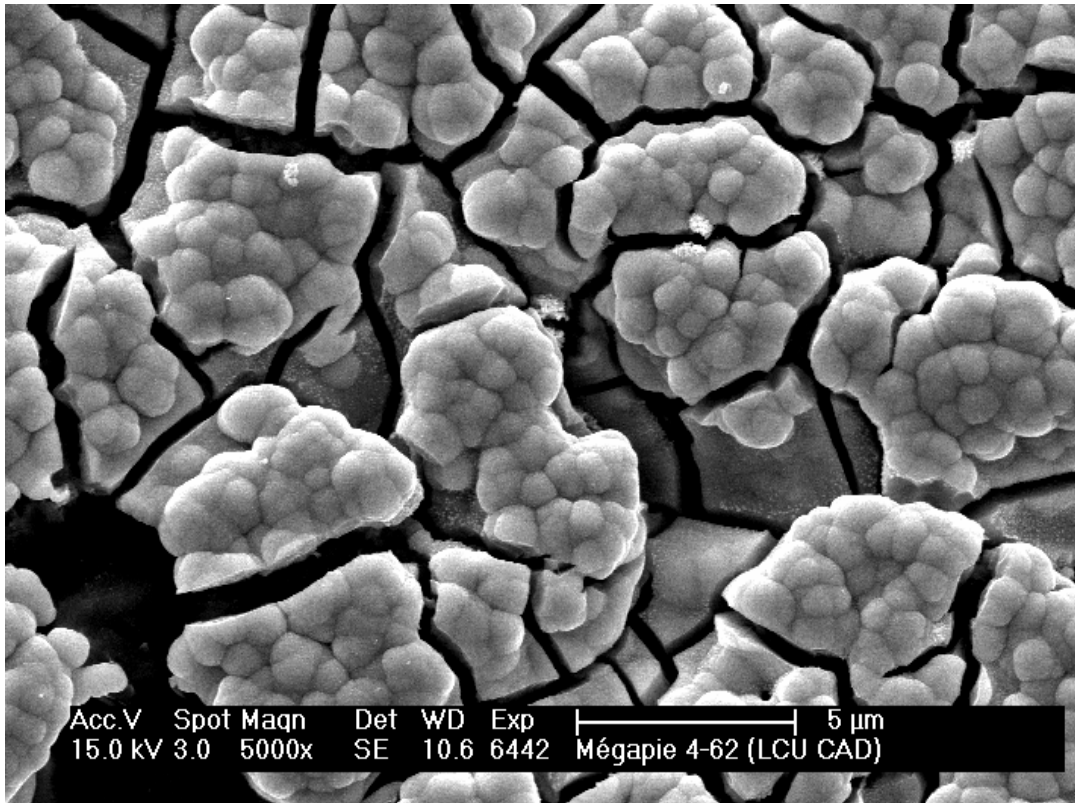
Espèce	Potentiel d'ionisation [eV]
H	13,6
H <sub>2</sub>	15,43
H <sub>2</sub> O	12,62
O	13,62
O <sub>2</sub>	12,07
H <sub>2</sub> O <sub>2</sub>	10,58
HO <sub>2</sub>	11,35
OH	13,02
N	14,53
N <sub>2</sub>	15,58
CH	10,64
CO	14,01
CO <sub>2</sub>	13,78
C <sub>3</sub> O <sub>2</sub>	10,6
Ar	15,75

**Tableau 7 :** Quelques contaminants et leurs potentiels d'ionisation.

### III.2.B) Contaminations en oxygène et en xénon

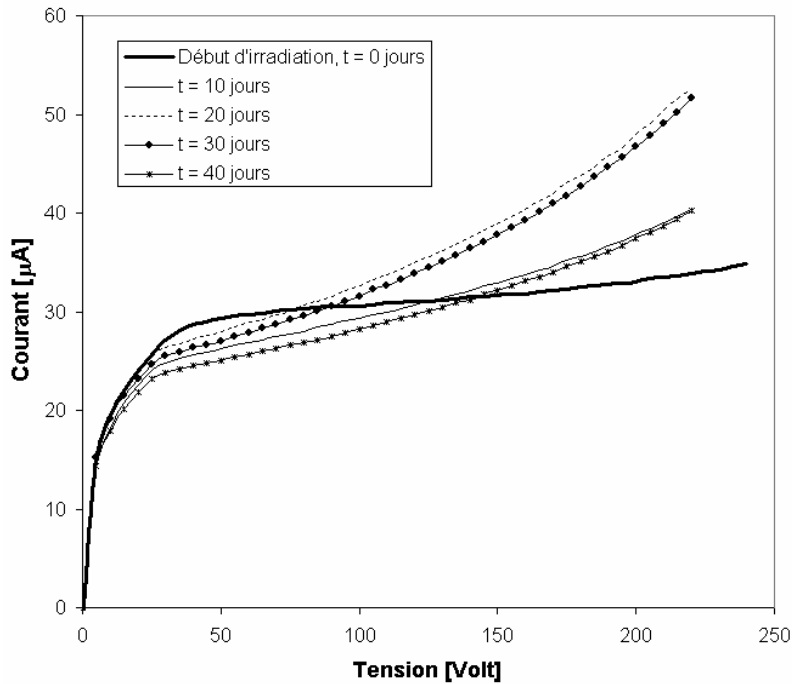
Les dépôts des chambres à fission sont généralement constitués d'oxydes d'uranium. Par conséquent, lorsqu'un noyau d'uranium fissionne sous irradiation, les atomes d'oxygène qui lui étaient associés sont libérés et se retrouvent en partie dans l'espace inter électrodes. Il en résulte une contamination en oxygène du gaz de remplissage. Il existe de nombreuses formules d'oxydes d'uranium : UO<sub>2</sub> (structure cubique de type fluorine), UO<sub>3</sub>, U<sub>3</sub>O<sub>7</sub>, U<sub>3</sub>O<sub>8</sub> (structure lamellaire), U<sub>4</sub>O<sub>9</sub>, etc. Les dépôts formés par électrolyse d'une solution mère possèderaient à température ambiante une forme proche de UO<sub>3</sub> (cf. figures 55). Lorsque la température augmente, cette forme peut évoluer vers U<sub>3</sub>O<sub>8</sub>, l'un des oxydes d'uranium les plus stables. Il convient donc de calciner puis de dégazer les dépôts d'uranium à haute température afin de favoriser la restructuration UO<sub>3</sub> → U<sub>3</sub>O<sub>8</sub>. Un dépôt U<sub>3</sub>O<sub>8</sub> libérera en effet en cours d'irradiation moins d'oxygène qu'un dépôt UO<sub>3</sub>. On notera par ailleurs que les potentiels d'ionisation de l'oxygène atomique ou moléculaire sont inférieurs à celui de l'argon (cf. tableau 7).

En ce qui concerne le xénon, il s'agit d'un des produits de fission les plus abondants de l'uranium. Il s'accumulera donc tout au long de l'irradiation dans l'espace inter électrodes. Le xénon possède un potentiel d'ionisation inférieur à celui de l'argon : 12,13 contre 15,75 eV. Par conséquent, sa présence est susceptible, au même titre que l'oxygène, de perturber le bon fonctionnement des chambres à fission. Nous avons notamment démontré au paragraphe II.2.D qu'une accumulation de xénon induit un décalage progressif du régime d'avalanche vers des tensions de plus en plus faibles (cf. figure 46). La présence de contaminants à bas potentiels d'ionisation facilite en effet les ionisations secondaires. Le vieillissement du gaz par contamination en oxygène ou en xénon se révèle donc particulièrement néfaste, puisqu'il s'accompagnera d'une réduction de la taille du régime de saturation, voire de sa complète disparition.



**Figures 55a et 55b** : Photographies de la surface d'un dépôt d'oxyde d'uranium prises au microscope électronique à balayage [29]. En haut, un dépôt obtenu par électrolyse et non dégazé. En bas, un dépôt dégazé à 600°C. Les structures en choux-fleurs sur le cliché du haut trahissent une mauvaise cristallisation de l'oxyde sous forme  $UO_3$ . Leur disparition sur le cliché du bas serait une conséquence de la restructuration de l'oxyde  $UO_3$  en  $U_3O_8$ .





**Figure 56 :** Modification de la forme des courbes de calibration en présence de contaminants à bas potentiel d'ionisation. Ces courbes expérimentales ont été enregistrées par une chambre à fission triple corps (cf. paragraphe IV.2), section sans dépôt, irradiée en continu à l'ILL dans un flux thermique de  $10^{15}$  n.cm<sup>-2</sup>.s<sup>-1</sup>. Le gaz de remplissage circule librement d'une section à une autre et la contamination provient en fait de la section avec dépôt d'uranium 235.

Les vitesses de formation de l'oxygène et du xénon sont directement proportionnelles au taux de fission :

$$\frac{\partial n}{\partial t} = \beta \tau_f \quad (\text{III.2.1})$$

$n$  représente ici le nombre d'atomes de chacune de ces deux espèces dans le gaz de remplissage. Le coefficient de proportionnalité  $\beta$  vaut environ 0,03 pour le xénon et 3 pour l'oxygène. Dans une chambre CFUT-C3 standard, le gaz de remplissage est de l'argon à une pression de un bar à température ambiante. La densité d'atomes d'argon est donc égale à  $2,4 \cdot 10^{25}$  atomes.m<sup>-3</sup>. Le volume de l'espace inter électrodes vaut 170 mm<sup>3</sup>. En conséquence, le nombre total d'atomes d'argon présent dans la chambre est égal à  $4,0 \cdot 10^{18}$ . Pour un taux de fission de  $5,0 \cdot 10^9$  f.s<sup>-1</sup>, les contaminations en xénon et en oxygène augmenteront donc respectivement de 0,0097 % et de 0,97 % par mois de fonctionnement continu.

Toutefois, il convient de remarquer qu'une part importante des atomes de xénon émis (environ les deux tiers) sont instables et décroissent au cours du temps. De même, l'oxygène peut disparaître en interagissant avec les parois de la chambre à fission pour y former des oxydes.

### III.2.C) Impact des processus de pulvérisation cathodique

La cathode des chambres à fission est soumise à un bombardement intense de la part des ions accélérés dans le champ électrique d'une part, et des produits de fission émis depuis le dépôt d'autre part. Lorsque l'énergie des atomes incidents est suffisamment élevée, le métal cathodique peut être pulvérisé et éjecté dans l'espace inter électrodes. Il en résulte une

contamination préoccupante, car elle entraîne une accélération importante des processus d'ionisation. De plus, les perturbations induites peuvent survenir pour des concentrations en métal pulvérisé très faibles.

Prenons l'exemple d'une chambre à fission CFUT-C3. Ce modèle possède une cathode cylindrique fabriquée en titane. En cours d'irradiation, comme on l'a mentionné précédemment, un nombre important d'atomes d'argon se retrouve dans des états métastables. Un niveau métastable a une durée de vie importante, en partie parce qu'il peine à se désexciter de manière radiative. Il peut cependant profiter d'une collision avec un atome métallique pour lui transférer son énergie d'excitation et revenir ainsi plus aisément au niveau fondamental. Le potentiel d'ionisation du titane vaut 6,82 eV et est inférieur aux énergies d'excitation des métastables (11,55 et 11,72 eV). Par conséquent, les atomes de titane qui entreront en collision avec des métastables auront une probabilité d'être ionisés et de contribuer au courant. La présence de titane pulvérisé au sein d'une atmosphère d'argon transforme en quelque sorte les atomes métastables en catalyseur de réactions d'ionisation. Ces processus d'ionisation par transfert d'énergie d'excitation sont appelés réactions Penning et s'écrivent pour le titane (cf. figure 57) :

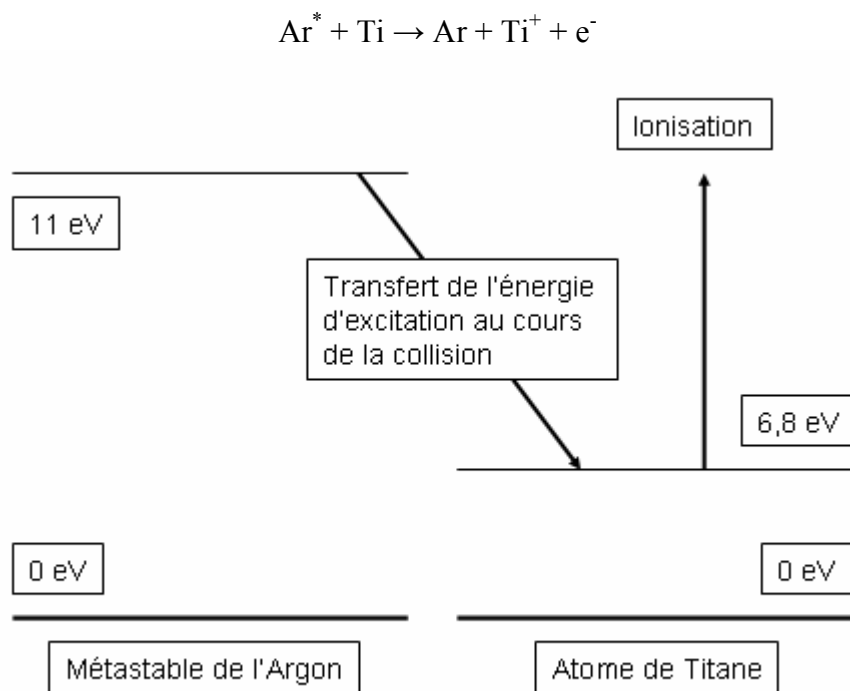


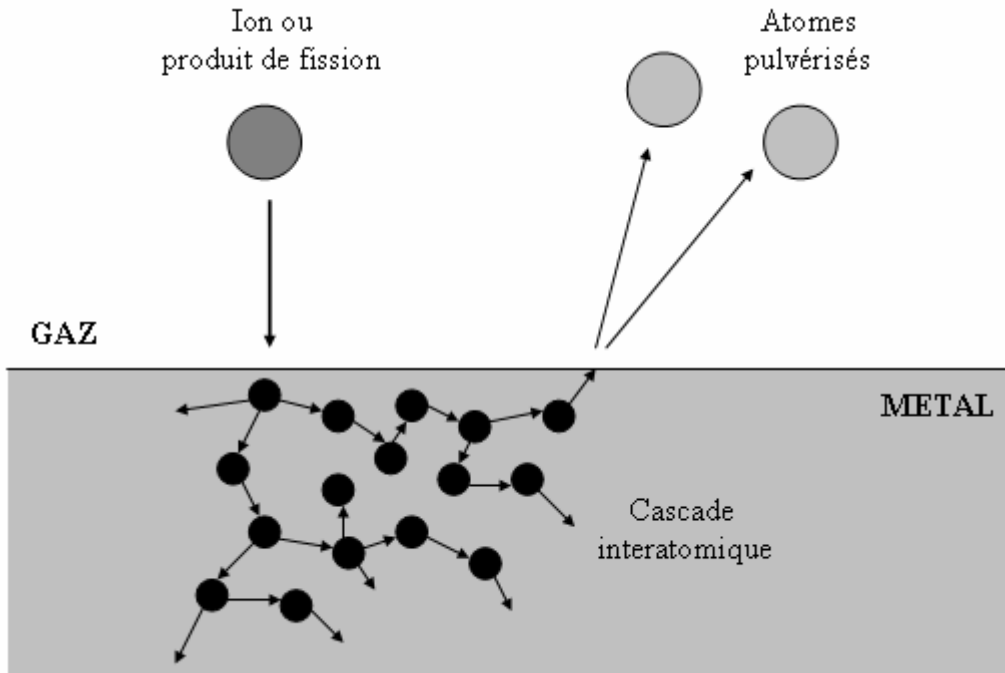
Figure 57: Ionisation Penning d'un atome de titane par un atome métastable d'argon.

Le tableau 8 récapitule quelques valeurs de sections efficaces moyennes d'ionisation Penning à température ambiante pour différents contaminants [14, 30].

Polluants	$\sigma [10^{-16} \text{ cm}^2] \text{ } ^3\text{P}_2$
Kr	1
O <sub>2</sub>	1,2
Hg	30
Zn	53
Cd	65

Tableau 8 : Sections efficaces moyennes d'ionisation Penning pour quelques contaminants.

Le mécanisme qui conduit à l'éjection d'un atome de titane est essentiellement d'origine mécanique. Il est illustré figure 58. L'ion incident communique son énergie cinétique  $E$  aux atomes du réseau métallique. Si  $E$  est supérieure à une valeur limite appelée seuil de pulvérisation, les chocs successifs et les réarrangements qui se produisent à l'intérieur du réseau peuvent conduire à l'éjection d'un ou plusieurs atomes de titane situés près de la surface. Pour le titane, le seuil de pulvérisation  $E_s$  dû aux ions d'argon vaut environ 20 eV. Chapman propose une compilation de valeurs de  $E_s$  pour un grand nombre de solides [31]. Les atomes pulvérisés sont en grande majorité neutres. A haute énergie, des agrégats voire des ions peuvent être éjectés.



**Figure 58** : Pulvérisation du métal cathodique sous le bombardement des produits de fission et des ions accélérés dans le champ électrique.

On appelle « rendement de pulvérisation » le nombre d'atomes éjectés par ion incident. Ce rendement, noté  $Y$ , est fonction de la nature de la cible (métal, état de surface), de la nature de l'ion (gaz rare, numéro atomique), de son angle d'incidence  $\theta$  et enfin de son énergie  $E$ . La direction moyenne d'incidence des ions argon est parallèle aux lignes de champ électrique. Dans une chambre CFUT-C3, elle est par conséquent perpendiculaire à la surface de la cathode. Pour  $\theta \approx 0$ , on peut approcher  $Y$  en utilisant la formule de Sigmund [32], valable pour des énergies  $E$  inférieures au keV :

$$Y(E) = KE \quad (\text{III.2.2})$$

avec :

$$K = \frac{3m_i m_a a}{\pi^2 (m_i + m_a)^2 U_0} \quad (\text{III.2.3})$$

où :  $m_i$  est la masse de l'ion incident,  
 $m_a$ , celle des atomes du réseau.

$U_0$  est l'énergie de liaison en surface. Pour le titane, elle est égale à 6,6 eV. Pour l'aluminium, elle vaut 3,05 eV.

Le coefficient  $a$  est une fonction du rapport  $m_a/m_i$ . Il vaut environ 0,15 pour le couple argon-titane.

En dessous de 100 eV, l'évolution de  $Y$  avec  $E$  n'est plus totalement linéaire et l'équation (III.2.2) surestime de manière conséquente le rendement. Nous ferons tout de même appel à la formule de Sigmund pour obtenir une borne supérieure de  $Y$ . Pour le couple argon-titane, nous avons ainsi :

$$Y \leq 0,15 \times E_{[eV]} \quad (\text{III.2.4})$$

La fraction  $\varepsilon$  d'ions qui arrive à la cathode après avoir parcouru une distance  $d$  sans avoir subi de chocs s'écrit :

$$\varepsilon = e^{-\frac{d}{\lambda}} \quad (\text{III.2.5})$$

où  $\lambda$  est le libre parcours moyen. Une résolution des équations de la dynamique (PFD) permet ensuite d'obtenir  $d$  en fonction de leur énergie  $E$  :

$$d = \frac{R_2 - R_1}{e\Delta V} E \quad (\text{III.2.6})$$

où :  $e$  est la charge électrique élémentaire,  
 $\Delta V$ , la tension aux bornes des électrodes,  
 $R_1$ , le rayon de l'anode,  
 $R_2$ , le rayon de la cathode.

Au paragraphe II.1.G.b, nous avons noté que la température ionique reste proche de la température ambiante. En conséquence, le libre parcours moyen  $\lambda$  obéira à l'expression suivante :

$$\lambda = \frac{1}{\sqrt{2}\pi R^2 n} = \frac{1}{\sqrt{2}\pi R^2} \frac{k_B T}{P} \quad (\text{III.2.7})$$

où :  $P$  est la pression,  
 $T$ , la température ambiante,  
 $n$ , la densité d'atomes du gaz de remplissage. Le gaz étant confiné dans l'espace inter électrodes, cette densité (et donc le rapport  $T/P$ ) reste constante quelle que soit la température ambiante,  
 $k_B$ , le coefficient de Boltzmann,  
 $R$  est le rayon atomique du gaz. Il vaut 18,8 nm pour l'argon.

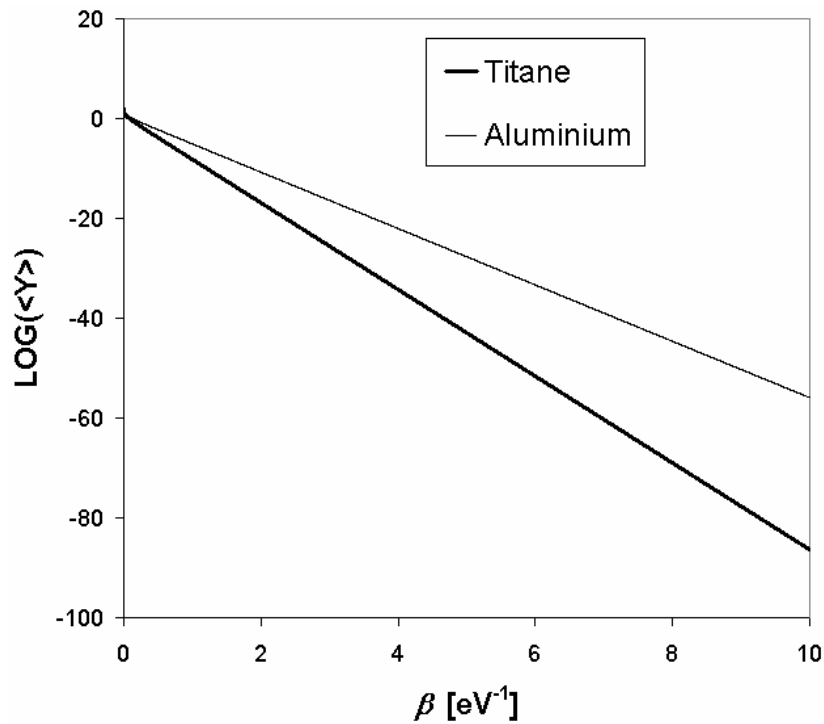
Les équations (III.2.2) à (III.2.6) nous permettent donc d'obtenir le rendement de pulvérisation moyen  $\langle Y \rangle$  :

$$\langle Y \rangle \approx K \frac{\int_{E_s}^{+\infty} \left( E e^{-\frac{R_2 - R_1}{e\lambda\Delta V} E} \right) dE}{\int_0^{+\infty} \left( e^{-\frac{R_2 - R_1}{e\lambda\Delta V} E} \right) dE} \approx K \frac{1 + \beta E_s}{\beta} e^{-\beta E_s} \quad (\text{III.2.8})$$

avec :

$$\beta = \frac{R_2 - R_1}{\Delta V} \frac{\sqrt{2\pi R^2 n}}{e} \quad (\text{III.2.9})$$

Pour rappel,  $E_s$  est le seuil de pulvérisation. L'évolution du rendement de pulvérisation moyen en fonction du rapport  $\beta$  est portée figure 59.



**Figure 59:** Evolution du rendement de pulvérisation moyen  $\langle Y \rangle$  en fonction du coefficient  $\beta$  pour les couples argon-titane et argon-aluminium.

Le nombre  $n_{ions}$  d'ions  $Ar^+$  qui heurtent la cathode par seconde se déduit directement du courant  $I$  délivré par la chambre.

$$n_{ions} = \frac{I}{e} \quad (\text{III.2.10})$$

Pour des valeurs de courant voisines de  $100 \mu A$ ,  $n_{ions}$  atteint par exemple  $6,2 \cdot 10^{14}$  ions.s<sup>-1</sup>. Le nombre  $N_I$  d'atomes pulvérisés par seconde par les ions sera égal à :

$$N_I = \frac{\langle Y \rangle I}{e} \quad (\text{III.2.11})$$

Dans une chambre CFUT-C3, les rayons  $R_1$  et  $R_2$  de l'anode et de la cathode valent respectivement 1,25 et 1,75 mm. Pour  $P = 1$  bar,  $T = 300$  K,  $\Delta V = 200$  V (conditions standard de fonctionnement), le coefficient  $\beta$  vaut  $9,5 \text{ eV}^{-1}$  et nous constatons donc qu'il n'y a pas de pulvérisation du titane dans ce régime (cf. figure 59). Toutefois, une augmentation de la tension  $\Delta V$ , une diminution de la densité  $n$  d'atomes gazeux ou une diminution du gap inter électrodes s'accompagne d'une augmentation importante du rendement  $\langle Y \rangle$ . Pour  $P = 0,1$  bar,  $T = 300$  K,  $\Delta V = 400$  V,  $R_2 - R_1 = 250 \text{ }\mu\text{m}$ , le coefficient  $\beta$  vaut  $0,24 \text{ eV}^{-1}$  et le rendement de pulvérisation moyen grimpe à 0,03, ce qui nous donne environ  $1,9 \cdot 10^{13}$  atomes de titane éjectés par seconde pour un courant de  $100 \text{ }\mu\text{A}$ . La contamination qui en résulte au bout de quelques heures de fonctionnement seulement n'est dès lors plus négligeable. On remarquera par ailleurs que le rendement de pulvérisation varie considérablement d'un métal à un autre. La figure 59 nous montre notamment que la pulvérisation à grand  $\beta$  est bien plus importante dans l'aluminium que dans le titane.

Dans ce paragraphe, nous nous sommes jusqu'ici focalisés sur la pulvérisation cathodique associée aux ions du gaz de remplissage. Cependant, il ne faut pas oublier qu'à ce bombardement ionique s'ajoute celui dû aux produits de fission. Ces derniers sont en effet émis en direction de la cathode avec des énergies de plusieurs dizaines de MeV. Ils heurteront violemment la surface du métal cathodique et s'y implanteront. L'équation (III.2.2) qui régit le rendement  $Y$  n'est valable que pour des énergies inférieures au keV. Au delà, on observe une diminution progressive du rendement avec l'énergie des atomes incidents [32]. Des calculs effectués avec le logiciel SRIM [7] indiquent toutefois qu' $Y$  reste non négligeable pour des produits de fission. Le tableau 9 récapitule quelques valeurs de  $Y$  obtenues à des énergies de 80 MeV :

Métal cathodique	Xénon	Iode
Titane pur	0,3	0,36
Fer pur	0,82	0,7
Acier inox (Fe74Ni18Cr8)	0,84	0,75

**Tableau 9 :** Rendements  $Y$  calculés à l'aide de SRIM pour deux produits de fission de 80 MeV, xénon et iode, et pour différents métaux cathodiques.

Le nombre  $N_{PF}$  d'atomes pulvérisés par seconde par les produits de fission est directement proportionnel au taux de fission  $\tau_f$  et vaut :

$$N_{PF} = \langle Y \rangle \tau_f \quad (\text{III.2.12})$$

Le rendement  $\langle Y \rangle$  est ici moyenné sur la distribution des produits de fission de l'uranium 235. Pour  $\tau_f = 10^9 \text{ f.s}^{-1}$ , on arrive par exemple à  $10^{14}$ - $10^{15}$  atomes de titane pulvérisés par mois. En conséquence, dans une chambre CFUT-C3 soumise à un taux de fission de  $10^9 \text{ f.s}^{-1}$ , la contamination en titane due aux produits de fission progressera de 0,1 à 1 % par mois.

### III.2.D) Emission d'électrons à la cathode

Les atomes qui bombardent la cathode induisent également une émission d'électrons secondaires. Ces électrons participent à leur tour au courant et doivent être comptabilisés dans le calcul de  $I$ . Le flux  $\phi_e$  d'électron réémis est proportionnel au flux  $\phi_i$  d'ions incidents :

$$\phi_s = \gamma \times \phi_i \quad (\text{III.2.13})$$

Le coefficient de proportionnalité  $\gamma$  est appelé coefficient d'émission secondaire, ou deuxième coefficient de Townsend. On peut l'évaluer en utilisant la formule théorique proposée par Oechsner [33] :

$$\gamma = \frac{0,2}{\varepsilon_f} [0,8 \times E_i - 2\phi] \quad (\text{III.2.14})$$

où :  $\phi$  est la fonction de travail du métal,  
 $\varepsilon_f$ , son énergie de Fermi,  
 $E_i$ , le potentiel de première ionisation des ions incidents.

La formule d'Oechsner n'est valable que sur l'intervalle :

$$3\phi \leq E_i \leq 2(\varepsilon_f + \phi) \quad (\text{III.2.15})$$

Pour le couple argon-titane,  $\phi = 3,95$  eV,  $\varepsilon_f = 6,5$  eV,  $E_i = 15,75$  eV et la condition (III.2.15) est remplie. Oechsner obtient ainsi  $\gamma = 0,144$ , en bon accord avec la valeur expérimentale  $\gamma = 0,148$ . Dans l'ensemble, les valeurs théoriques obtenues à l'aide de la formule (III.2.14) sont très proches des valeurs mesurées pour de nombreux métaux [33]. Les valeurs de  $\phi$  sont compilées dans [14].

Lorsque le champ électrique  $E$  à la cathode est important, il convient de diminuer la valeur de  $\phi$  d'une quantité  $\Delta\phi$  donnée par [14] :

$$\Delta\phi = e \left( \frac{eE}{4\pi\varepsilon_0} \right)^{1/2} \quad (\text{III.2.16})$$

où :  $e$  est la charge électrique fondamentale,  
 $\varepsilon_0$ , la permittivité du vide.

Le coefficient d'émission secondaire s'écrit alors :

$$\gamma = \frac{0,2}{\varepsilon_f} \left[ 0,8 \times E_i - 2\phi(E=0) + 2e \sqrt{\frac{eE}{4\pi\varepsilon_0}} \right] \quad (\text{III.2.17})$$

Pour le titane, on obtient ainsi :

$$\gamma \approx \gamma(E=0) + 2,3 \times 10^{-6} \sqrt{E} \quad (\text{III.2.18})$$

où  $E$  est donné en  $\text{V.m}^{-1}$ . Les champs électriques qui règnent à l'intérieur des chambres CFUT-C3 ne dépassent pas  $10^6 - 10^7 \text{ V.m}^{-1}$  dans des conditions standard d'utilisation. Pour le titane, la variation maximale de  $\gamma$  restera donc inférieure à 5 %. On notera enfin que la formation d'oxydes à la surface de la cathode augmente la fonction de travail et entraîne ainsi une diminution de  $\gamma$ .

### III.3) Méthode de résolution numérique

Au cours des sections précédentes, nous avons établi les équations de base qui gouvernent la création et le transport de charges au sein d'une chambre à fission. A cet effet, nous avons pu constater qu'une prise en compte exhaustive des processus physiques mène inévitablement à des expressions complexes (cf. systèmes II.2.11 et III.1.23). Ces équations sont difficiles, voire impossibles, à résoudre analytiquement. Pour un traitement complet, une résolution numérique s'avère indispensable.

Le fonctionnement des chambres obéit :

- aux équations de conservation (III.1.23), qui fixent les densités électroniques, ioniques et métastables  $n_e, n_a, n_0$  et  $n_2$ .
- aux équations (II.1.46), qui relient le champ électrique  $E$  aux densités de charges.

A ces équations, il faut également rajouter trois conditions aux limites :

$$\left\{ \begin{array}{l} n_a(R_1) = 0 \quad (C_1) \\ n_e(R_1) = \frac{I}{2\pi h e R_1 v_e(R_1)} \quad (C_2) \\ n_e(R_2) = \gamma \frac{n_a(R_2) v_a(R_2)}{v_e(R_2)} \quad (C_3) \end{array} \right. \quad (\text{III.3.1})$$

Les conditions (C<sub>2</sub>) et (C<sub>3</sub>) découlent directement des expressions (II.1.35) et (III.2.13). Elles caractérisent respectivement la conservation du courant électrique et les processus d'émission secondaire à la cathode. La condition (C<sub>1</sub>) est donnée au système (II.1.34).

Pour résoudre cet ensemble d'équations, nous nous proposons d'utiliser la méthode numérique des différences finies. Pour ce faire, nous allons discrétiser l'espace inter électrodes en  $M+1$  mailles et nous écrirons donc :

$$\left\{ \begin{array}{l} r[i] = R_1 + \frac{i}{M+1}(R_2 - R_1) \\ G(r) = G[i] \\ \frac{\partial}{\partial r} G(r) = \frac{G_{i+1} - G_i}{p} \end{array} \right. \quad (\text{III.3.2})$$

où  $G$  est une fonction quelconque de la coordonnée radiale  $r$ .

Le pas  $p$  de la discrétisation vaut :

$$p = \frac{R_2 - R_1}{M+1} \quad (\text{III.3.3})$$

Dans ce cadre, les conditions aux limites (C<sub>1</sub>) et (C<sub>2</sub>) deviennent :



$$\begin{cases} n_a[0] = 0 & (c_1) \\ n_e[0] = \frac{I}{2\pi h e R_1 v_e[0]} & (c_2) \end{cases} \quad (\text{III.3.4})$$

et les équations (III.1.23) et (II.1.46) se réécrivent :

$$\frac{1}{r[i]} \frac{r[i+1]n_e[i+1]v_e[i+1] - r[i]n_e[i]v_e[i]}{p} = N[i] - kn_e[i]n_a[i] + \alpha[i]n_e[i]v_e[i] + k_{ion}[i]n_e[i](n_0[i] + n_2[i]) \quad (\text{EQ1})$$

$$\frac{1}{r[i]} \frac{r[i+1]n_a[i+1]v_a[i+1] - r[i]n_a[i]v_a[i]}{p} = N[i] - kn_e[i]n_a[i] + \alpha[i]n_e[i]v_e[i] + k_{ion}[i]n_e[i](n_0[i] + n_2[i]) \quad (\text{EQ2})$$

$$n_0[i] = \frac{\varepsilon N[i] + k_{ex}^{(0)}[i]n_e[i]n}{\frac{1}{\tau_0} + k_{ion}[i]n_e[i] + k_{2c}n + k_{3c}n^2 + k_q^{(0)}n_e[i]} \quad (\text{EQ3})$$

$$n_2[i] = \frac{\varepsilon N[i] + k_{ex}^{(2)}[i]n_e[i]n}{\frac{1}{\tau_2} + k_{ion}[i]n_e[i] + k_{2c}n + k_{3c}n^2 + k_q^{(2)}n_e[i]} \quad (\text{EQ4}) \quad (\text{III.3.5})$$

$$\frac{1}{r[i]} \frac{r[i+1]E[i+1] - r[i]E[i]}{p} = \frac{e}{\varepsilon_0} (n_a[i] - n_e[i]) \quad (\text{EQ5})$$

A partir de ce nouveau système, on remarque que l'on peut calculer directement :

- la densité électronique  $n_e[i+1]$  au noeud  $i+1$ ,
- la densité ionique  $n_a[i+1]$  au noeud  $i+1$ ,
- le champ électrique  $E[i+1]$  au noeud  $i+1$

en fonction de :

- la densité électronique  $n_e[i]$  au noeud  $i$ ,
- la densité ionique  $n_a[i]$  au noeud  $i$ ,
- le champ électrique  $E[i]$  au noeud  $i$ .

En utilisant les conditions aux limites (c<sub>1</sub>) et (c<sub>2</sub>) (cf. III.3.4), on calcule alors par itération :

- $n_e[M+1] = n_e(R_2)$
- $n_a[M+1] = n_a(R_2)$

en fonction de deux inconnues seulement :

- le courant  $I$  délivré par la chambre,
- le champ électrique  $E[0] = E(R_1)$  à l'anode.

Les égalités (II.1.48) et (III.3.1/C3) contraignent alors les inconnues  $I$  et  $E[0]$  et l'on obtient le système suivant :

$$\begin{cases} E[0] = \frac{\Delta V}{R_1 \ln\left(\frac{R_2}{R_1}\right)} - p \frac{e}{R_1 \varepsilon_0 \ln\left(\frac{R_2}{R_1}\right)} \sum_{i=0}^N \left( r[i] \ln\left(\frac{R_2}{r[i]}\right) (n_a[i] - n_e[i]) \right) \\ n_e[M+1] = \gamma \frac{n_a[M+1] v_a[M+1]}{v_e[M+1]} \end{cases} \quad (\text{III.3.6})$$

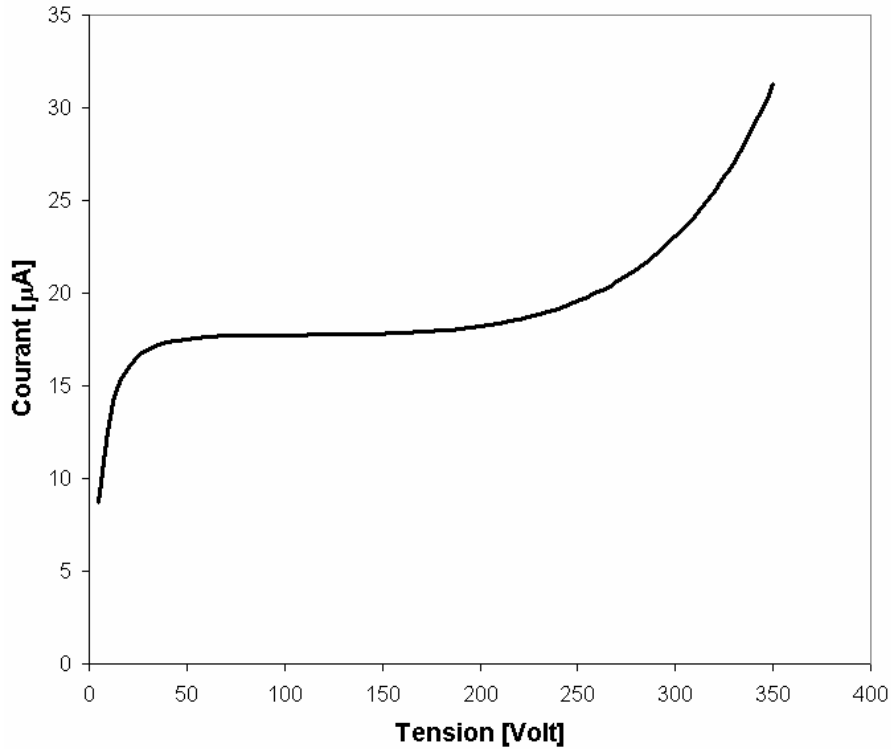
que l'on résoudra numériquement. On obtient ainsi le courant  $I$  délivré par la chambre en fonction de la tension  $\Delta V$  appliquée aux bornes de ses électrodes.

### III.3.A) *Calculs des courbes de calibration sans charges d'espace*

Nous avons établi les procédures numériques nécessaires au calcul des courbes de calibration. Ces procédures incluent les contributions des charges d'espace, des atomes métastables et des processus d'émission secondaire. Toutefois, nous nous limiterons dans un premier temps à l'étude des courbes de calibration en absence de charges d'espace. Dans ce cadre, le champ électrique obéit à l'équation (II.1.50).

Pour  $R_1 = 1,25$  mm,  $R_2 = 1,75$  mm,  $h = 0,8$  cm,  $z_{min} = -1,045$  cm,  $z_{max} = 0,71$  cm,  $k = 5,0 \cdot 10^{-11}$  m<sup>3</sup>.s,  $P = 1$  bar,  $\tau_f = 10^9$  f.s<sup>-1</sup> et  $M = 50$ , nous calculons par exemple la courbe de calibration portée figure 60. Par rapport aux courbes analytiques présentées section II.2.C, on remarque une amélioration nette de la qualité de la zone d'avalanche. En effet, le coefficient d'ionisation  $\alpha$  est ici évalué en utilisant le programme BOLSIG. Il n'obéit plus à la formule simplifiée de Townsend (II.1.37), que nous avons jusqu'ici utilisée par nécessité.

Toutefois, nous ne reprendrons pas dans cette section l'étude de sensibilité des courbes de calibration aux paramètres physiques tels que la pression du gaz de remplissage ou le rayon des électrodes. Les conclusions obtenues par la méthode numérique sont en effet sensiblement identiques à celles qui sont détaillées section II.2.C. Les reprendre une à une ne conduirait qu'à un alourdissement stérile de ce rapport. En lieu et place, nous nous proposons d'aborder des études plus complexes, qui ne peuvent être effectuées par les seules méthodes analytiques. Dans un premier temps, nous calculerons l'impact qu'ont les atomes métastables et les processus d'émission secondaire sur le courant délivré par les chambres à fission. Nous nous focaliserons ensuite sur la localisation des charges électriques et des réactions de recombinaison ou d'avalanche dans l'espace inter électrodes. Enfin, nous étudierons plus en détail la déviation à la loi linéaire  $I_0 \propto \tau_f$  à haut taux de fission, que nous avons prédite au paragraphe II.2.C.c



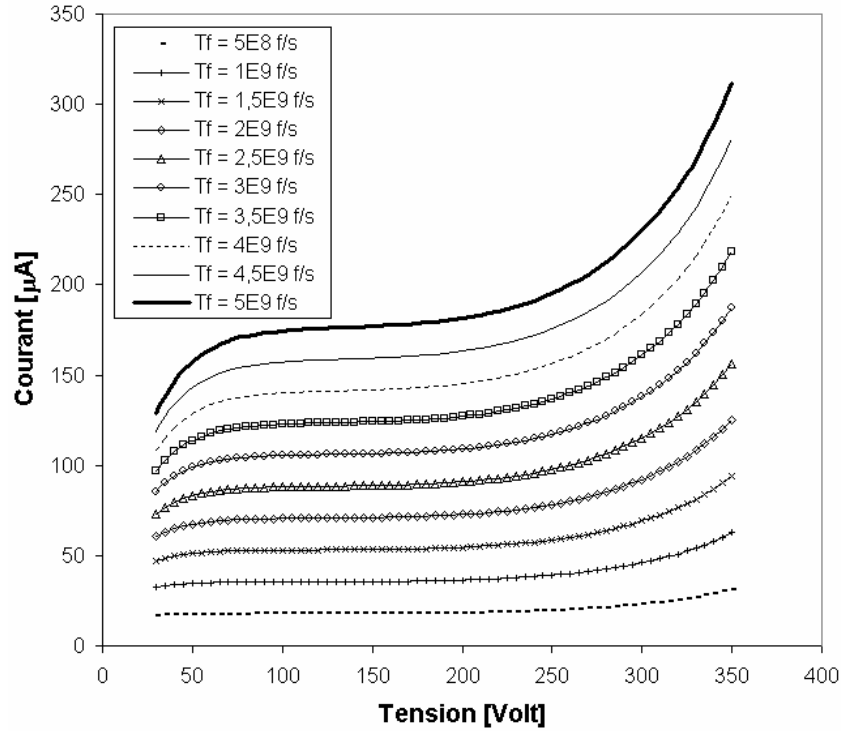
**Figure 60:** Courbe de calibration obtenue avec la procédure numérique. ( $X_0 = 1,8 \cdot 10^8 \times P_{[\text{bar}]}$  paires.m<sup>-1</sup>,  $R_1 = 1,25$  mm,  $R_2 = 1,75$  mm,  $h = 0,8$  cm,  $z_{\text{min}} = -1,045$  cm,  $z_{\text{max}} = 0,71$  cm,  $P = 1$  bar,  $\tau_f = 5 \cdot 10^8$  f.s<sup>-1</sup>,  $M = 50$ . Le coefficient de recombinaison  $k$  obéit à l'équation (II.1.42)).

### III.3.A.a) Impact des atomes métastables et de l'émission secondaire sur le courant délivré par la chambre (calcul sans charges d'espace)

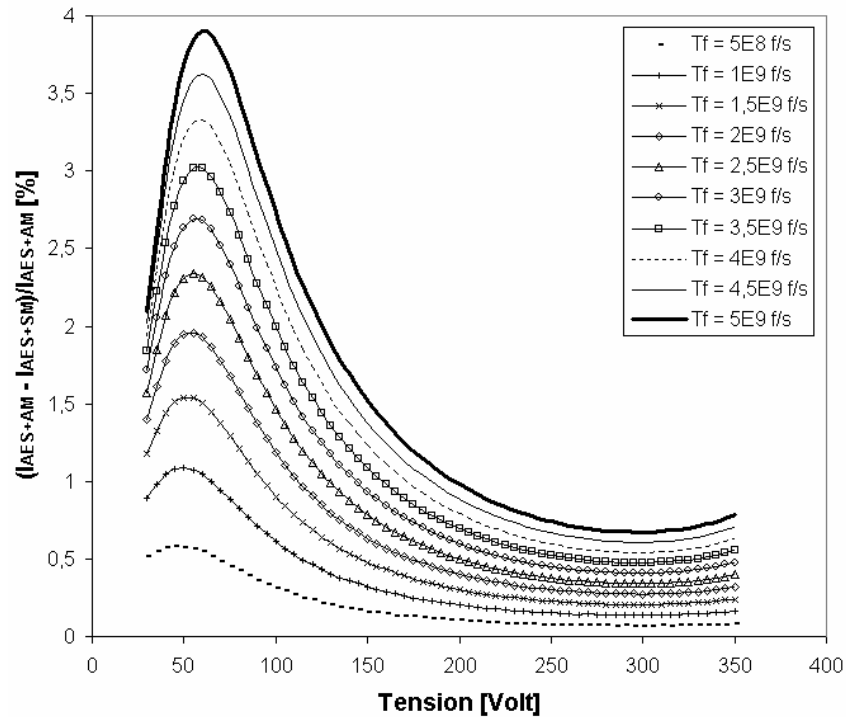
Les courbes de calibration portées figure 61 ont été obtenues par la méthode numérique pour des taux de fission allant de  $5 \cdot 10^8$  f.s<sup>-1</sup> à  $5 \cdot 10^9$  f.s<sup>-1</sup>. Les calculs prennent en compte les contributions des états métastables et de l'émission secondaire. Comme nous le prédisions au paragraphe II.2.C.b, on observe une déformation progressive de la forme des courbes de calibration lorsque le taux de fission augmente.

On constate que les atomes métastables ont une influence modeste mais non négligeable sur la réponse des chambres à fission fonctionnant en mode courant à des pressions atmosphériques (cf. figure 62). Leur contribution augmente avec le taux de fission et atteint 4 % environ pour  $\tau_f = 5 \cdot 10^9$  f.s<sup>-1</sup>. On remarquera également que l'influence des métastables est maximale pour des tensions proches de 50 V dans une chambre CFUT-C3 à 1 bar.

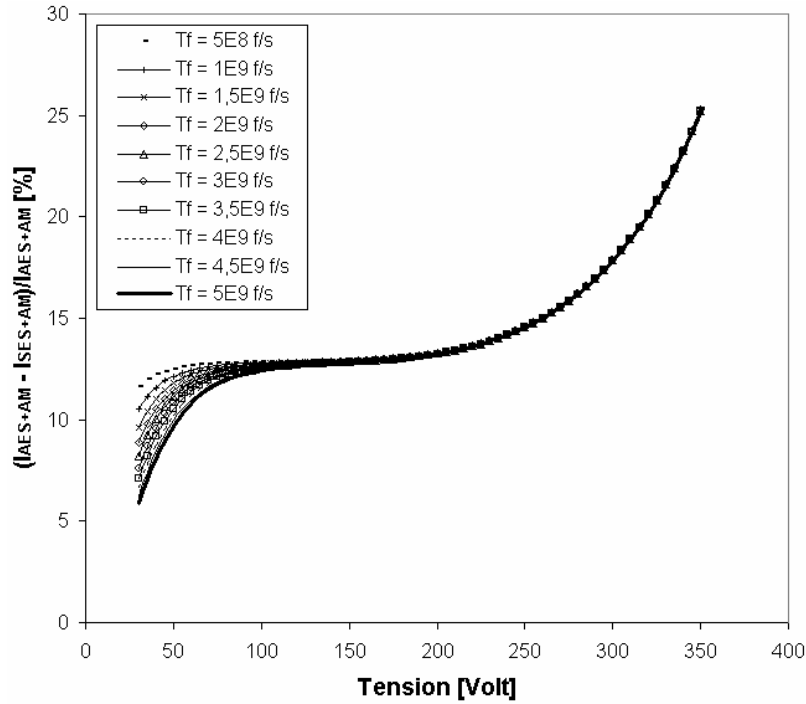
Par ailleurs, on constatera que les processus d'émission secondaire d'électrons à la cathode ont un impact considérable sur le courant délivré. Dans la zone de saturation, leur contribution est indépendante du taux de fission et atteint environ  $\gamma = 14$  % (cf. figure 63). Elle augmente rapidement dans la zone d'avalanche et chute notablement dans le régime de recombinaison. A basse tension en effet, les électrons réémis sont piégés par les ions et recombinaison. A l'inverse, à haute tension, ils se déplacent vite, sont collectés rapidement et peuvent induire des réactions d'ionisation secondaire. Leur prise en compte est donc indispensable.



**Figure 61 :** Evolution de la forme des courbes de calibration calculées à l'aide des procédures numériques pour des taux de fission croissants. ( $X_0 = 1,8 \cdot 10^8 \times P_{[\text{bar}]}$  paires.m<sup>-1</sup>,  $R_1 = 1,25$  mm,  $R_2 = 1,75$  mm,  $h = 0,8$  cm,  $z_{\text{min}} = -1,045$  cm,  $z_{\text{max}} = 0,71$  cm,  $P = 1$  bar,  $M = 50$ . Le coefficient de recombinaison  $k$  obéit à l'équation (II.1.42)).

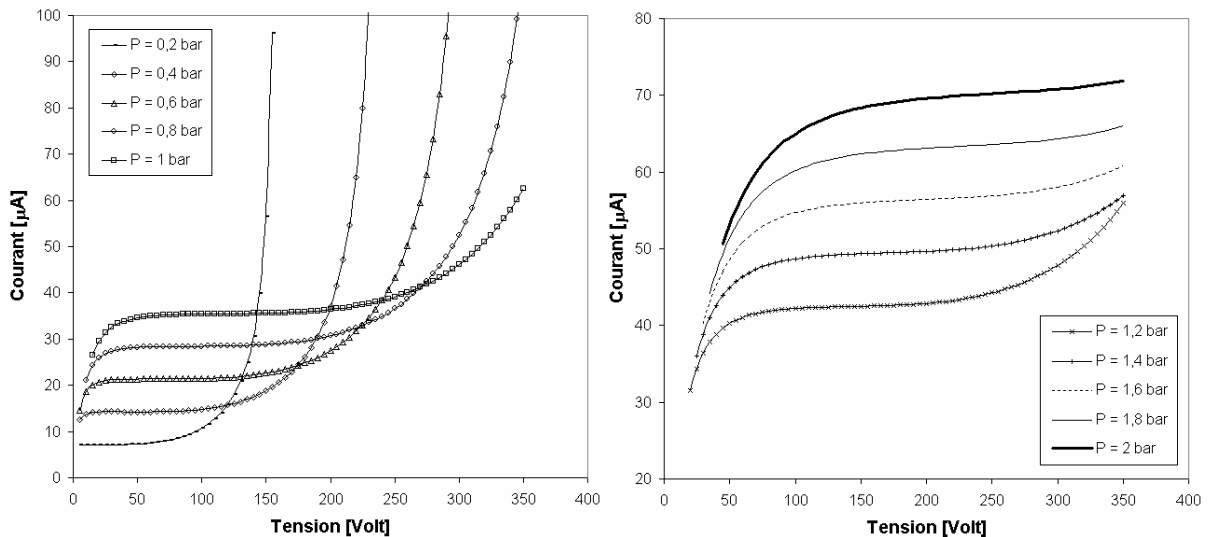


**Figure 62 :** Contribution en pourcentage des atomes métastables au courant délivré par la chambre.  $I_{\text{AES+AM}}$  = courant prenant en compte les métastables et l'émission secondaire.  $I_{\text{AES+SM}}$  = courant prenant en compte l'émission secondaire, mais pas les métastables. ( $X_0 = 1,8 \cdot 10^8 \times P_{[\text{bar}]}$  paires.m<sup>-1</sup>,  $R_1 = 1,25$  mm,  $R_2 = 1,75$  mm,  $h = 0,8$  cm,  $z_{\text{min}} = -1,045$  cm,  $z_{\text{max}} = 0,71$  cm,  $P = 1$  bar,  $M = 50$ . Le coefficient de recombinaison  $k$  obéit à l'équation (II.1.42)).



**Figure 63 :** Contribution en pourcentage des processus d'émission secondaire au courant délivré par la chambre.  $I_{AES+AM}$  = courant prenant en compte l'émission secondaire et les métastables.  $I_{SES+AM}$  = courant prenant en compte les métastables, mais pas l'émission secondaire. ( $X_0 = 1,8 \cdot 10^8 \times P_{[bar]}$  paires. $m^{-1}$ ,  $R_1 = 1,25$  mm,  $R_2 = 1,75$  mm,  $h = 0,8$  cm,  $z_{min} = -1,045$  cm,  $z_{max} = 0,71$  cm,  $P = 1$  bar,  $M = 50$ ). Le coefficient de recombinaison  $k$  obéit à l'équation (II.1.42)).

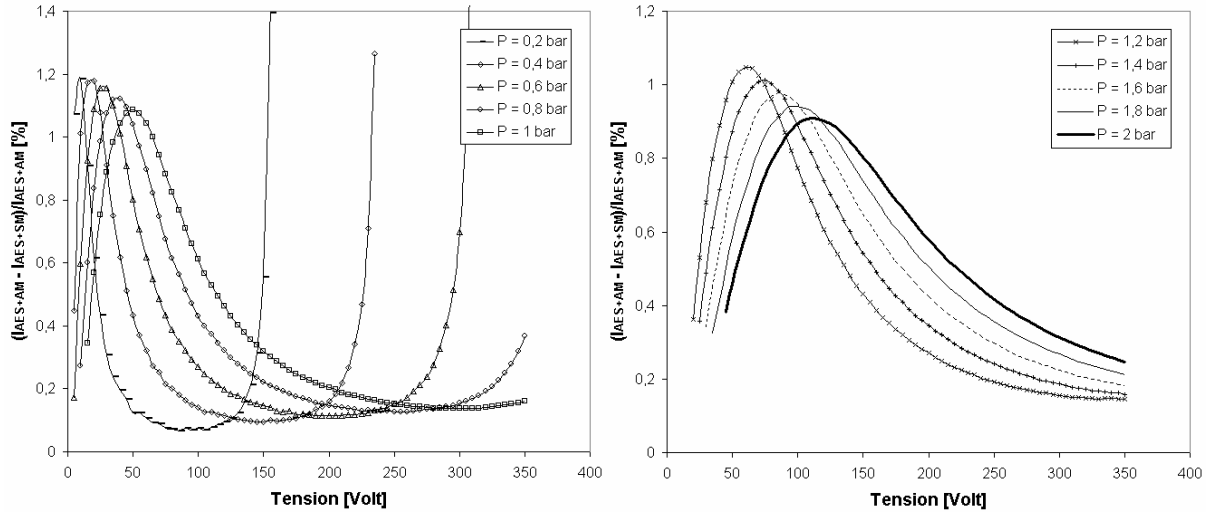
Les figures 64a et 64b présentent un faisceau de courbes de calibration calculées pour des pressions  $P$  du gaz de remplissage croissantes. Conformément aux résultats obtenus au paragraphe II.2.C.c, on observe un décalage vers les basses tensions du régime d'avalanche lorsque  $P$  diminue.



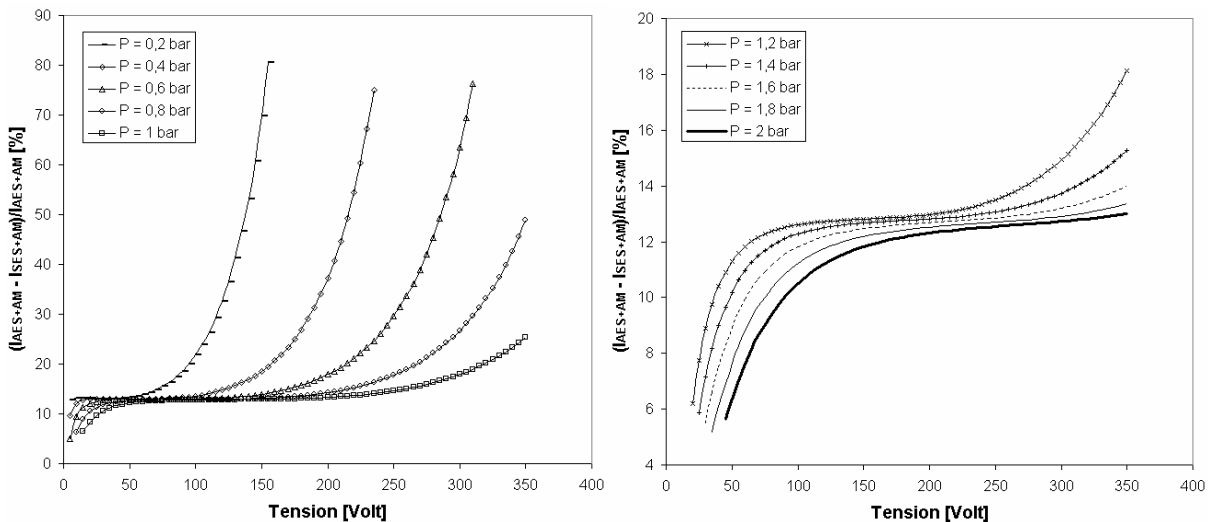
**Figures 64a et 64b :** Evolution de la forme des courbes de calibration calculées à l'aide des procédures numériques pour des pressions croissantes. ( $\tau_f = 10^9$  f.s $^{-1}$ ,  $X_0 = 1,8 \cdot 10^8 \times P_{[bar]}$  paires. $m^{-1}$ ,  $R_1 = 1,25$  mm,  $R_2 = 1,75$  mm,  $h = 0,8$  cm,  $z_{min} = -1,045$  cm,  $z_{max} = 0,71$  cm,  $M = 50$ ). Le coefficient de recombinaison  $k$  obéit à l'équation (II.1.42)).

On remarquera sur les figures 65 que :

- la contribution des atomes métastables au courant total délivré par la chambre augmente lorsque la pression  $P$  diminue. En effet, les pertes associées aux collisions à deux ou trois corps varient respectivement en  $P$  et  $P^2$  et les densités d'états  $^3P_0$  et  $^3P_2$  augmentent en conséquence (cf. équations (III.1.13))
- la contribution maximale se décale vers les tensions basses lorsque  $P$  diminue.
- l'impact qu'ont les niveaux métastables augmente rapidement lorsqu'on entre dans le régime d'avalanche (cf. figure 65a).



**Figures 65a et 65b :** Contribution en pourcentage des métastables au courant délivré par la chambre.  $I_{AES+AM}$  = courant prenant en compte les métastables et l'émission secondaire.  $I_{AES+SM}$  = courant prenant en compte l'émission secondaire, mais pas les métastables. ( $\tau_f = 10^9 \text{ f.s}^{-1}$ ,  $X_0 = 1,8 \cdot 10^8 \times P_{[\text{bar}]}$  paires. $\text{m}^{-1}$ ,  $R_1 = 1,25 \text{ mm}$ ,  $R_2 = 1,75 \text{ mm}$ ,  $h = 0,8 \text{ cm}$ ,  $z_{\min} = -1,045 \text{ cm}$ ,  $z_{\max} = 0,71 \text{ cm}$ ,  $M = 50$ . Le coefficient de recombinaison  $k$  obéit à l'équation (II.1.42)).



**Figures 66a et 66b :** Contribution en pourcentage des processus d'émission secondaire au courant délivré par la chambre.  $I_{AES+AM}$  = courant prenant en compte l'émission secondaire et les métastables.  $I_{SES+AM}$  = courant prenant en compte les métastables, mais pas l'émission secondaire. ( $\tau_f = 10^9 \text{ f.s}^{-1}$ ,  $X_0 = 1,8 \cdot 10^8 \times P_{[\text{bar}]}$  paires. $\text{m}^{-1}$ ,  $R_1 = 1,25 \text{ mm}$ ,  $R_2 = 1,75 \text{ mm}$ ,  $h = 0,8 \text{ cm}$ ,  $z_{\min} = -1,045 \text{ cm}$ ,  $z_{\max} = 0,71 \text{ cm}$ ,  $M = 50$ . Le coefficient de recombinaison  $k$  obéit à l'équation (II.1.42)).

Pour conclure ce paragraphe, nous insisterons à nouveau sur le rôle majeur qu'ont les processus d'émission secondaire sur le fonctionnement des chambres à fission.

- Leur contribution augmente lorsque la pression diminue (cf. figures 66). Une pression élevée s'accompagne en effet d'une augmentation du temps de collection des charges électriques, et donc des pertes associées à la recombinaison volumique.
- Leur contribution augmente rapidement une fois le régime d'avalanche atteint (cf. figure 66a). Les électrons réémis acquièrent en effet suffisamment d'énergie cinétique dans le champ électrique pour ioniser le gaz de remplissage. Les ions ainsi créés migreront vers la cathode et induiront à leur tour la réémission d'électrons. Ces derniers ioniseront eux aussi le gaz de remplissage et ainsi de suite. A haute tension, cet emballement des processus d'émission secondaire est à l'origine d'un bond brutal du courant délivré par la chambre. Dans le langage des expérimentateurs, on dit que la chambre entre en « claquage ». Ces claquages sont particulièrement néfastes et peuvent entraîner la destruction du détecteur. Comme on le constatera figure 66a, leur probabilité d'apparition augmente lorsque la pression du gaz de remplissage diminue. Utiliser une chambre CFUT-C3 avec une pression faible comporte donc un risque qui va croissant avec la tension appliquée aux bornes des électrodes.
- Les processus d'émission secondaire augmentent notablement le courant  $I_{sat}$  délivré à la saturation. Cette augmentation vaut précisément  $\gamma = 14,8 \%$  (cf. paragraphe III.2.D) et ne dépend pas de la pression ou du taux de fission. En s'appuyant sur l'équation (II.2.6), la formule complète du courant  $I_{sat}$  devient donc :

$$I_{sat} = (1 + \gamma) \frac{X_0 \tau_f e}{2\pi} G \quad (\text{III.3.7})$$

où les coefficients  $X_0$  et  $G$  sont calculés aux paragraphes II.1.B et II.2.A.b

### III.3.A.b) Localisation des charges électriques dans l'espace inter électrodes (calcul sans charges d'espace)

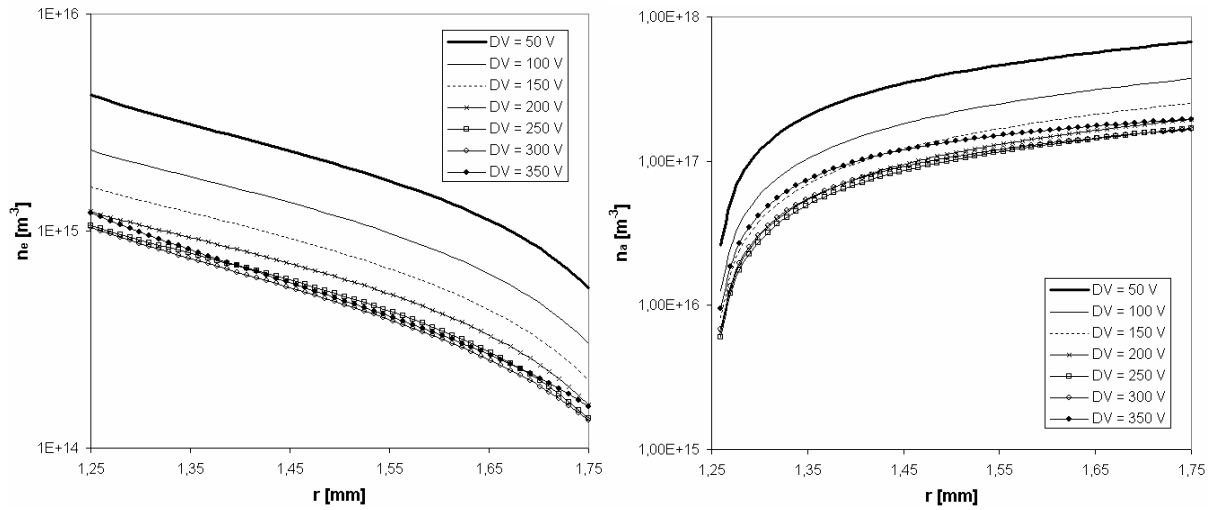
Dans ce paragraphe, nous calculerons les densités des électrons, des ions  $\text{Ar}^+$  et des atomes métastables présents dans le gaz de remplissage pour plusieurs tensions  $\Delta V$  allant du régime de recombinaison au régime d'avalanche. Nous nous intéresserons également à la localisation précise des processus physiques (recombinaison, ionisation, excitation, etc.) qui se produisent dans l'espace inter électrodes.

Les figures 67 présentent l'évolution des densités électroniques  $n_e$  et ioniques  $n_a$  en fonction de la coordonnée radiale  $r$ . Comme prévu, les électrons et les ions se concentrent respectivement à l'anode et à la cathode. Leurs vitesses de dérive  $v_e$  et  $v_a$  se réduisent quand la tension appliquée aux bornes des électrodes diminue (cf. figures 68). En conséquence, les charges s'accumulent dans l'espace inter électrodes et leurs densités augmentent. On remarquera également que les quantités d'ions présentes dans le gaz sont très supérieures à celles des électrons. En effet, les électrons sont bien plus légers et sont rapidement collectés. Leurs vitesses peuvent ainsi atteindre  $25 \text{ km.s}^{-1}$  à  $\Delta V = 350 \text{ V}$ .

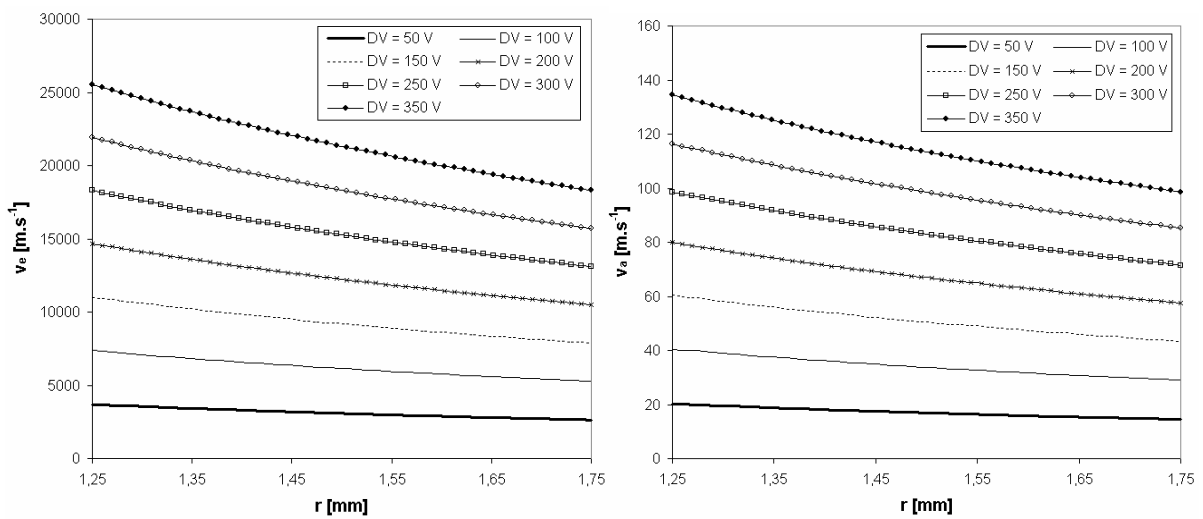
On constatera sur les figures 69 que les densités  $n_0$  et  $n_2$  d'atomes métastables  $^3\text{P}_0$  et  $^3\text{P}_2$  sont maximales à l'anode. Ce constat s'explique directement en se remémorant les équations (III.1.9). En effet, les termes source des métastables sont proportionnels aux densités  $N$  de

paires créées par les produits de fission et  $n_e$  d'électrons, des densités qui sont chacune maximale pour  $r = R_I$  (cf. figures 4 et 67a).

Les figures 70 nous montrent que les processus de recombinaison entre les ions  $\text{Ar}^+$  et les électrons se produisent essentiellement à mi chemin entre l'anode et la cathode. Le terme de recombinaison volumique est en effet proportionnel au produit des densités électronique  $n_e$  et ionique  $n_a$ , qui sont respectivement faibles à la cathode et nulle à l'anode (cf. figures 67). On remarquera par ailleurs figure 70b que les processus de recombinaison deviennent négligeables ( $< 5\%$ ) quand la tension  $\Delta V$  appliquée aux bornes des électrodes dépasse 100 V environ à  $\tau_f = 5 \cdot 10^9 \text{ f.s}^{-1}$ . Nous verrons dans la suite du rapport que ce chiffre est notablement modifié lorsque l'on prend en compte l'effet des charges d'espace dans le calcul.

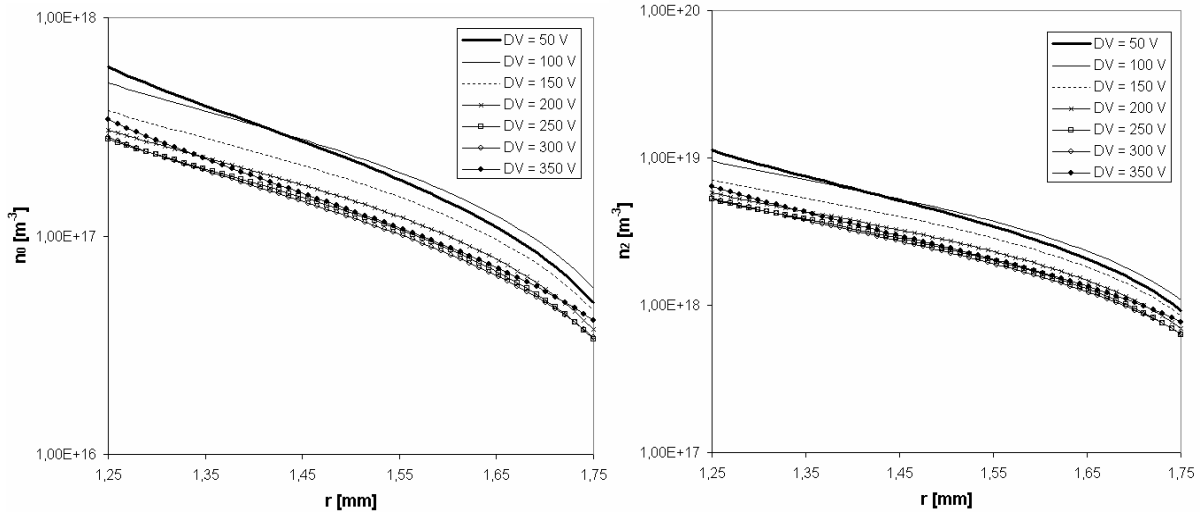


**Figures 67a et 67b :** Densités électronique  $n_e$  (gauche) et ionique  $n_a$  (droite) en fonction de la coordonnée radiale  $r$ , pour plusieurs tensions  $\Delta V$ . ( $\tau_f = 5 \cdot 10^9 \text{ f.s}^{-1}$ ,  $X_0 = 1,8 \cdot 10^8 \times P_{[\text{bar}]}$  paires. $\text{m}^{-1}$ ,  $R_I = 1,25 \text{ mm}$ ,  $R_2 = 1,75 \text{ mm}$ ,  $h = 0,8 \text{ cm}$ ,  $z_{\min} = -1,045 \text{ cm}$ ,  $z_{\max} = 0,71 \text{ cm}$ ,  $P = 1 \text{ bar}$ ,  $M = 50$ . Le coefficient de recombinaison  $k$  obéit à l'équation (II.1.42)).

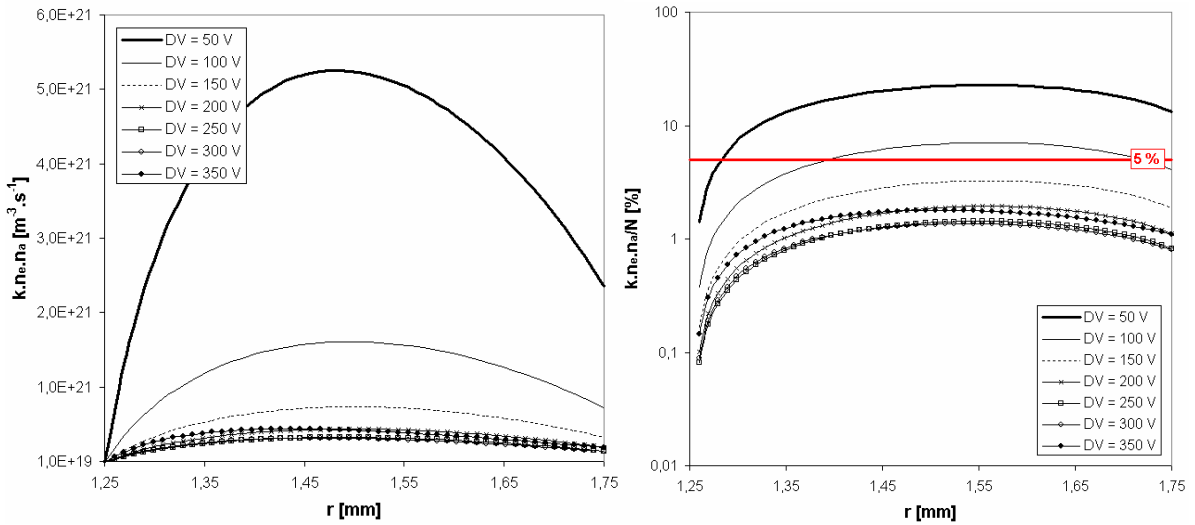


**Figures 68a et 68b :** Vitesses de dérive des électrons (gauche) et des ions (droite) en fonction de la coordonnée radiale  $r$ , pour plusieurs tensions  $\Delta V$ . ( $\tau_f = 5 \cdot 10^9 \text{ f.s}^{-1}$ ,  $X_0 = 1,8 \cdot 10^8 \times P_{[\text{bar}]}$  paires. $\text{m}^{-1}$ ,  $R_I = 1,25 \text{ mm}$ ,  $R_2 = 1,75 \text{ mm}$ ,  $h = 0,8 \text{ cm}$ ,  $z_{\min} = -1,045 \text{ cm}$ ,  $z_{\max} = 0,71 \text{ cm}$ ,  $P = 1 \text{ bar}$ ,  $M = 50$ . Le coefficient de recombinaison  $k$  obéit à l'équation (II.1.42)).



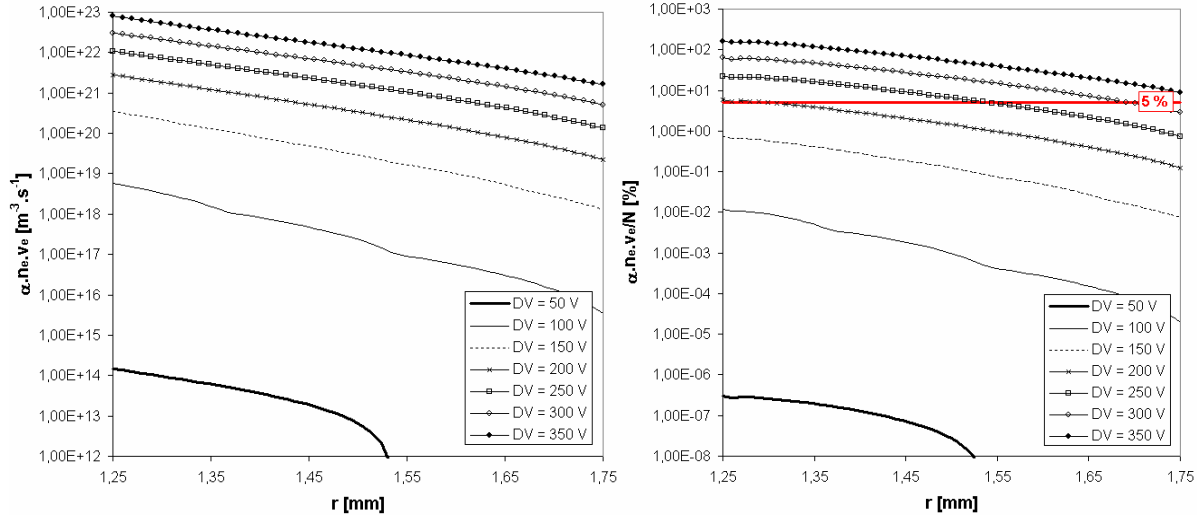


**Figures 69a et 69b :** Densités d'atomes métastables  $^3P_0$  (gauche) et  $^3P_2$  (droite) en fonction de la coordonnée radiale  $r$ , pour plusieurs tensions  $\Delta V$ . ( $\tau_f = 5 \cdot 10^9$  f.s<sup>-1</sup>,  $X_0 = 1,8 \cdot 10^8 \times P_{[\text{bar}]}$  paires.m<sup>-1</sup>,  $R_1 = 1,25$  mm,  $R_2 = 1,75$  mm,  $h = 0,8$  cm,  $z_{\min} = -1,045$  cm,  $z_{\max} = 0,71$  cm,  $P = 1$  bar,  $M = 50$ . Le coefficient de recombinaison  $k$  obéit à l'équation (II.1.42)).



**Figures 70a et 70b :** Terme de recombinaison volumique  $k.n_e.n_a$  (gauche) et rapport  $k.n_e.n_a/N$  (droite) en fonction de la coordonnée radiale  $r$ , pour plusieurs tensions  $\Delta V$ . ( $\tau_f = 5 \cdot 10^9$  f.s<sup>-1</sup>,  $X_0 = 1,8 \cdot 10^8 \times P_{[\text{bar}]}$  paires.m<sup>-1</sup>,  $R_1 = 1,25$  mm,  $R_2 = 1,75$  mm,  $h = 0,8$  cm,  $z_{\min} = -1,045$  cm,  $z_{\max} = 0,71$  cm,  $P = 1$  bar,  $M = 50$ . Le coefficient de recombinaison  $k$  obéit à l'équation (II.1.42)).

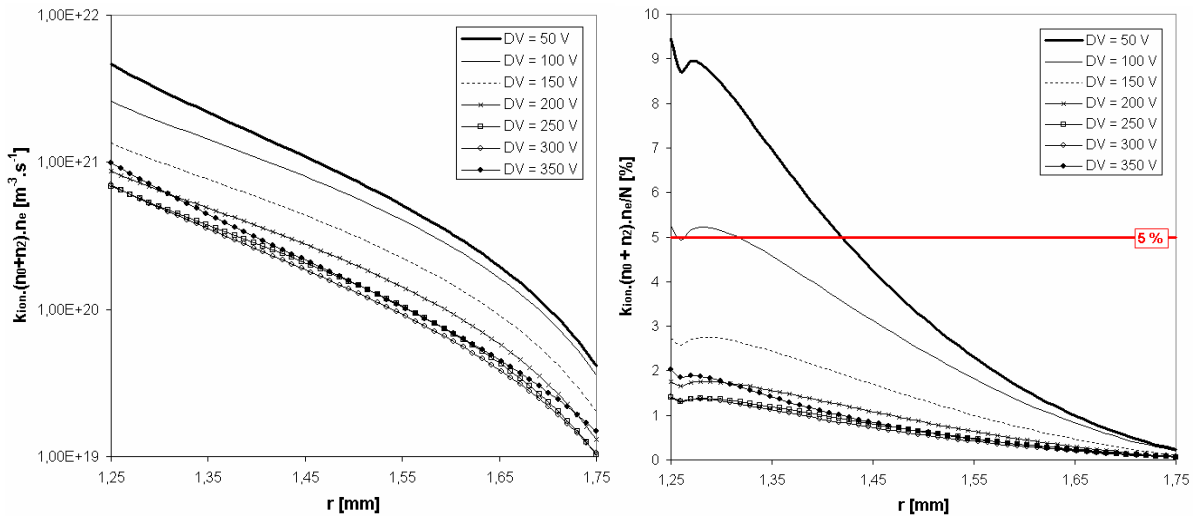
Les réactions d'ionisation secondaire sont quantifiées par le terme source  $\alpha.n_e.v_e$  (cf. paragraphe II.1.D.a). Elles ne sont jamais complètement nulles, mais se produisent plus aisément lorsque le champ électrique  $E$  se renforce, c'est-à-dire à faible  $r$  ou lorsque la tension  $\Delta V$  aux bornes des électrodes augmente (cf. figures 71). En absence de charges d'espace,  $E$  varie en effet en  $\Delta V/r$  (cf. équation II.1.50). L'avalanche se déclenche donc à proximité de l'anode lorsque  $\alpha.n_e.v_e$  n'est plus négligeable ( $> 5\%$ ) devant le terme source  $N$  dû aux produits de fission. Les résultats portés figure 71b indiquent que cette condition est atteinte à partir de 200-250 V pour de l'argon à un bar, en accord avec les calculs analytiques effectués au paragraphe II.2.D.



**Figures 71a et 71b :** Terme d’avalanche  $\alpha n_e v_e$  (gauche) et rapport  $\alpha n_e v_e / N$  (droite) en fonction de la coordonnée radiale  $r$ , pour plusieurs tensions  $\Delta V$ . ( $\tau_f = 5 \cdot 10^9 \text{ f.s}^{-1}$ ,  $X_0 = 1,8 \cdot 10^8 \times P_{[\text{bar}]}$  paires. $\text{m}^{-1}$ ,  $R_1 = 1,25 \text{ mm}$ ,  $R_2 = 1,75 \text{ mm}$ ,  $h = 0,8 \text{ cm}$ ,  $z_{\text{min}} = -1,045 \text{ cm}$ ,  $z_{\text{max}} = 0,71 \text{ cm}$ ,  $P = 1 \text{ bar}$ ,  $M = 50$ . Le coefficient de recombinaison  $k$  obéit à l’équation (II.1.42)).

Dans une chambre CFUT-C3 à un bar de pression, le terme  $k_{\text{ion}} \cdot (n_0 + n_2) \cdot n_e$  de destruction des atomes métastables par ionisation est maximal pour des tensions proches de 50 V (cf. figure 72a). Cet optimum résulte d’un compromis entre :

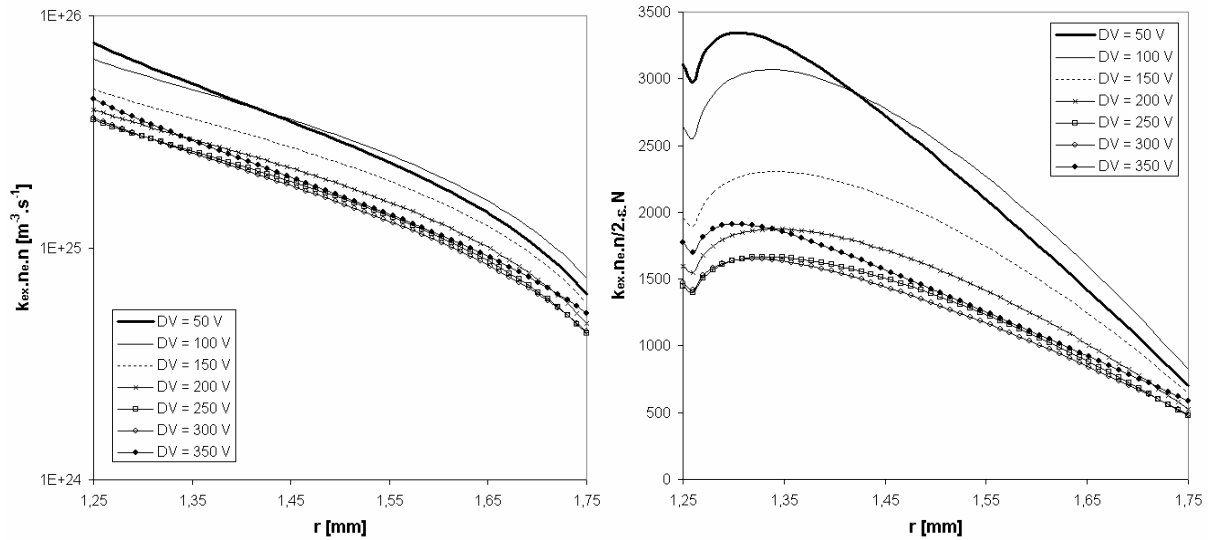
- l’augmentation du coefficient  $k_{\text{ion}}$  avec la tension  $\Delta V$  (cf. figure 53),
- la diminution des densités  $n_e$ ,  $n_0$  et  $n_2$  avec  $\Delta V$  (cf. figures 67 et 69).



**Figures 72a et 72b :** Terme de pertes  $k_{\text{ion}} \cdot (n_0 + n_2) \cdot n_e$  dû à l’ionisation des métastables par collision électronique (gauche) et rapport  $k_{\text{ion}} \cdot (n_0 + n_2) \cdot n_e / N$  (droite) en fonction de la coordonnée radiale  $r$ , pour plusieurs tensions  $\Delta V$ . ( $\tau_f = 5 \cdot 10^9 \text{ f.s}^{-1}$ ,  $X_0 = 1,8 \cdot 10^8 \times P_{[\text{bar}]}$  paires. $\text{m}^{-1}$ ,  $R_1 = 1,25 \text{ mm}$ ,  $R_2 = 1,75 \text{ mm}$ ,  $h = 0,8 \text{ cm}$ ,  $z_{\text{min}} = -1,045 \text{ cm}$ ,  $z_{\text{max}} = 0,71 \text{ cm}$ ,  $P = 1 \text{ bar}$ ,  $M = 50$ . Le coefficient de recombinaison  $k$  obéit à l’équation (II.1.42)).

En s'appuyant sur l'équation (III.1.24), on s'attend ainsi à ce que la contribution des métastables au courant total délivré par la chambre soit maximale à 50 V. Les résultats présentés figures 62 et 72b confirment cette conclusion.

Les électrons se concentrent essentiellement à proximité de l'anode (cf. figure 67a). Les processus de création d'atomes métastables par excitation électronique, gouvernés par le terme  $k_{ex}.n_e.n = (k^{(0)}_{ex} + k^{(2)}_{ex}).n_e.n$  (cf. paragraphe III.1.A), sont donc naturellement optimaux pour  $r \approx R_1$  (cf. figure 73a). Nous constaterons par ailleurs sur la figure 73b que les quantités  $(\varepsilon_0 + \varepsilon_2).N = 2.\varepsilon.N$  d'atomes métastables créées par les produits de fission au cours de leur traversée du gaz sont négligeables devant les processus d'excitation électronique dans une chambre CFUT-C3 à pression atmosphérique.



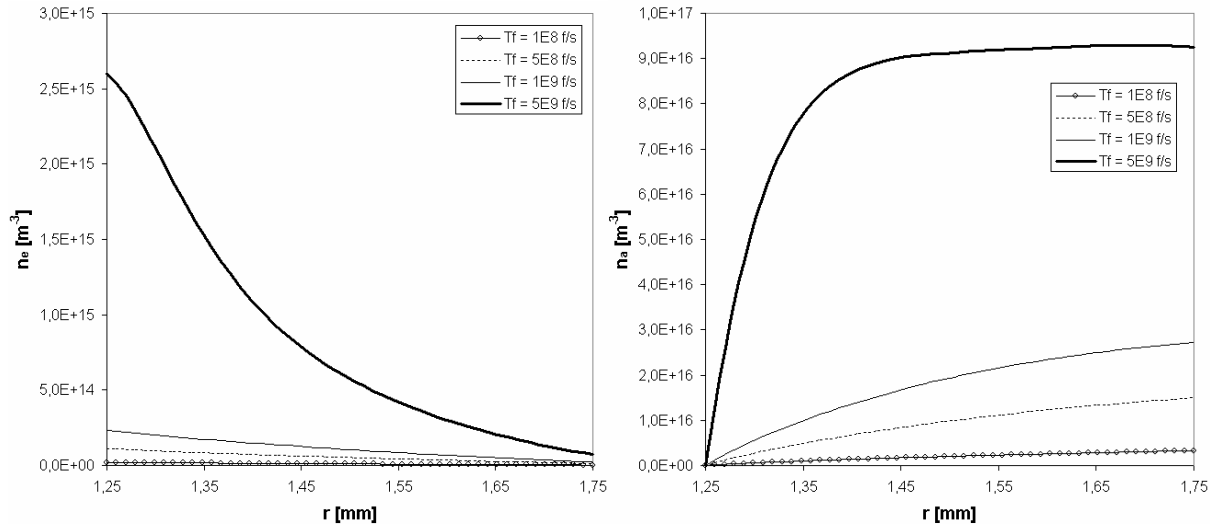
**Figures 73a et 73b :** Terme de production  $k_{ex}.n_e.n = (k^{(0)}_{ex} + k^{(2)}_{ex}).n_e.n$  de métastables par collision électronique avec les atomes neutres (gauche) et rapport  $k_{ex}.n_e.n / 2.\varepsilon.N$  (droite) en fonction de la coordonnée radiale  $r$ , pour plusieurs tensions  $\Delta V$ . ( $\tau_f = 5 \cdot 10^9 \text{ f.s}^{-1}$ ,  $X_0 = 1,8 \cdot 10^8 \times P_{[\text{bar}]}$  paires. $\text{m}^{-1}$ ,  $R_1 = 1,25 \text{ mm}$ ,  $R_2 = 1,75 \text{ mm}$ ,  $h = 0,8 \text{ cm}$ ,  $z_{min} = -1,045 \text{ cm}$ ,  $z_{max} = 0,71 \text{ cm}$ ,  $P = 1 \text{ bar}$ ,  $M = 50$ . Le coefficient de recombinaison  $k$  obéit à l'équation (II.1.42)).

### III.3.B) Impact des charges d'espace sur les courbes de calibration

Dans ce paragraphe, nous étudierons l'impact qu'ont les phénomènes de charges d'espace sur la forme des courbes de calibration. Cette étude requiert la résolution du système (III.3.5) sans approximation.

#### III.3.B.a) Localisation des charges électriques dans l'espace inter électrodes (calcul avec charges d'espace)

Les figures 74 présentent le profil des densités électronique  $n_e$  et ionique  $n_a$  dans l'espace inter électrodes. A haut taux de fission, on remarque que les électrons se concentrent à l'anode tandis que les ions s'accumulent dans le gaz, emplissant progressivement la totalité de l'espace inter électrodes jusqu'à saturation (cf. figure 74b).



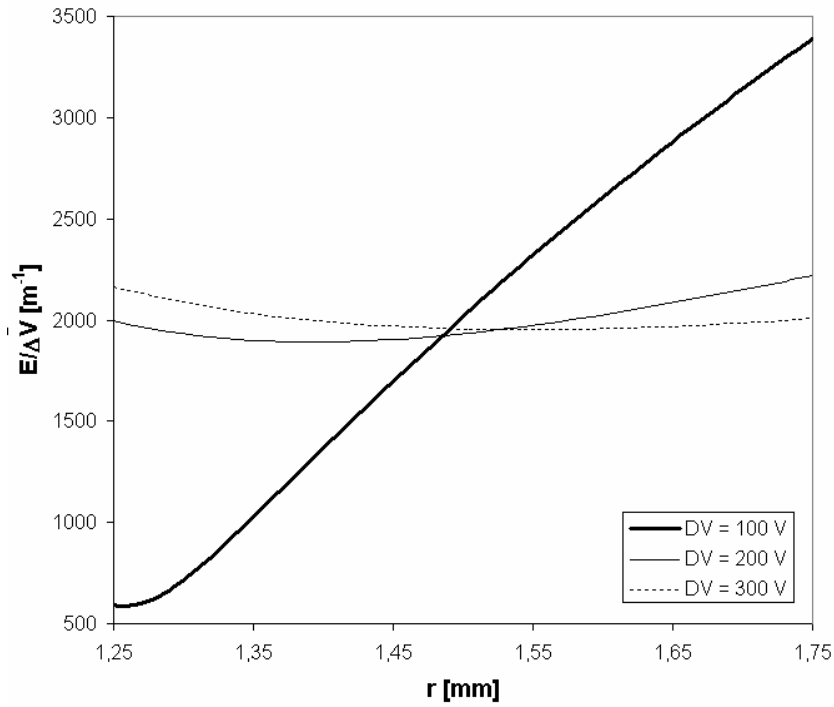
**Figures 74a et 74b :** Densités électronique  $n_e$  (gauche) et ionique  $n_a$  (droite) en fonction de la coordonnée radiale  $r$ , pour plusieurs taux de fission  $\bar{\tau}$ . ( $\Delta V = 250 \text{ V}$ ,  $X_0 = 1,8 \cdot 10^8 \times P_{[\text{bar}]}$  paires. $\text{m}^{-1}$ ,  $R_1 = 1,25 \text{ mm}$ ,  $R_2 = 1,75 \text{ mm}$ ,  $h = 0,8 \text{ cm}$ ,  $z_{\text{min}} = -1,045 \text{ cm}$ ,  $z_{\text{max}} = 0,71 \text{ cm}$ ,  $P = 1 \text{ bar}$ ,  $M = 50$ . Le coefficient de recombinaison  $k$  obéit à l'équation (II.1.42)).

Conformément aux conclusions du paragraphe II.1.F, cette accumulation de charges induit une distorsion du champ électrique  $E$  généré entre les électrodes de la chambre, illustrée figures 75 et 76. Le champ électrique ne varie plus en  $1/r$  et on constate, en accord avec les résultats II.2.B, qu'il diminue à l'anode et augmente à la cathode. On notera également que cette distorsion du champ se renforce quand les densités de charges présentes dans le gaz augmentent (cf. paragraphe II.2.B), autrement dit quand :

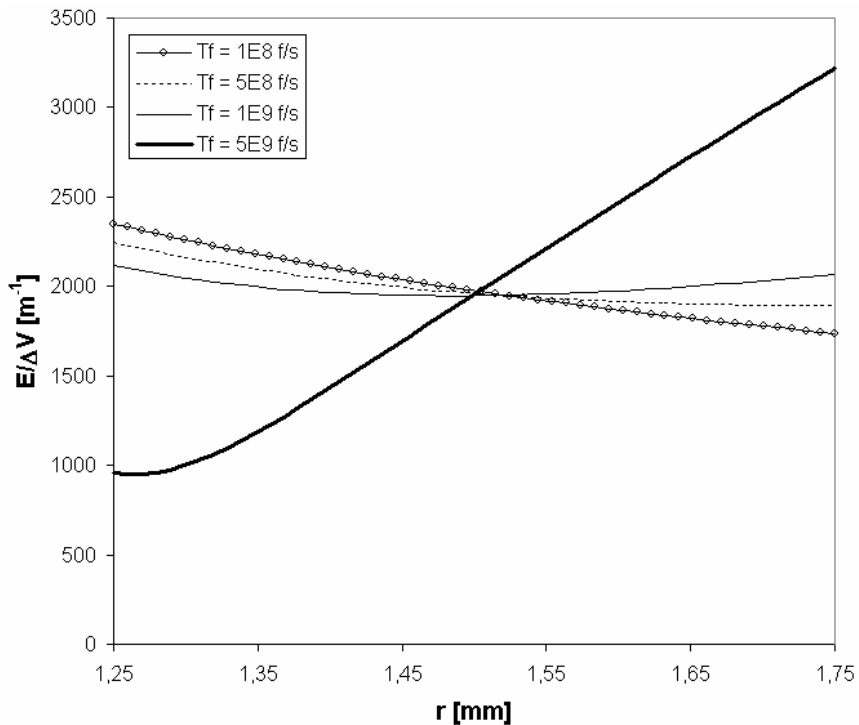
- la tension  $\Delta V$  diminue, car les charges se déplacent lentement et s'accumulent dans l'espace inter électrodes (cf. figure 75),
- le taux de fission  $\bar{\tau}$  augmente, car la densité  $N$  de paires électron - ion créées par seconde par les produits de fission est plus importante (cf. figure 76).
- la pression  $P$  augmente, car les pertes d'énergie des produits de fission dans le gaz sont plus conséquentes et le coefficient  $X_0$  augmente en conséquence (cf. paragraphe II.1.B).

Cette modification du profil du champ électrique a un impact direct sur le fonctionnement des chambres :

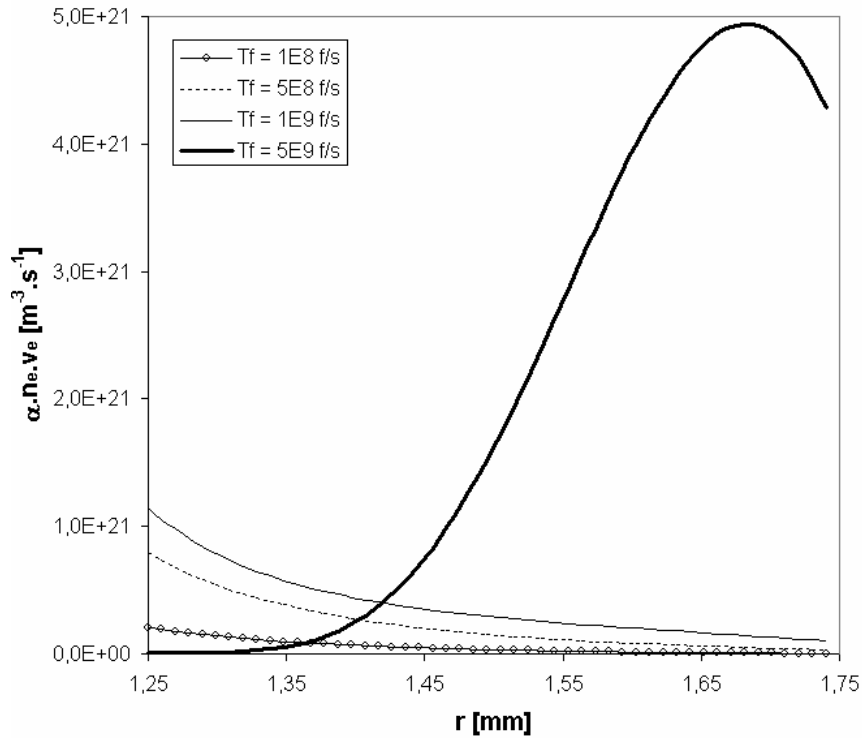
- A faible taux de fission,  $E$  est maximal pour  $r = R_1$  et les réactions d'ionisation secondaire se concentrent donc à l'anode (cf. figures 71). A l'inverse, à haut taux de fission, les charges d'espace perturbent le champ  $E$  qui devient maximal pour  $r = R_2$  (cf. figures 75 et 76). L'avalanche se déplace donc naturellement vers la cathode (cf. figure 77) et la probabilité de claquage de la chambre augmente en conséquence (cf. paragraphe III.3.A.a).
- le renforcement du champ électrique à la cathode à haut taux de fission induit également une accélération des processus de pulvérisation cathodique par bombardement ionique (cf. paragraphe III.2.C). Ces processus de pulvérisation s'accompagnent d'une pollution métallique (la plus préjudiciable) du gaz de remplissage.



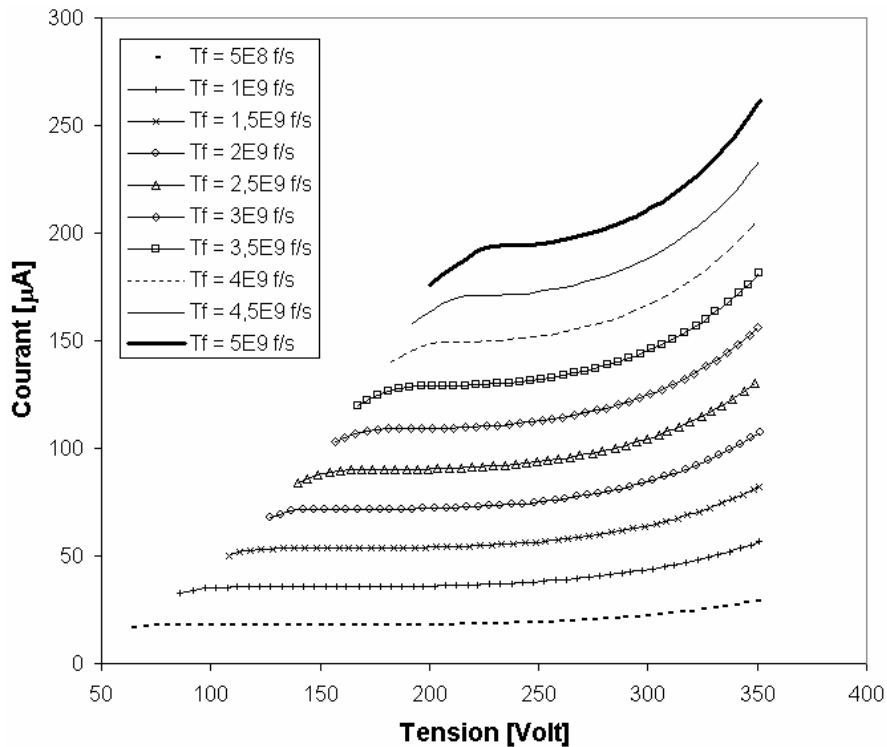
**Figure 75 :** Profil du champ électrique en fonction de la tension appliquée.  $E$  est ici normalisé à la tension  $\Delta V$  ( $\tau_f = 10^9 \text{ f.s}^{-1}$ ,  $X_0 = 1,8 \cdot 10^8 \times P_{[\text{bar}]}$  paires. $\text{m}^{-1}$ ,  $R_1 = 1,25 \text{ mm}$ ,  $R_2 = 1,75 \text{ mm}$ ,  $h = 0,8 \text{ cm}$ ,  $z_{\min} = -1,045 \text{ cm}$ ,  $z_{\max} = 0,71 \text{ cm}$ ,  $P = 1 \text{ bar}$ ,  $M = 50$ . Le coefficient de recombinaison  $k$  obéit à l'équation (II.1.42)).



**Figure 76 :** Profil du champ électrique  $E$  en fonction du taux de fission  $\tau_f$ .  $E$  est ici normalisé à la tension  $\Delta V$  ( $\Delta V = 250 \text{ V}$ ,  $X_0 = 1,8 \cdot 10^8 \times P_{[\text{bar}]}$  paires. $\text{m}^{-1}$ ,  $R_1 = 1,25 \text{ mm}$ ,  $R_2 = 1,75 \text{ mm}$ ,  $h = 0,8 \text{ cm}$ ,  $z_{\min} = -1,045 \text{ cm}$ ,  $z_{\max} = 0,71 \text{ cm}$ ,  $P = 1 \text{ bar}$ ,  $M = 50$ . Le coefficient de recombinaison  $k$  obéit à l'équation (II.1.42)).



**Figure 77 :** Terme d'avalanche  $\alpha n_e v_e$  en fonction de la coordonnée radiale  $r$  pour plusieurs taux de fission  $\tau_f$ . ( $\Delta V = 250$  V,  $X_0 = 1,8 \cdot 10^8 \times P_{[\text{bar}]}$  paires. $\text{m}^{-1}$ ,  $R_1 = 1,25$  mm,  $R_2 = 1,75$  mm,  $h = 0,8$  cm,  $z_{\min} = -1,045$  cm,  $z_{\max} = 0,71$  cm,  $P = 1$  bar,  $M = 50$ . Le coefficient de recombinaison  $k$  obéit à l'équation (II.1.42)).



**Figure 78 :** Courbes de calibration numériques pour différents taux de fission ( $X_0 = 1,8 \cdot 10^8 \times P_{[\text{bar}]}$  paires. $\text{m}^{-1}$ ,  $R_1 = 1,25$  mm,  $R_2 = 1,75$  mm,  $h = 0,8$  cm,  $z_{\min} = -1,045$  cm,  $z_{\max} = 0,71$  cm,  $P = 1$  bar,  $M = 50$ . Le coefficient de recombinaison  $k$  obéit à l'équation (II.1.42)).

### III.3.B.b) Comparaison des courbes avec et sans charges d'espace

Les courbes portées figure 78 ont été obtenues pour des taux de fission variant de  $5 \cdot 10^8$  à  $5 \cdot 10^9$  f.s<sup>-1</sup>. Comme nous le mentionnions précédemment, les perturbations associées aux charges d'espace augmentent quand la tension diminue. Il n'est donc pas surprenant de constater que les régimes de recombinaison des courbes avec et sans charges d'espace diffèrent significativement (cf. figures 61 et 78).

On remarquera en particulier que les charges d'espace ont pour effet de retarder l'arrivée au régime de saturation (cf. figures 79 et 80). La taille du plateau de saturation est notablement réduite à haut taux de fission, ce qui est très préjudiciable sur le plan expérimental. On rappellera que le régime de saturation est le régime de fonctionnement de référence d'une chambre à fission en mode courant.

Les courbes présentées dans ce paragraphe sont tronquées à basse tension. En effet, en raison d'instabilités numériques, les calculs ne convergent plus quand  $\Delta V$  devient trop petit. Le schéma numérique des différences finies montre ici ses limites. Nous reviendrons plus en détail sur ce problème dans la suite de ce rapport (cf. paragraphe III.3.C).

### III.3.B.c) Courant au point de fonctionnement en fonction du taux de fission et méthodes d'analyse des courbes de calibration expérimentales

Dans cette section, nous nous proposons de revenir un peu plus en détail sur l'évolution du courant  $I_0$  au point de fonctionnement avec le taux de fission  $\tau_f$ . Nous rappellerons que le point de fonctionnement correspond à la tension au point d'inflexion d'une courbe de calibration.

Dans des conditions d'irradiation standard (taux de fission faibles à modérés),  $I_0$  varie linéairement avec  $\tau_f$  (cf. figure 81). Cependant, à haut taux de fission, les calculs analytiques effectués au paragraphe II.2.C.b prédisent une déviation par rapport à la loi linéaire qui s'accroît quand  $\tau_f$  devient important. Les résultats portés figure 81 ont été obtenus grâce au système (III.3.5) et confirment cette conclusion.

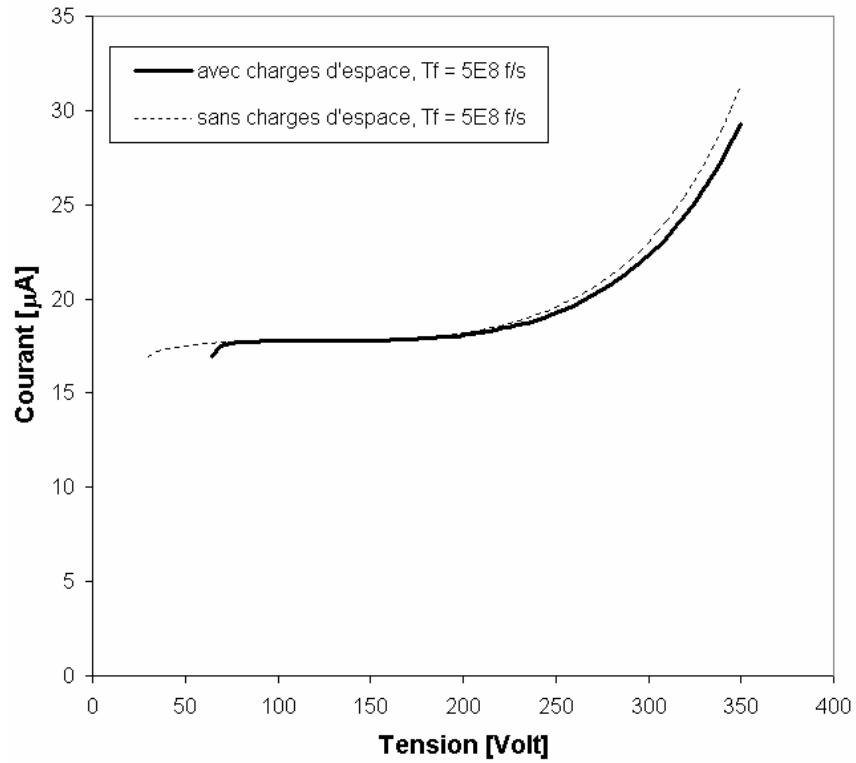
Dans la suite du rapport, nous définirons l'écart  $\delta$  à la loi  $I_0 \propto \tau_f$  comme étant le rapport :

$$\delta = \frac{I_0 - I_{sat}}{I_{sat}} \quad (\text{III.3.8})$$

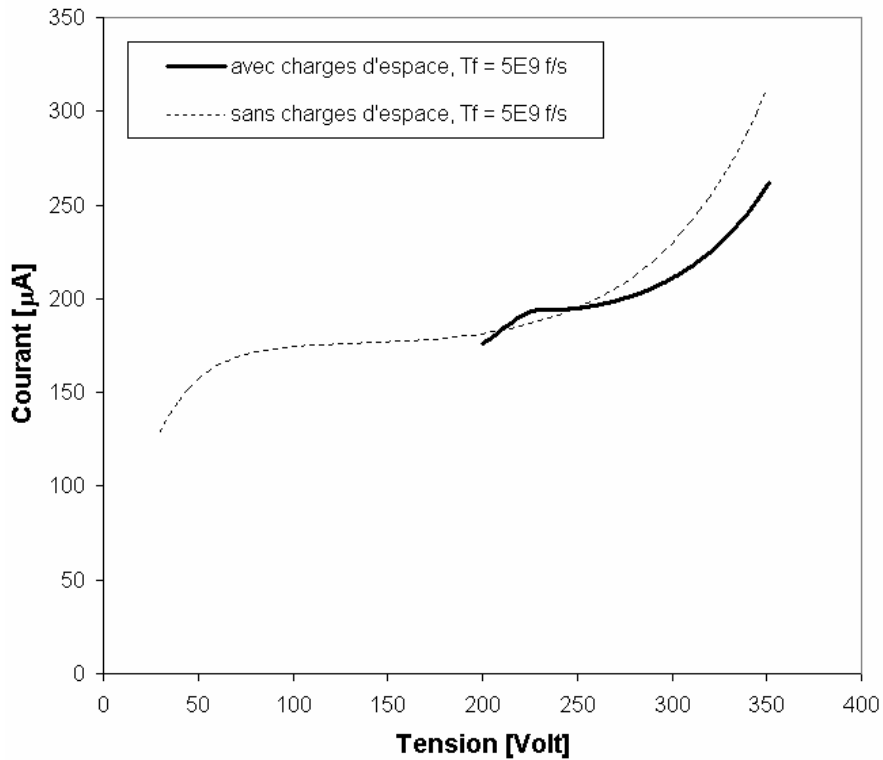
On constate figure 82 que  $\delta$  augmente rapidement avec le taux de fission, pour atteindre 10 % environ à  $\tau_f = 5 \cdot 10^9$  f.s<sup>-1</sup>. Plus précisément, on obtient :

$$\delta = 1,22 \times 10^{-3} \times \tau_f^{2,7} \quad (\text{III.3.9})$$

où  $\tau_f$  est donné en  $10^9$  f.s<sup>-1</sup>.

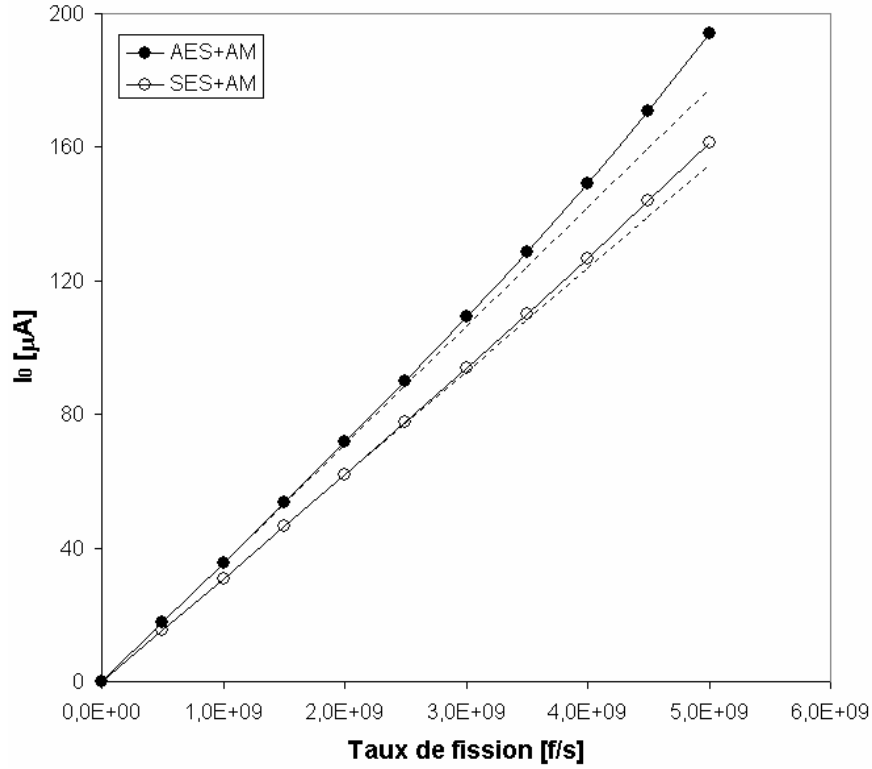


**Figure 79** : Courbes de calibration numériques avec et sans charges d'espace ( $\tau_f = 5 \cdot 10^8 \text{ f.s}^{-1}$ ,  $X_0 = 1,8 \cdot 10^8 \times P_{[\text{bar}]}$  paires.m<sup>-1</sup>,  $R_1 = 1,25 \text{ mm}$ ,  $R_2 = 1,75 \text{ mm}$ ,  $h = 0,8 \text{ cm}$ ,  $z_{\text{min}} = -1,045 \text{ cm}$ ,  $z_{\text{max}} = 0,71 \text{ cm}$ ,  $P = 1 \text{ bar}$ ,  $M = 50$ . Le coefficient de recombinaison  $k$  obéit à l'équation (II.1.42)).

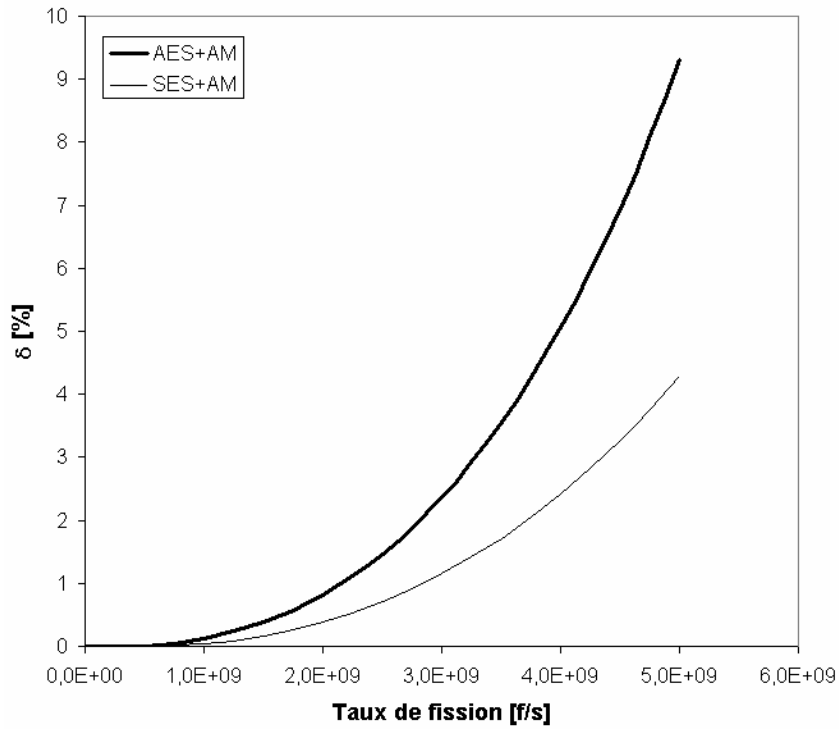


**Figure 80** : Courbes de calibration numériques avec et sans charges d'espace ( $\tau_f = 5 \cdot 10^9 \text{ f.s}^{-1}$ ,  $X_0 = 1,8 \cdot 10^8 \times P_{[\text{bar}]}$  paires.m<sup>-1</sup>,  $R_1 = 1,25 \text{ mm}$ ,  $R_2 = 1,75 \text{ mm}$ ,  $h = 0,8 \text{ cm}$ ,  $z_{\text{min}} = -1,045 \text{ cm}$ ,  $z_{\text{max}} = 0,71 \text{ cm}$ ,  $P = 1 \text{ bar}$ ,  $M = 50$ . Le coefficient de recombinaison  $k$  obéit à l'équation (II.1.42)).





**Figure 81 :** Courant  $I_0$  au point de fonctionnement en fonction du taux de fission.  $I_{sat}$  est représenté en pointillés. ( $X_0 = 1,8 \cdot 10^8 \times P_{[bar]}$  paires.m<sup>-1</sup>,  $R_1 = 1,25$  mm,  $R_2 = 1,75$  mm,  $h = 0,8$  cm,  $z_{min} = -1,045$  cm,  $z_{max} = 0,71$  cm,  $P = 1$  bar,  $M = 50$ . Le coefficient de recombinaison  $k$  obéit à l'équation (II.1.42)).



**Figure 82 :** Ecart  $\delta$  à la loi linéaire  $I_0 \propto \tau_f$  en fonction du taux de fission. ( $X_0 = 1,8 \cdot 10^8 \times P_{[bar]}$  paires.m<sup>-1</sup>,  $R_1 = 1,25$  mm,  $R_2 = 1,75$  mm,  $h = 0,8$  cm,  $z_{min} = -1,045$  cm,  $z_{max} = 0,71$  cm,  $P = 1$  bar,  $M = 50$ . Le coefficient de recombinaison  $k$  obéit à l'équation (II.1.42)).

Contrairement à ce qui est prédit pour un calcul sans charges d'espace, analytique ou numérique (cf. paragraphe II.2.C.b), le rapport  $\delta$  est ici positif. Sous l'effet des charges d'espace, le champ électrique augmente en effet à la cathode. Il en résulte une accélération des processus d'émission secondaire, ce qui induit une augmentation artificielle du courant délivré par la chambre. Par ailleurs, on constate également que les atomes métastables contribuent à l'augmentation de  $\delta$ , même si leur mécanisme d'action est moins évident.

Cet écart à la loi linéaire peut paraître théorique, toutefois il a un impact considérable sur la précision des mesures effectuées avec des chambres à fission. Pour s'en convaincre, il suffit de tracer l'évolution du courant délivré par une chambre CFUT-C3 au cours du temps.

Dans un flux constant, l'évolution du courant  $I_{sat}$  est une exponentielle donnée par :

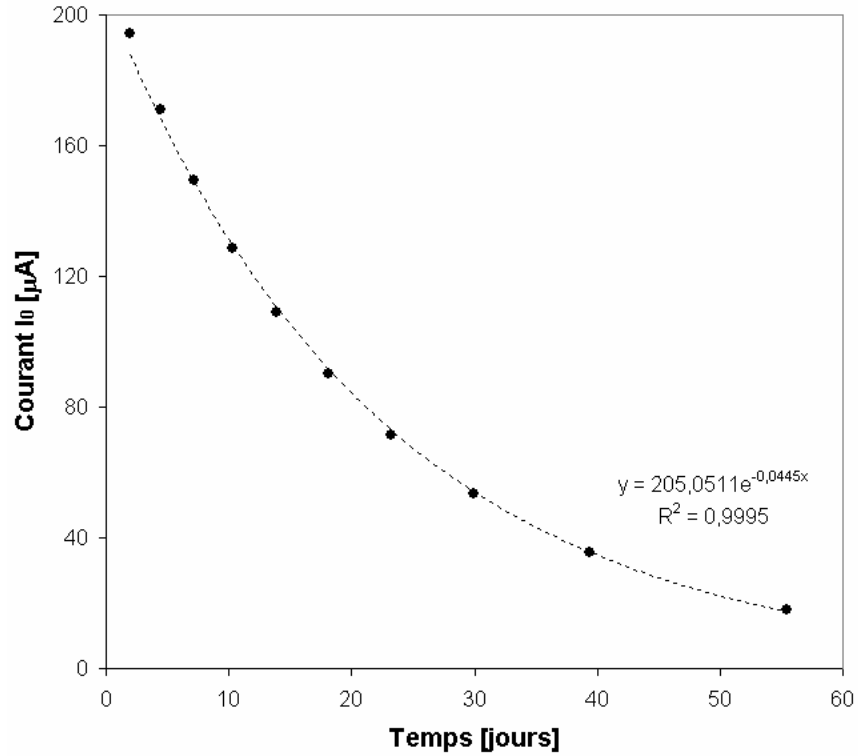
$$I_{sat} = \frac{eX_0(1+\gamma)G}{2\pi} \tau_f = \frac{eX_0(1+\gamma)G}{2\pi} N_a \frac{m_{U5}}{M_{U5}} \sigma_f \phi e^{-(\sigma_c + \sigma_f)\phi t} \quad (\text{III.3.10})$$

où :  $m_{U5}$  est la masse initiale du dépôt d'uranium 235,  
 $M_{U5}$ , la masse molaire de l'uranium 235,  
 $N_a$ , le nombre d'Avogadro,  
 $\sigma_f$ , la section efficace de fission de l'uranium 235,  
 $\sigma_c$ , la section efficace de capture de l'uranium 235,  
 $\phi$ , le flux de neutrons,  
 $t$ , le temps passé dans le flux  $\phi$ ,  
 $e$ , charge électrique fondamentale,  
 $X_0$ , le nombre de paires de charge créées par un produit de fission par unité de distance parcourue dans le gaz (cf. paragraphe II.1.B)  
 $\gamma$ , le coefficient d'émission secondaire (cf. paragraphe III.2.D),  
 $G$ , un facteur géométrique donnée par l'expression (II.2.6),

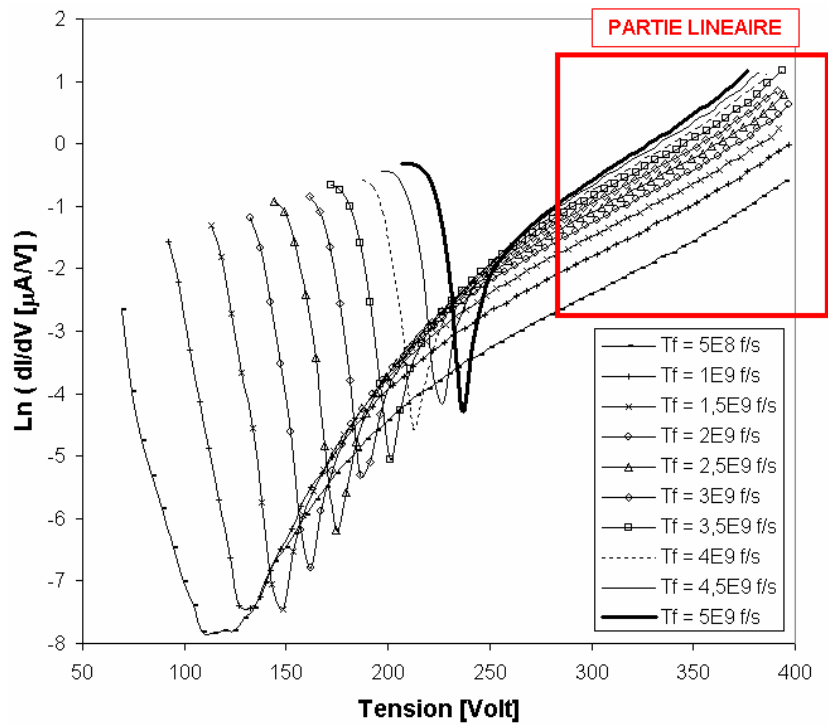
Dans la configuration décrite figure 83, l'ajustement des points  $I_0$  calculés au point d'inflexion des courbes de calibration par une exponentielle obéissant à l'équation (III.3.10) nous donne un flux de neutrons  $\phi$  égal à  $1,034 \cdot 10^{15} \text{ n.cm}^{-2}.\text{s}^{-1}$ . Or, ces courants  $I_0$  ont été calculés pour  $\phi = 10^{15} \text{ n.cm}^{-2}.\text{s}^{-1}$ . La méthode conventionnelle d'analyse des courbes de calibration expérimentales, dite « du point d'inflexion », induit donc une erreur de 3,4 % dans la détermination du flux neutronique. Cette erreur va croissant avec la masse du dépôt d'uranium et la valeur du flux neutronique. Par conséquent, cette méthode ne permet pas une détermination précise du flux lorsque l'on travaille à haut taux de fission.

Dès lors, quelle technique faut-il mettre en oeuvre pour réduire ce biais ? L'étude de la forme des courbes de calibration ouvre une première piste de recherche intéressante. On constate en effet que le régime d'avalanche des courbes théoriques présente une zone où son évolution avec la tension  $\Delta V$  est purement exponentielle (cf. figures 84 et 85).

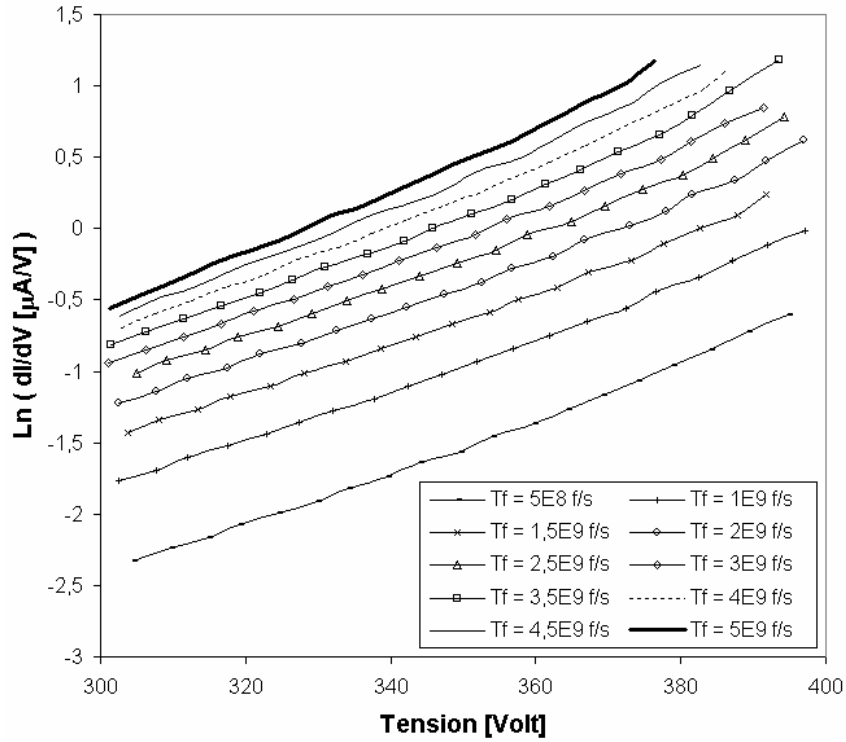
Cette prédiction théorique est validée par l'expérience sur une large gamme de taux de fission (cf. figure 86).



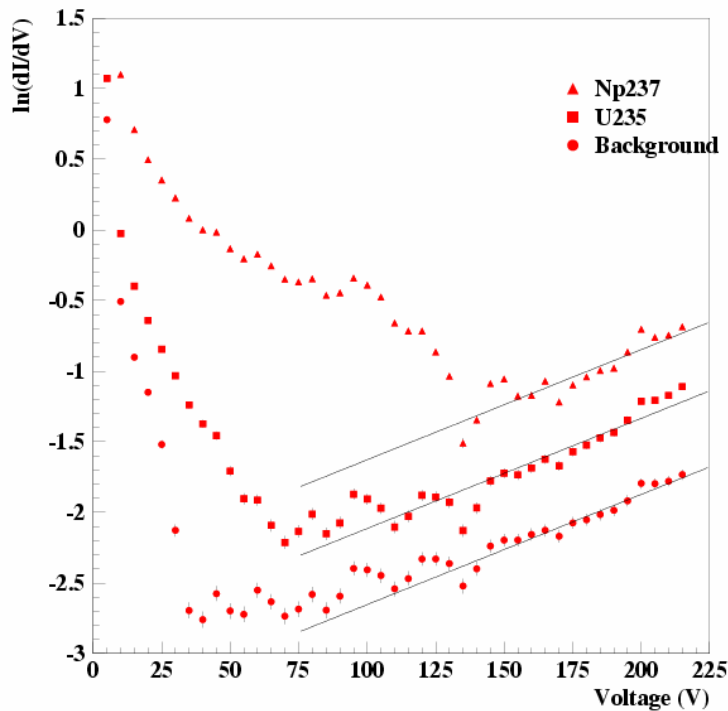
**Figure 83** : Evolution du courant  $I_0$  délivré par la chambre au cours du temps. ( $\phi = 10^{15}$  n.cm<sup>-2</sup>.s<sup>-1</sup>,  $\sigma_c = 73,32$  barn,  $\sigma_f = 424,68$  barn,  $m_{U5} = 5$  µg,  $X_0 = 1,8 \cdot 10^8 \times P_{[\text{bar}]}$  paires.m<sup>-1</sup>,  $R_1 = 1,25$  mm,  $R_2 = 1,75$  mm,  $h = 0,8$  cm,  $z_{\min} = -1,045$  cm,  $z_{\max} = 0,71$  cm,  $P = 1$  bar,  $M = 50$ ). Le coefficient de recombinaison  $k$  obéit à l'équation (II.1.42)).



**Figure 84** : Logarithme de la dérivée des courbes de calibration pour plusieurs taux de fission. ( $X_0 = 1,8 \cdot 10^8 \times P_{[\text{bar}]}$  paires.m<sup>-1</sup>,  $R_1 = 1,25$  mm,  $R_2 = 1,75$  mm,  $h = 0,8$  cm,  $z_{\min} = -1,045$  cm,  $z_{\max} = 0,71$  cm,  $P = 1$  bar,  $M = 50$ ). Le coefficient de recombinaison  $k$  obéit à l'équation (II.1.42)).



**Figure 85** : Logarithme de la dérivée des courbes de calibration pour plusieurs taux de fission, zoom à haute tension. ( $X_0 = 1,8 \cdot 10^8 \times P_{[\text{bar}]}$  paires. $\text{m}^{-1}$ ,  $R_1 = 1,25$  mm,  $R_2 = 1,75$  mm,  $h = 0,8$  cm,  $z_{\min} = -1,045$  cm,  $z_{\max} = 0,71$  cm,  $P = 1$  bar,  $M = 50$ ). Le coefficient de recombinaison  $k$  obéit à l'équation (II.1.42)).



**Figure 86** : Logarithme de la dérivée de courbes de calibration expérimentales pour plusieurs chambres à fission (chambre avec dépôt d'uranium 235, de neptunium 237 et chambre sans dépôt<sup>8</sup>). ( $R_1 = 1,25$  mm,  $R_2 = 1,75$  mm,  $P = 0,9$  bar). Les courbes ont été obtenues au RHF de l'ILL. Comme souvent, l'acquisition des points est stoppée à 200-250 V pour éviter tout risque de claquage.

<sup>8</sup> Ces trois chambres ont un gaz commun et forment une chambre dite « triple corps » (cf. paragraphe IV.2)

On supposera donc que le courant délivré au régime d'avalanche s'écrit :

$$I = I_{sat} + \left( \frac{e^{A\Delta V+B}}{A} - \frac{e^{A\Delta V_{min}+B}}{A} \right) \quad (\text{III.3.11})$$

En pratique, on fixe arbitrairement la tension  $\Delta V_{min}$  à 75 V. La détermination des coefficients  $A$  et  $B$  théoriques est rendue difficile en présence de charges d'espace. Les courbes présentées figure 85 présentent en effet de légères oscillations et il en résulte une erreur sur les valeurs des ajustements. On utilisera donc temporairement des courbes sans charges d'espace afin d'obtenir des calculs plus stables. On remarque ainsi que la loi qui donne l'évolution du coefficient  $B$  théorique en fonction du taux de fission est en bon accord avec la loi expérimentale, à un offset de 5 % à 10 % près.

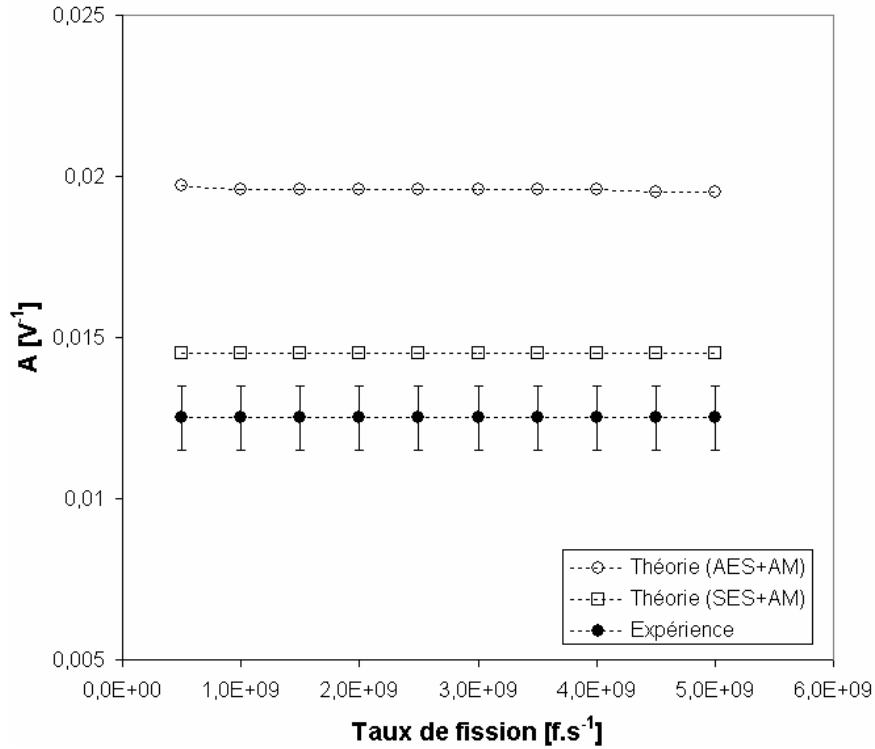
$$\begin{cases} B_{THE}(AES + AM) = 1,0141 \times \ln(\tau_f) - 28,056 \\ B_{THE}(SES + AM) = 1,0038 \times \ln(\tau_f) - 26,944 \\ B_{EXP} = 0,9976 \times \ln(\tau_f) - 26,125 \end{cases} \quad (\text{III.3.12})$$

Par ailleurs, on constate que le calcul numérique surestime notablement le coefficient  $A$  (cf. figure 87). Les ajustements expérimentaux conduisent en effet à des valeurs proches de  $1,25 \cdot 10^{-2} \pm 10^{-3} \text{ V}^{-1}$ . Ce désaccord indique que le logiciel BOLSIG surestime vraisemblablement le coefficient  $\alpha$  de première ionisation de Townsend (cf. paragraphe II.1.D.a). Une comparaison avec les mesures de Lakshminarasimha & al [11] conforte cette hypothèse pour les champs électriques faibles. Malheureusement, il n'existe aucune mesure de  $\alpha$  pour des champs électriques élevés et BOLSIG reste donc la seule alternative possible au manque de données expérimentales.

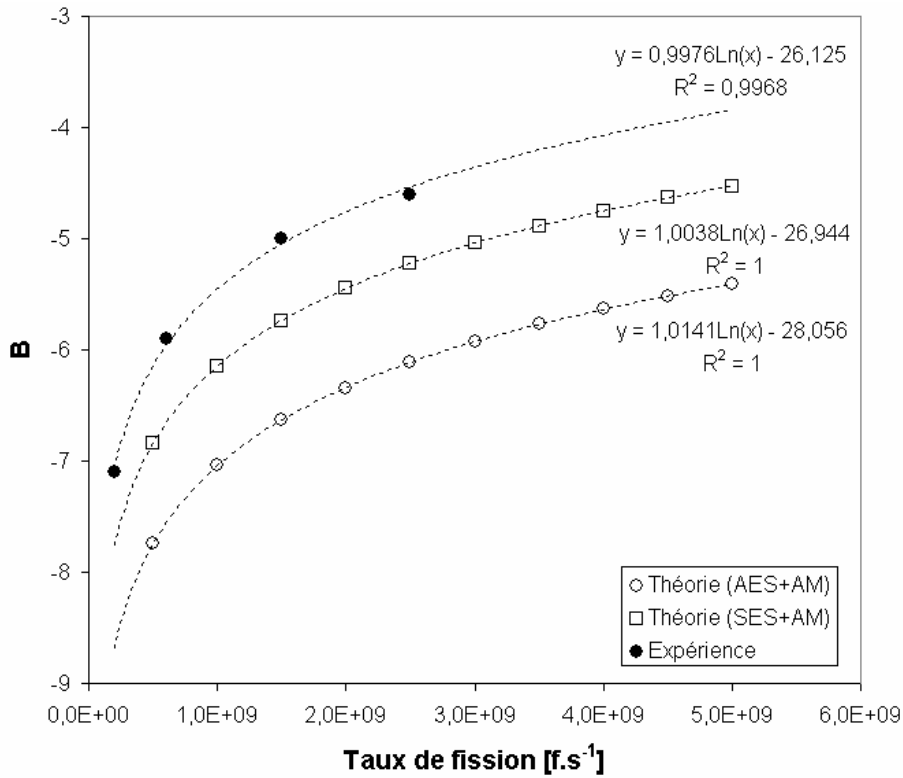
On notera également sur les figures 87 et 88 que la prise en compte des processus d'émission secondaire entraîne une augmentation des écarts entre le calcul et l'expérience. Le coefficient  $\gamma$  est très probablement surestimé car le titane s'oxyde facilement (cf. paragraphe III.2.D).

Comme on peut le constater figure 84, la transition entre le régime de saturation et le régime d'avalanche n'est pas une exponentielle pure de la tension. En conséquence, la méthode d'analyse décrite par l'équation (III.3.11) induira elle aussi un biais sur la détermination du flux  $\phi$ . Toutefois, une première confrontation avec des données collectées en 2005 au RHF de l'ILL montre une réduction appréciable d'un facteur 2 environ sur l'erreur commise par rapport à la méthode du point d'inflexion. De plus, cette méthode « exponentielle » présente l'avantage notable de s'affranchir des perturbations liées à la pollution progressive du gaz de remplissage par accumulation de produits de fission gazeux (cf. paragraphe III.2.B). Contrairement à  $I_0$ , le courant  $I_{sat}$  est en effet indépendant de la pente ou des caractéristiques de l'avalanche. Il ne varie donc pas tant que les polluants restent en quantité suffisamment faibles pour ne pas modifier le coefficient  $X_0$ . C'est le cas, même après 50 jours d'irradiation continue à un taux de fission de  $5 \cdot 10^9 \text{ f.s}^{-1}$ .

En conclusion, la méthode exponentielle, dont il faudra quantifier plus précisément l'impact, apparaît comme une alternative intéressante à la méthode du point d'inflexion à haut taux de fission.



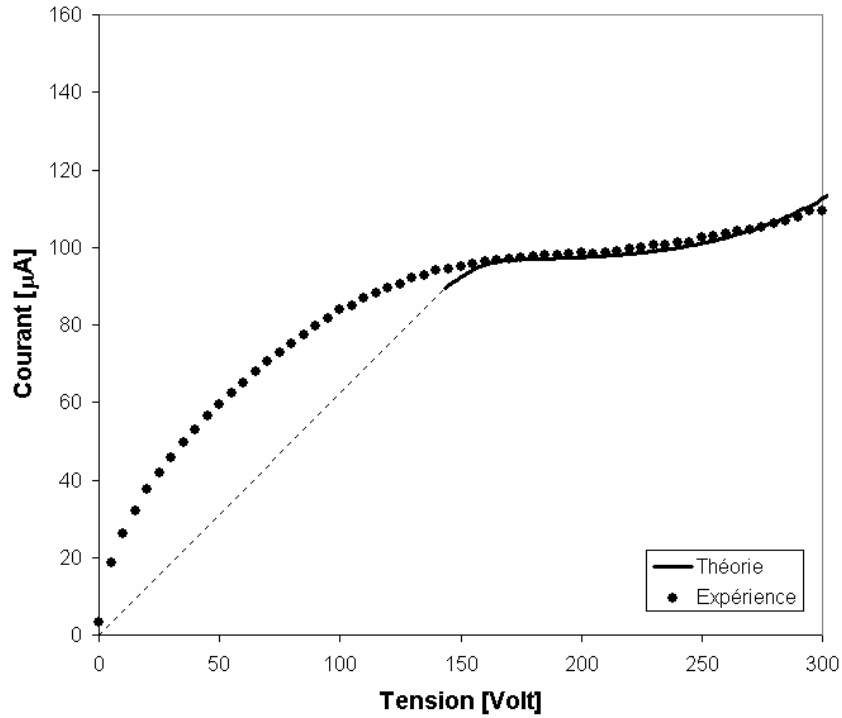
**Figure 87** : Evolution des coefficients  $A$  théoriques et expérimental en fonction du taux de fission. ( $P = 0,9$  bar,  $R_1 = 1,25$  mm,  $R_2 = 1,75$  mm,  $h = 0,8$  cm,  $z_{min} = -1,045$  cm,  $z_{max} = 0,71$  cm,  $X_0 = 1,8 \cdot 10^8 \times P_{[bar]}$  paires. $m^{-1}$ ,  $M = 50$ . Le coefficient de recombinaison  $k$  obéit à l'équation (II.1.42)).



**Figure 88** : Evolution des coefficients  $B$  théoriques et expérimental en fonction du taux de fission. ( $P = 0,9$  bar,  $R_1 = 1,25$  mm,  $R_2 = 1,75$  mm,  $h = 0,8$  cm,  $z_{min} = -1,045$  cm,  $z_{max} = 0,71$  cm,  $X_0 = 1,8 \cdot 10^8 \times P_{[bar]}$  paires. $m^{-1}$ ,  $M = 50$ . Le coefficient de recombinaison  $k$  obéit à l'équation (II.1.42)).

### III.3.C) Améliorations à apporter à la résolution numérique

La figure 89 est représentative des derniers problèmes à résoudre pour disposer d'une modélisation complète. Elle présente en effet deux courbes de calibration, obtenues par l'expérience et le calcul (SES + AM + charges d'espace) pour une chambre CFUT-C3 dans un taux de fission élevé ( $2,7 \cdot 10^9 \text{ f.s}^{-1}$ ). Entre 150 et 300 V, on note que l'accord théorie-expérience est correct. Cependant, on constate à basse tension une différence notable dans la zone du régime de recombinaison. Cet écart est principalement dû à trois facteurs :



**Figure 89 :** Comparaison expérience théorie (SES+AM). ( $\tau_f = 2,7 \cdot 10^9 \text{ f.s}^{-1}$ ,  $X_0 = 1,8 \cdot 10^8 \times P_{[\text{bar}]}$  paires. $\text{m}^{-1}$ ,  $R_1 = 1,25 \text{ mm}$ ,  $R_2 = 1,75 \text{ mm}$ ,  $h = 0,8 \text{ cm}$ ,  $z_{\min} = -1,045 \text{ cm}$ ,  $z_{\max} = 0,71 \text{ cm}$ ,  $P = 1 \text{ bar}$ ,  $M = 50$ ). Le coefficient de recombinaison  $k$  obéit à l'équation (II.1.42)) (Les pointillés relient le couple  $\{\Delta V = 0, I = 0\}$  au premier point stable du calcul (SES+AM))

- Les procédures numériques ne prennent pas en compte les mécanismes de diffusion des charges électriques dans le gaz de remplissage. Quel impact cette approximation peut-elle avoir sur la pertinence de la modélisation ?  
Conformément aux équations (II.1.51), les vitesses complètes de dérive  $v_e$  et  $v_a$  des électrons et des ions sont données par :

$$\begin{cases} v_e = \mu_e E + \frac{\frac{\partial}{\partial r} n_e D_e}{n_e} \\ v_a = \mu_a E - \frac{\frac{\partial}{\partial r} n_a D_a}{n_a} \end{cases} \quad (\text{III.3.13})$$

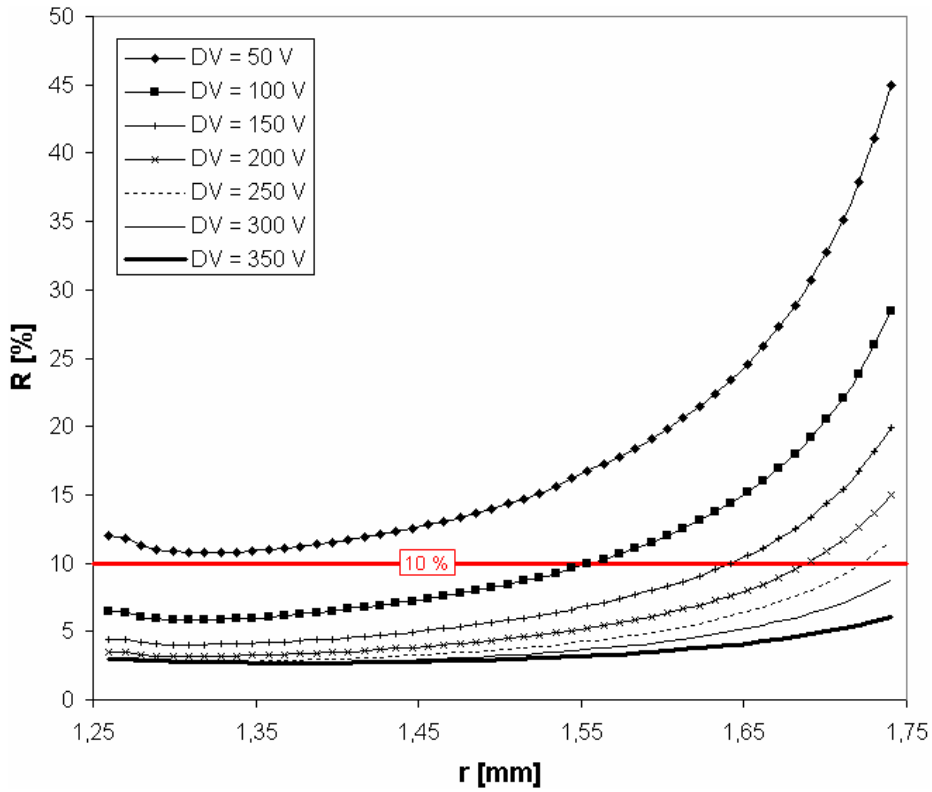
La contribution des processus de diffusion aux vitesses électroniques peut donc s'écrire :

$$R = \frac{\frac{\partial}{\partial r} n_e D_e}{n_e \mu_e E} \quad (\text{III.3.14})$$

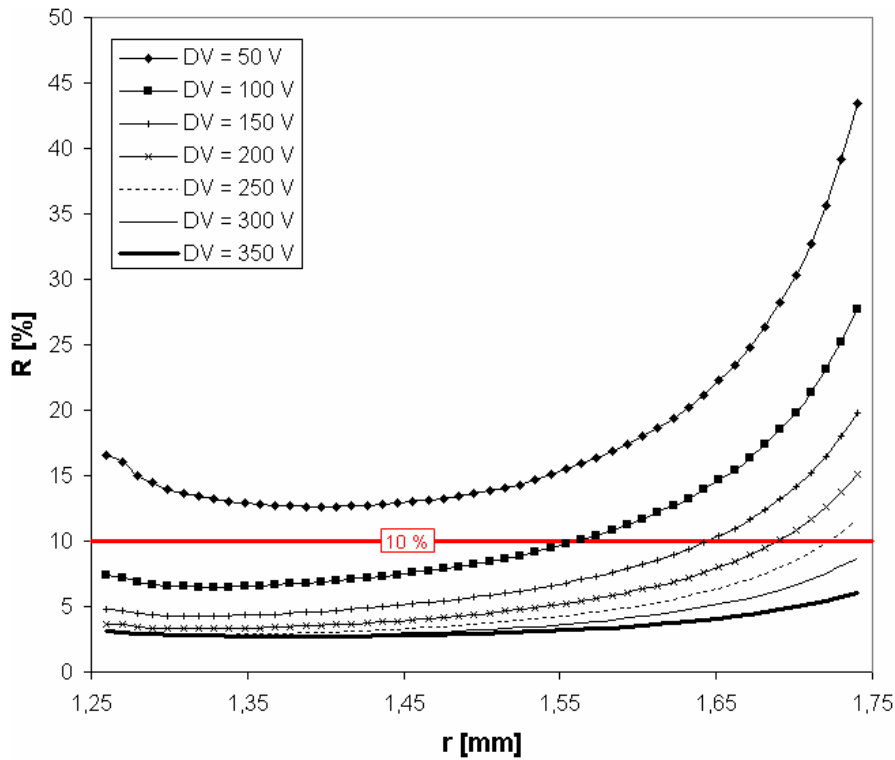
Les figures 90 et 91 présentent l'évolution du rapport  $R$  en fonction de la distance radiale  $r$  pour des tensions  $\Delta V$  croissantes. On constate que les processus de diffusion modifient notablement  $v_e$  à basse tension et sont donc responsables d'une partie de l'écart observé figure 89 dans le régime de recombinaison.

- On observe par ailleurs l'apparition d'instabilités numériques lorsque la tension appliquée aux bornes des chambres devient faible. Le calcul théorique de l'intensité en devient même impossible (cf. figure 89). Cette perturbation est une conséquence des charges d'espace. En effet, elles entraînent à basse tension une distorsion importante du champ électrique  $E$  (cf. section III.3.B.a), qui tend progressivement vers 0 sur une portion croissante de l'espace inter électrodes. Or, une limite à 0 pose problème en calcul numérique, en particulier lorsque les équations ne contiennent que des dérivées d'ordre 1, ce qui est le cas dans notre modèle (cf. système (III.3.5)).  
Les processus de diffusion sont gouvernés par des dérivées d'ordre 2, qui peuvent avoir des vertus stabilisantes pour les calculs (cf. équations (II.1.51)). Leur introduction dans la modélisation devrait s'accompagner d'une réduction des problèmes d'instabilités. Il s'agit là d'un nouvel argument en faveur de leur implémentation.
- Enfin, la valeur du coefficient de recombinaison  $k$  utilisée pour la modélisation est extrapolée à partir de mesures effectuées à très basses et très hautes pressions (cf. section II.1.D.b). Il n'existe en effet aucune donnée expérimentale à pression atmosphérique et on peut donc s'attendre à des écarts conséquents par rapport aux valeurs réelles. Si l'on ajoute à cette dernière incertitude les deux points soulevés plus haut, l'écart constaté entre théorie et expérience dans le régime de recombinaison ne surprend plus (cf. figure 89). Comme il est mentionné à la fin du deuxième chapitre, nous déterminerons le coefficient  $k$  par ajustement des courbes de calibration expérimentales à bas taux de fission par la formule (II.2.56). L'analyse est en cours et les premiers résultats suggèrent des valeurs de  $k$  proches de  $2 \cdot 10^{-11} \text{ m}^3 \cdot \text{s}^{-1}$ , compatibles pour des chambres à fission différentes (cf. paragraphe VIII.2).





**Figure 90 :** Impact des processus de diffusion sur les vitesses de dérive des électrons. ( $\tau_f = 10^8$  f.s $^{-1}$ ,  $X_0 = 1,8 \cdot 10^8 \times P_{[\text{bar}]}$  paires.m $^{-1}$ ,  $R_1 = 1,25$  mm,  $R_2 = 1,75$  mm,  $h = 0,8$  cm,  $z_{\min} = -1,045$  cm,  $z_{\max} = 0,71$  cm,  $P = 1$  bar,  $M = 50$ . Le coefficient de recombinaison  $k$  obéit à l'équation (II.1.42)).



**Figure 91 :** Impact des processus de diffusion sur les vitesses de dérive des électrons. ( $\tau_f = 10^{10}$  f.s $^{-1}$ ,  $X_0 = 1,8 \cdot 10^8 \times P_{[\text{bar}]}$  paires.m $^{-1}$ ,  $R_1 = 1,25$  mm,  $R_2 = 1,75$  mm,  $h = 0,8$  cm,  $z_{\min} = -1,045$  cm,  $z_{\max} = 0,71$  cm,  $P = 1$  bar,  $M = 50$ . Le coefficient de recombinaison  $k$  obéit à l'équation (II.1.42)).

## CHAPITRE IV

### Applications technologiques et nouveaux concepts de chambres à fission

Les calculs analytiques et les procédures numériques présentés aux chapitres II et III nous ont permis d'appréhender les processus physiques complexes à l'oeuvre dans une chambre à fission. Nous capitaliserons les renseignements acquis dans les paragraphes suivants, où nous présenterons des exemples d'applications technologiques.

#### IV.1) Développement de chambres à gap réduit

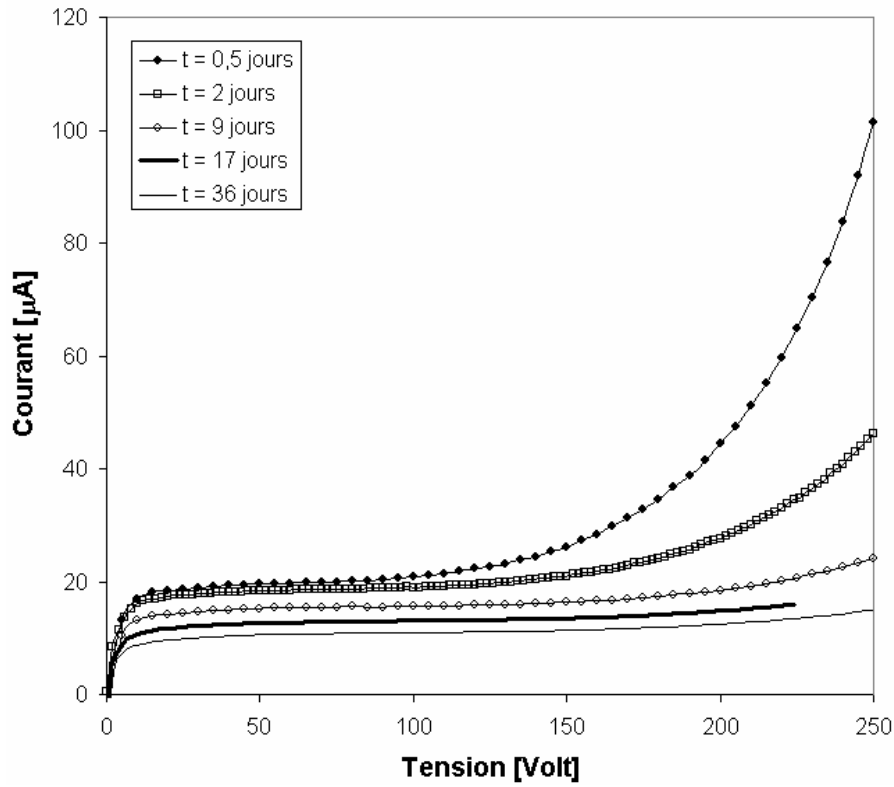
Au cours des paragraphes II.2.B et III.3.B, nous avons étudié l'impact néfaste qu'ont les charges d'espace sur la réponse des chambres à fission. En particulier, nous avons démontré que leur accumulation est incompatible avec un fonctionnement correct à haut flux de neutrons. Pour accéder à ces hauts flux (dans l'optique du pilotage des réacteurs de génération IV, par exemple), il est donc obligatoire de limiter, voire de supprimer, les phénomènes de charges d'espace.

Conformément à l'équation (II.2.17), le moyen le plus efficace pour atteindre cet objectif consiste à réduire le gap inter électrodes  $d$ . Par conséquent, nous avons développé des chambres nouvelle génération, dites « à gap réduit », où la distance entre les électrodes est abaissée de 500  $\mu\text{m}$  (chambres CFUT-C3) à 250  $\mu\text{m}$ .

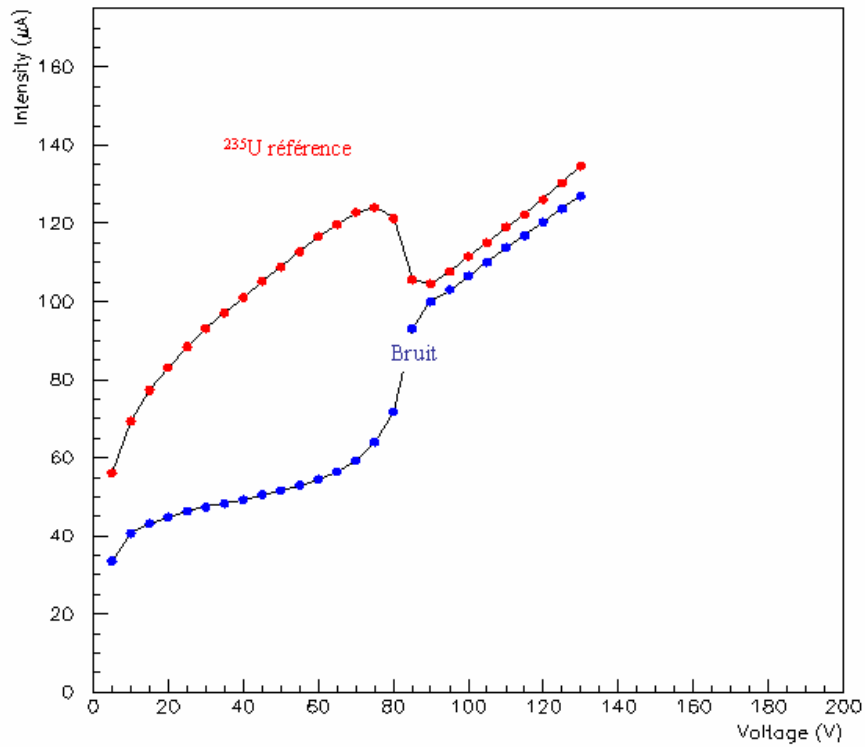
La construction de ces micro détecteurs s'est accompagnée de progrès techniques, tant sur le plan mécanique que sur le plan électrique. En particulier, le parallélisme des électrodes a été renforcé afin de limiter le risque de claquage ou de court-circuit. En outre, des outils et des pièces spécifiques ont été conçus pour améliorer le contrôle de la pression et de la pureté du gaz de détection.

En 2005, trois prototypes ont été mis en irradiation continue au RHF de l'ILL pendant 50 jours dans un flux de  $10^{15}$  n.cm<sup>-2</sup>.s<sup>-1</sup> et une température de 230°C. Des problèmes techniques de fuite et de pollution du gaz de remplissage ont été relevés sur l'ensemble des détecteurs. Des améliorations au niveau des soudures, de l'ajustement des pièces et des procédures de remplissage seront donc nécessaires.

Néanmoins, les premières mesures sont encourageantes. La figure 92 présente un faisceau de courbes de calibration obtenues en cours d'irradiation. Comme on le constate, la réduction du gap inter électrodes a permis d'aplanir notablement la zone de saturation (cf. paragraphe II.2.C.d). La déformation des courbes de calibration à taux de fission est fortement réduite. La détermination du courant à la saturation en est facilitée et l'erreur associée est en conséquence réduite. Enfin, la proportionnalité entre le courant de fonctionnement  $I_0$  et le taux de fission (cf. paragraphe II.2.C.b) est maintenue, ce qui améliore notablement la précision sur la mesure du flux.



**Figure 92 :** Faisceau de courbes de calibration expérimentales obtenues avec une chambre à gap réduit irradiée en position 25 du canal V4 du RHF ( $\phi = 10^{15}$  n.cm<sup>-2</sup>.s<sup>-1</sup>,  $R_1 = 1,5$  mm,  $R_2 = 1,75$  mm,  $P = 0,8$  bar).



**Figure 93 :** Phénomène de diaphonie observé dans une chambre triple corps entre la section à dépôt d'uranium  $^{235}\text{U}$  et la section sans dépôt lorsque la taille du passage utilisé pour la circulation du gaz est trop importante. Irradiation au RHF de l'ILL.

## IV.2) Développement de chambres triple corps

Au cours des paragraphes II.2.D et III.2, nous avons montré que l'accumulation de polluants gazeux dans l'espace inter électrodes induit une modification importante de la forme des courbes de calibration. Les processus de pollution altèrent ainsi la précision des mesures effectuées avec des chambres fonctionnant à des fluences élevées (cf. figure 46). En conséquence, réduire l'impact des polluants est indispensable, au même titre que les phénomènes de charges d'espace.

A cet effet, nous avons développé un concept innovant de détecteur, appelé chambre « triple corps ». Les détecteurs « triple corps » sont constitués d'un assemblage de trois chambres conventionnelles de type CFUT-C3 :

- une première chambre possède un dépôt d'uranium 235, essentiellement sensible au flux de neutrons thermiques. Son suivi au cours du temps permet d'en effectuer une mesure absolue (cf. paragraphe VII.5),
- une deuxième chambre présente un dépôt fissile ou fertile plus spécifique. Il peut par exemple s'agir d'un actinide mineur ( $^{237}\text{Np}$ ,  $^{241}\text{Am}$ ,  $^{244}\text{Cm}$ , etc.) dont on souhaite mesurer en ligne le taux d'incinération. On peut également faire appel au plutonium 242 pur, si l'on souhaite compléter la caractérisation du flux neutronique par une mesure de sa composante rapide.
- La dernière chambre est sans dépôt. Elle est utilisée comme chambre de compensation et nous permet de soustraire le bruit  $\gamma$  et  $\beta$  des mesures effectuées par les deux premières chambres (cf. paragraphe VII.5).

Enfin, un passage étroit est ménagé entre les espaces inter électrodes de chacune des trois chambres afin de permettre une circulation de leurs gaz de remplissage. Ainsi, ces derniers se mélangent et deviennent commun aux trois compartiments. Cette amélioration présente plusieurs avantages majeurs :

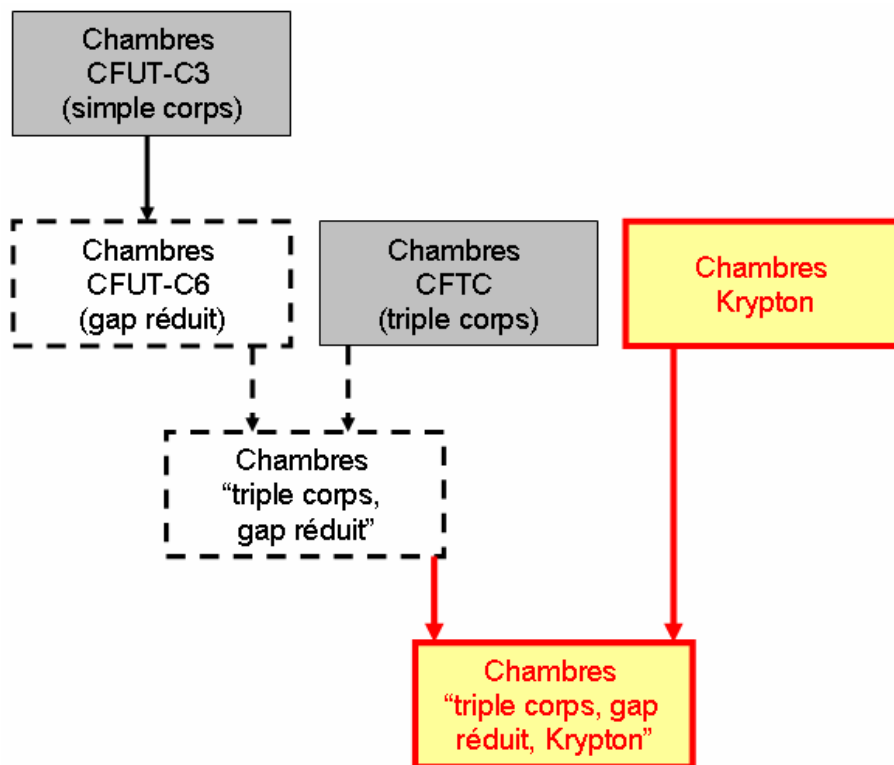
- toutes les chambres voient la même pollution : grâce à l'agitation thermique, les polluants diffusent en effet rapidement d'une chambre à une autre (cf. résultats (II.1.55) et (II.1.56)). En s'appuyant sur l'analyse des courants délivrés par les compartiments uranium et sans dépôt, il devient alors possible de s'affranchir des perturbations associées aux phénomènes de pollution. La méthode d'analyse dite « exponentielle » présentée au paragraphe III.3.B.c est ici pleinement mise à contribution.
- les polluants sont dilués dans un volume plus de trois fois supérieur à une chambre CFUT-C3 classique. Leur impact s'en trouve donc réduit.
- toutes les chambres sont à la même pression  $P$ . Cette amélioration peut paraître accessoire, mais nous avons établi au paragraphe II.2.A que le courant à la saturation variait avec  $P$  (cf. équations (II.2.6) ou (II.2.9)). Ainsi, un écart de pression entre les chambres uranium et sans dépôt entraînera par exemple une erreur systématique sur la compensation, et donc sur les mesures. Ce problème disparaît automatiquement dans une chambre triple corps.

La taille du passage utilisé pour la circulation du gaz est volontairement petite (1 mm de largeur sur 0,1 mm de profondeur) afin d'éviter tout phénomène de diaphonie entre les compartiments des détecteurs « triple corps ». Cette perturbation se caractérise en effet par

une interdépendance des courants délivrés par les chambres, qui rend leur exploitation impossible (cf. figure 93). Observé sur le premier prototype, ce défaut a été éliminé en redessinant la géométrie du passage. Les mesures effectuées par la suite se sont révélées concluantes et nous ont notamment permis de mesurer en une seule irradiation les sections efficaces de capture du  $^{238}\text{Pu}$  et de fission du  $^{238}\text{Np}$  dans un flux de neutrons purement thermique. Ces mesures ont été effectuées dans le cadre des projets MINI-INCA et MEGAPIE et les résultats obtenus seront par conséquent présentés au paragraphe VII.6.

Les schémas et détails techniques des chambres « triple corps » et « gap réduit » ne figureront pas dans ce rapport. Ils feront en effet l'objet d'un dépôt de brevet conjoint, qui concernera un détecteur « triple corps/gap réduit ». Comme son nom l'indique, ce nouveau détecteur rassemblera les avantages des deux concepts mentionnés précédemment. Les premiers prototypes sont en phase d'assemblage et seront testés à l'automne 2006.

Par ailleurs, nous envisageons de breveter une nouvelle classe de chambres à fission, baptisée « chambres krypton » (cf. figure 94). Ces détecteurs devraient repousser les limites de fonctionnement des chambres conventionnelles (augmentation des niveaux de flux accessibles, amélioration de la précision des mesures effectuées et réduction de la dégradation de la sensibilité en cours d'exploitation) en conservant le régime de saturation à très haut flux.



**Figure 94** : Développements technologiques à conduire sur les chambres à fission. Les rectangles bordés de traits fins caractérisent les étapes achevées, les carrés bordés de traits en pointillés les étapes en cours et les rectangles bordés de traits épais les étapes à accomplir.

## **PARTIE 2**

### **MISE EN APPLICATION DES CHAMBRES A FISSION AU RHF ET A MEGAPIE**

# CHAPITRE V

## Le projet MEGAPIE : contexte et objectifs

Dans la première partie, nous avons étudié le fonctionnement des chambres à fission en mode courant. Ces détecteurs à ionisation, particulièrement adaptés à l'enregistrement des flux de neutrons et de leurs variations, ont été mis en oeuvre au sein de la collaboration internationale MEGAPIE pour caractériser les performances neutroniques de la cible. Les démarches suivies et les résultats obtenus font l'objet des chapitres suivants. Ils s'inscrivent dans la double perspective de la loi Bataille sur les déchets nucléaires, et du développement des sources de neutrons intenses pour l'industrie, la médecine et la physique.

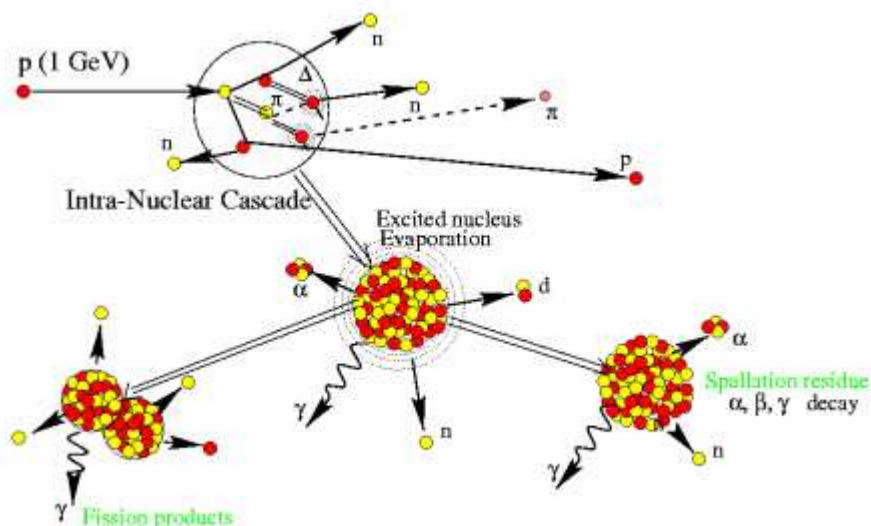
### V.1) Les sources intenses de neutrons et le hall SINQ

L'utilisation des neutrons connaît depuis plusieurs années un intérêt croissant. Qu'il s'agisse de l'exploration de la matière, de la production d'isotopes en médecine, de la conquête spatiale, de l'industrie informatique ou de l'énergie nucléaire, chacun de ces domaines requiert le développement et la construction de source de neutrons intenses. Malheureusement, les neutrons ne sont pas des particules stables par nature. En dehors des noyaux atomiques où le jeu des interactions nucléaires les stabilise, ils se désintègrent avec une demi-vie d'environ 10 minutes. Pour obtenir une source intense de neutrons, l'un des moyens les plus efficaces consiste donc à les extraire des noyaux. En effet, les émetteurs « naturels », comme le curium 244 ou le californium 252, mettent en jeu des flux qui sont aujourd'hui largement insuffisants pour les applications modernes. Pour obtenir des intensités élevées, les physiciens recourent donc principalement à deux types d'installations :

- les réacteurs nucléaires : les neutrons sont produits au cours de la fission d'éléments lourds, tels que l'uranium 235 ou le plutonium 239. La fission d'un noyau d'uranium 235 produit en moyenne 2,4 neutrons. Un neutron est utilisé pour maintenir la réaction en chaîne. Environ 0,4 sont capturés dans les éléments de structure. Il reste donc un neutron pour alimenter la source. Le spectre des neutrons produits varie d'un réacteur à un autre et peut être modifié par des modérateurs.  
Pour l'heure, les réacteurs nucléaires constituent l'essentiel des sources intenses de neutrons dans le monde. On citera notamment le Réacteur à Haut Flux (RHF) de l'Institut Laue Langevin (ILL) (cf. paragraphe VII.1), qui détient le record mondial en terme de flux thermique ( $1,5 \cdot 10^{15} \text{ n.cm}^{-2} \cdot \text{s}^{-1}$  à 10 cm du combustible). Cependant, cette technologie se rapproche de ses limites en raison des fortes densités calorifiques dégagées au niveau du cœur (190 MeV dissipé par neutron disponible pour la source, pour un combustible uranium).
- les cibles de spallation : dans cette technologie, des protons sont projetés à grande vitesse sur des noyaux métalliques lourds (Pb, W, Zr, U, Ta, Hg, etc.). Au cours de l'impact, ils arrachent quelques nucléons, avant de transmettre leur énergie à l'ensemble du volume nucléaire. Le noyau se débarrasse ensuite de cette énergie, en partie par évaporation de neutrons dits de spallation. L'énergie résiduelle est

finalement dégagée par désintégrations radioactives, voire par fission avec une probabilité plus faible (cf. figure 95).

L'utilisation des réactions de spallation est une voie prometteuse, car le dégagement énergétique par neutron produit (30 MeV environ) est notablement inférieur aux valeurs obtenues dans un réacteur nucléaire. De plus, les cibles de spallation s'inscrivent également dans la perspective des réacteurs hybrides, que nous avons décrits dans l'introduction générale de ce rapport.



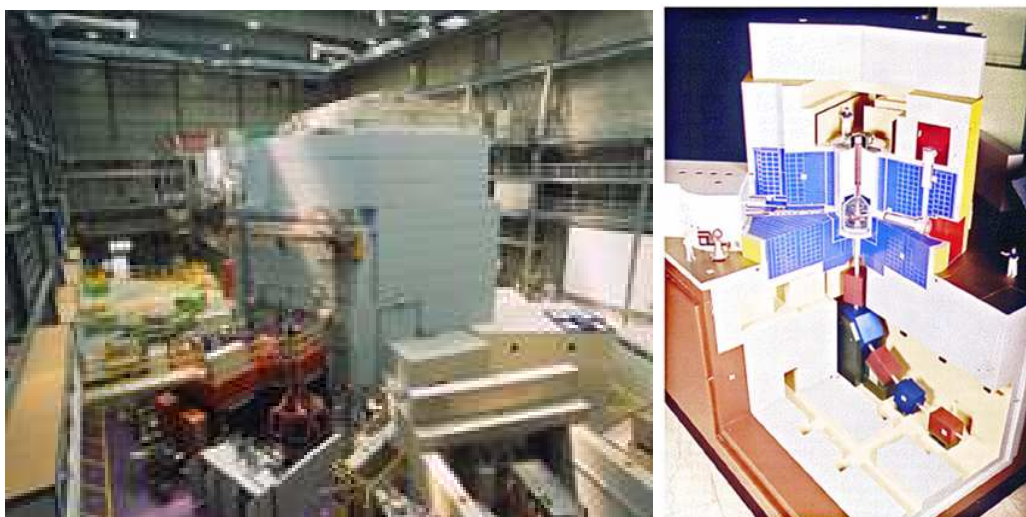
**Figure 95 :** Interaction d'un proton de haute énergie avec un noyau et processus de désexcitation.

L'Institut Paul Scherrer (PSI) (Villigen, en Suisse) dispose depuis une trentaine d'années d'un accélérateur de protons qui détient le record mondial de puissance. Les faisceaux qui en sont issus peuvent être utilisés directement pour l'étude des particules élémentaires, l'inspection des matériaux ou le traitement de tumeurs en protonthérapie. Ils peuvent aussi être dirigés sur la source de spallation SINQ, en service depuis 1996. Les neutrons générés par les réactions de spallation sont ensuite modérés dans un réservoir d'eau lourde, puis transportés dans des canaux d'extraction ou des guides de neutrons (pour les plus froids) en direction des instruments scientifiques.

## V.2) le projet MEGAPIE

Jusqu'en 2006, les cibles SINQ étaient exclusivement composées de plomb solide. Cette année toutefois, une collaboration internationale se propose de concevoir, fabriquer et tester la première cible de spallation liquide au plomb-bismuth fonctionnant à haute puissance. Ce projet, baptisé MEGAPIE (MEGAwatt Pilot Experiment), rassemble une dizaine de pays, dont les principaux contributeurs sont l'Allemagne, la France et la Suisse. La cible prototype a été installée au hall SINQ (cf. figures 96), auprès du cyclotron de l'Institut Paul Scherrer qui délivre un faisceau de protons de 590 MeV pour une intensité de 1,4 mA. Après un retard de deux ans, la mise en irradiation a finalement eu lieu en août 2006, pour une durée de fonctionnement réduite de 12 à 4 mois. Grâce à un ensemble de pompes électromagnétiques et de chaufferettes, les 80 litres de Pb-Bi s'écoulent à l'intérieur de la cible à des températures proches de 400°C en fonctionnement nominal.





**Figures 96a et 96b :** Vue d'ensemble du hall de la source SINQ (à gauche) et coupe de la source SINQ (à droite). Le faisceau de protons est introduit verticalement par le bas. La cible est entourée d'un réservoir modérateur et d'une enceinte en acier et béton qui forme un écran massif contre les neutrons rapides. Des canaux d'extraction ménagés dans le blindage et munis d'obturateurs amènent les neutrons thermiques aux stations expérimentales.

Mais sur quels critères s'est porté le choix du plomb-bismuth liquide ? Les cibles métalliques liquides présentent un avantage manifeste sur leurs homologues solides. Elles peuvent en effet recevoir plus de puissance de la part du faisceau et produire ainsi davantage de neutrons. Déjà liquides, elles ne risquent pas de fondre ou de se déformer lorsque la température augmente. Dès lors, quel métal faut-il choisir pour optimiser le nombre de neutrons produits ? Plus ce dernier est lourd, plus le ratio  $N/Z$  est grand et plus l'évaporation de neutrons est favorisée. On ne considère donc plus aujourd'hui que deux grandes familles possibles : le plomb et ses alliages, ou le mercure. L'efficacité de conversion de ces deux métaux étant globalement identiques (environ 20 neutrons produits pour un proton incident d'un GeV), le choix de la collaboration MEGAPIE s'est effectué sur d'autres critères. Le mercure a l'insigne avantage d'être liquide à température ambiante. Malheureusement, il est toxique, présente une section efficace de capture thermique élevée (389 barns) et une température d'ébullition basse (356°C). A l'inverse, le plomb allié au bismuth forme un eutectique qui fond dès 125°C et ne bout qu'à partir de 1670°C. De plus, ses sections efficaces de capture des neutrons thermiques et rapides sont très basses et ne valent respectivement que 0,11 et 0,0025 barns.

Opérer une cible de spallation liquide au plomb-bismuth offre donc un intérêt certain. Toutefois, une telle technologie n'a pour l'heure jamais été testée. En particulier, le pilotage de la température ne doit souffrir d'aucune erreur. Aucun point chaud (qui mettrait en défaut l'intégralité structurelle du dispositif) ou froid (qui constituerait une zone de solidification de l'eutectique) ne pourra être toléré. Par ailleurs, la production de polonium 210 à partir du bismuth constitue un problème sérieux de radioprotection. Enfin, la fenêtre de la cible de spallation, qui sépare l'eutectique liquide du vide dans lequel se propage les protons incidents, constitue le « talon d'Achille » de l'expérience. Cette pièce en acier T91 subira l'impact du faisceau et les cycles de température consécutifs à ses arrêts ; elle devra tenir tout au long de l'irradiation sans faille ni réparation possible sous peine de fuite de matière irradiée. Cette technologie prometteuse a donc un coût : pour la conception, la fabrication et l'exploitation de la cible, le budget total de la collaboration s'élève ainsi à 10 millions de francs suisses.

La cible MEGAPIE (cf. figure 97) a été dessinée par le laboratoire nantais SUBATECH et fabriquée par la société française ATEA. Transférée au PSI en juin 2005, elle a subi une batterie de tests jusqu'à l'obtention du permis d'irradiation le 14 août 2006. D'une longueur de 5 m, elle est majoritairement composée d'acier inox. Sur son axe de rotation, un tube creux de quelques centimètres de diamètre appelé « central rod » accueillera les détecteurs de neutrons que nous avons conçus. Le maintien de la température de l'eutectique au-delà du point de fusion est assuré par des chaufferettes implantées le long du central rod. Un jeu de pompes électromagnétiques assure la circulation du plomb-bismuth (cf. figure 98). La cible est suspendue par sa partie supérieure sur une dalle de blindage en acier et en béton. Elle est entourée d'un modérateur d'eau lourde ( $\varnothing$  2 m) et d'un réflecteur d'eau légère. Le faisceau de protons arrive verticalement par le bas, permettant l'insertion d'un maximum de canaux d'extraction et de guides de neutrons horizontaux.



Figure 97 : Photographie de la cible MEGAPIE.

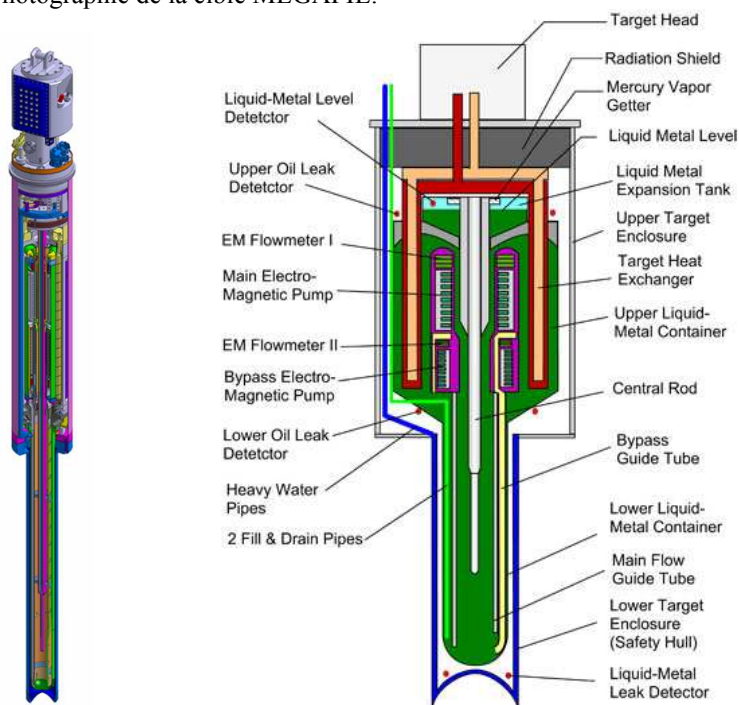


Figure 98 : Schéma et composition de la cible MEGAPIE.

Pour plus d'informations sur le hall SINQ, l'accélérateur du PSI ou le projet MEGAPIE, nous encourageons le lecteur à consulter les documents et sites Internet des références [34, 35, 36].

## CHAPITRE VI

### Conception et simulation du Détecteur de Neutrons pour MEGAPIE (DNM)

Au sein de la collaboration MEGAPIE, le DAPNIA a pour mission l'évaluation des performances neutroniques de la cible de spallation et la mesure de son potentiel en terme d'incinération des actinides mineurs. Dans ce cadre, nous avons développé un ensemble de détecteurs, baptisé DNM, et son système d'acquisition. Les objectifs du Détecteur de Neutrons pour MEGAPIE (DNM) sont ambitieux :

- effectuer la mesure absolue du flux de neutrons à 5 % près,
- suivre en ligne ses fluctuations avec une précision supérieure au pourcent,
- caractériser les composantes thermique et épithermique du flux,
- mesurer les potentiels d'incinération du neptunium 237 et de l'américium 241,

Le DNM fonctionnera pendant quatre mois sans intervention possible dans un environnement particulièrement hostile : flux neutroniques importants, milieu très ionisant, températures élevées et perturbations électromagnétiques. Sa conception s'est donc heurtée à de nombreux problèmes physiques et technologiques, dont la résolution a nécessité l'emploi d'outils de simulation. En particulier, des calculs complets de thermique, de neutronique et d'activation ont permis l'optimisation de nombreux composants. Par ailleurs, des expériences et des tests appropriés ont été effectués pour garantir un comportement correct des pièces les plus sensibles. Cette démarche [37] est décrite dans les paragraphes suivants.

#### VI.1) Présentation du DNM

L'ensemble détecteur a une longueur totale de 4,7 m et est inséré à l'intérieur même du central rod. En son point le plus bas, il s'approche à 31,1 cm seulement de la fenêtre. Le DNM est composé de trois tronçons cylindriques.

La première section (cf. plan 1 en annexe A) est constituée d'un tube en acier inox<sup>9</sup> de 49,5 cm de long, pour un diamètre intérieur de 11 mm et un diamètre extérieur de 12 mm. Elle contient 8 micro chambres à fission de type CFUT-C3, dont le fonctionnement est décrit dans la première partie de ce rapport. Les chambres sont vissées deux par deux sur des supports métalliques insérés à des distances croissantes par rapport à la fenêtre. Leurs caractéristiques et leurs numéros sont portés au tableau 10 et sont illustrés figure 99.

Les chambres 1 et 2 sont placées à 331 mm de la fenêtre (distance entre la fenêtre MEGAPIE et leurs extrémités basses) et sont entourées d'un étui de 200  $\mu$ m d'épaisseur en gadolinium

---

<sup>9</sup> Acier inox de type X 2 Cr Ni 18-9 (304L en norme américaine). Composition standard : 17,5 à 19,5 % de chrome, 8 à 10 % de nickel,  $\leq 0,03$  % de carbone,  $\leq 1$  % de silicium,  $\leq 2$  % de manganèse,  $\leq 0,45$  % de phosphore,  $\leq 0,015$  % de soufre,  $\leq 0,11$  % d'azote, fer : le reste.

pur à 99,9 %. Les isotopes 155 et 157 du gadolinium présentant des sections efficaces de capture des neutrons thermiques exceptionnellement élevées ( $6,1 \cdot 10^4$  barns et  $2,5 \cdot 10^5$  barns respectivement), cet étui supprime intégralement la composante thermique du flux neutronique entre ses parois. Par conséquent, les chambres 1 et 2 assureront exclusivement le suivi de la composante épithermique. Les chambres à fission ont été développées en collaboration avec le Service de Physique Expérimentale (DEN/DER/SPEX, CEA Cadarache) pour résister à des fluences neutroniques élevées et à des températures allant jusqu'à  $600^\circ\text{C}$ . Elles ont été testées et calibrées auprès du Réacteur à Haut Flux de l'Institut Laue-Langevin à Grenoble pendant 3 ans, de 2003 à 2006 (cf. chapitre VII).

n°	Nature du dépôt	Gaz et pression	Distance du bas de la chambre à la fenêtre [mm]	Distance du milieu de l'anode à la fenêtre [mm]
1	sans dépôt	Argon à 1 bar	331	370
2	$^{235}\text{U}$	Argon à 1 bar	331	370
3	$^{235}\text{U}$	Argon à 1 bar	464,9	503,9
4	sans dépôt	Argon à 1 bar	464,9	503,9
5	$^{241}\text{Am}$	Argon à 1 bar	564,5	603,5
6	$^{237}\text{Np}$	Argon à 1 bar	564,5	603,5
7	sans dépôt	Argon à 1 bar	695,6	734,6
8	$^{235}\text{U}$	Argon à 1 bar	695,6	734,6

Tableau 10 : Nomenclature et caractéristiques des chambres à fission MEGAPIE.

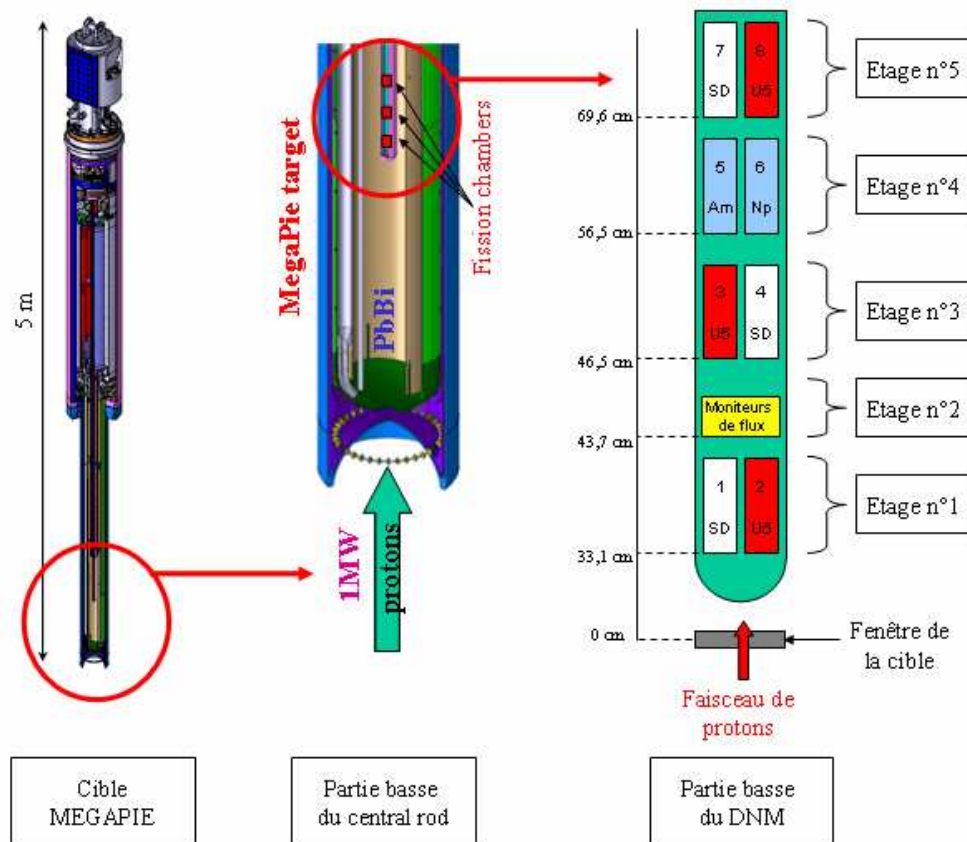


Figure 99 : Répartition des chambres à fission dans le premier tronçon du DNM. SD = chambre sans dépôt, U5 = chambre avec un dépôt d'uranium 235, Am = chambre avec un dépôt d'américium 241, et Np = chambre avec un dépôt de neptunium 237.

Entre les étages 1 et 2 du DNM (cf. figure 99), nous avons inséré à la côte 437 mm une boîte cylindrique de 1,4 cm de long pour un diamètre extérieur de 6,5 mm (cf. plan 1 en annexe A). Cette boîte accueille 9 moniteurs de flux sous formes de pastilles ou de poudre. Ces moniteurs sont constitués de métaux ultra purs. Ils sont destinés à effectuer une mesure intégrale des composantes thermiques et épithermiques du flux grâce à des réactions de capture ou à seuil (cf. paragraphe VI.5). Les caractéristiques des moniteurs sont indiquées dans le tableau 11.

Moniteurs	Diamètre [mm]	Epaisseur [ $\mu\text{m}$ ]	Masse [mg]
Al-0,1%Co	5	100	5,576
Fe	6	50	9,889
Gd	6	200	39,733
Mn	poudre	poudre	20,4138
Nb	6	250	59,083
Ni	6	50	11,565
Rh	6	25	8,236
Ti	6	125	14,700
Y	6	150	15,776

**Tableau 11** : Nomenclature des moniteurs de flux.

Le premier tronçon comporte également trois thermocouples de type K, implantés à 37,1 cm, 55,3 cm, et 73,56 cm de la fenêtre. Les thermocouples sont constitués d'un assemblage de deux métaux différents et génèrent une tension fonction de la température ambiante. Les thermocouples K sont constitués d'un assemblage chromel (alliage de chrome et de nickel) et alumel (alliage d'aluminium et de nickel). Leur plage d'utilisation s'étend de  $-200^{\circ}\text{C}$  à  $1200^{\circ}\text{C}$  environ. Nous les emploierons pour assurer le suivi des fluctuations de la température à l'intérieur du DNM, afin de soustraire le bruit thermique du signal. Par ailleurs, un espace de 6 mm entre le bas du détecteur et l'intérieur du central rod est volontairement prévu pour absorber les dilatations thermiques résultant de températures pouvant aller jusqu'à  $600^{\circ}\text{C}$ .

Le deuxième tronçon du DNM est constitué d'un tube inox de diamètre extérieur 12,7 mm pour une longueur totale de 3,2 m (cf. plan 2 en annexe A). Sa structure intègre un blindage radiatif qui s'étend sur 2,7 m. Le blindage est composé de pièces cylindriques en acier inox, pleines et tournées de  $22,5^{\circ}$  l'une par rapport aux autres. Il prévient toute fuite de neutrons en tête de cible, en arrêtant les particules qui remonteraient verticalement le long du DNM. La rotation de  $22,5^{\circ}$  élimine les jours laissés par les rainures ménagées pour assurer le passage des câbles des chambres et des thermocouples. Tout autour du blindage, une tresse en silice assure l'isolation électrique entre la structure interne du tronçon et la paroi du central rod.

Enfin, le troisième tronçon est composé d'un tube cylindrique en acier, de diamètre intérieur 2 cm, de diamètre extérieur 2,2 cm, pour une longueur totale de 100,6 cm. Il renferme un boîtier électrique qui permet d'effectuer le passage des câbles coaxiaux minéraux aux câbles coaxiaux organiques. Les câbles coaxiaux minéraux véhiculent le courant délivré par les chambres à fission. Résistant à l'irradiation, ils sont toutefois vulnérables à la torsion et doivent être manipulés avec soin. Afin d'éviter tout mouvement incontrôlé et toute dégradation dans l'embroglio de câbles et de connecteurs qui peuplent la tête de cible<sup>10</sup>, nous avons choisi de les remplacer sur les derniers centimètres par des câbles organiques, plus souples. L'extrémité haute du troisième tronçon est équipée d'un système de fixation à

<sup>10</sup> La cible MEGAPIE est équipée de 90 thermocouples, soit autant de câbles en tête de cible.

ressorts qui encaisse les dilatations thermiques résultant des fluctuations de température. Les ressorts garantissent également la qualité du contact de masse effectué par les ailettes du premier tronçon en plaquant la structure du DNM à l'intérieur du central rod.

Hormis les vis des chambres à fission<sup>11</sup>, toutes les liaisons entre les composants du détecteur sont assurées par des microsoudures laser effectuées par la société Kayme. Les chambres à fission ont été assemblées par la société PHOTONIS.

## VI.2) Champ de température et évacuation de la chaleur dans le DNM

Le Détecteur de Neutrons a été conçu pour fonctionner à des températures allant jusqu'à 600°C. Au delà, le comportement de ses organes, et en particulier celui des chambres à fission, n'est plus garanti. Ainsi, certains composants peuvent fondre ou se dilater excessivement. Pour minimiser les risques encourus par le dispositif, un calcul précis du champ de température à l'intérieur du DNM en fonction de la température du plomb-bismuth liquide était indispensable.

Ces calculs ont été effectués à l'aide du code CASTEM. Nous avons modélisé l'ensemble des parties basses du central rod et du détecteur, qui sont les zones les plus proches de la fenêtre, donc les plus chaudes. Le dépôt de puissance à l'intérieur du DNM est essentiellement dû aux rayons gamma (cf. tableau 12) et a été évalué en utilisant les codes GEANT et MCNPX. La puissance déposée dans la partie basse atteint 560 W, dont 30 W pour les chambres à fission.

Etage	Flux gamma [ $\gamma\text{cm}^{-2}\cdot\text{s}^{-1}$ ] (BD)	Flux gamma [ $\gamma\text{cm}^{-2}\cdot\text{s}^{-1}$ ] (IA)
1	$1,82 \cdot 10^{13}$	$1,67 \cdot 10^{13}$
2	$1,33 \cdot 10^{13}$	$1,24 \cdot 10^{13}$
3	$1,04 \cdot 10^{13}$	$9,86 \cdot 10^{12}$
4	$6,69 \cdot 10^{12}$	$5,89 \cdot 10^{12}$
5	$3,64 \cdot 10^{12}$	$3,21 \cdot 10^{12}$

**Tableau 12** : Flux de rayons gamma calculés à l'intérieur du central rod avec MCNPX, pour deux modèles de spallation différents : BD = Bertini/Dresner, IA = INCL4/ABLA [38].

Les simulations incorporent les échanges de chaleur :

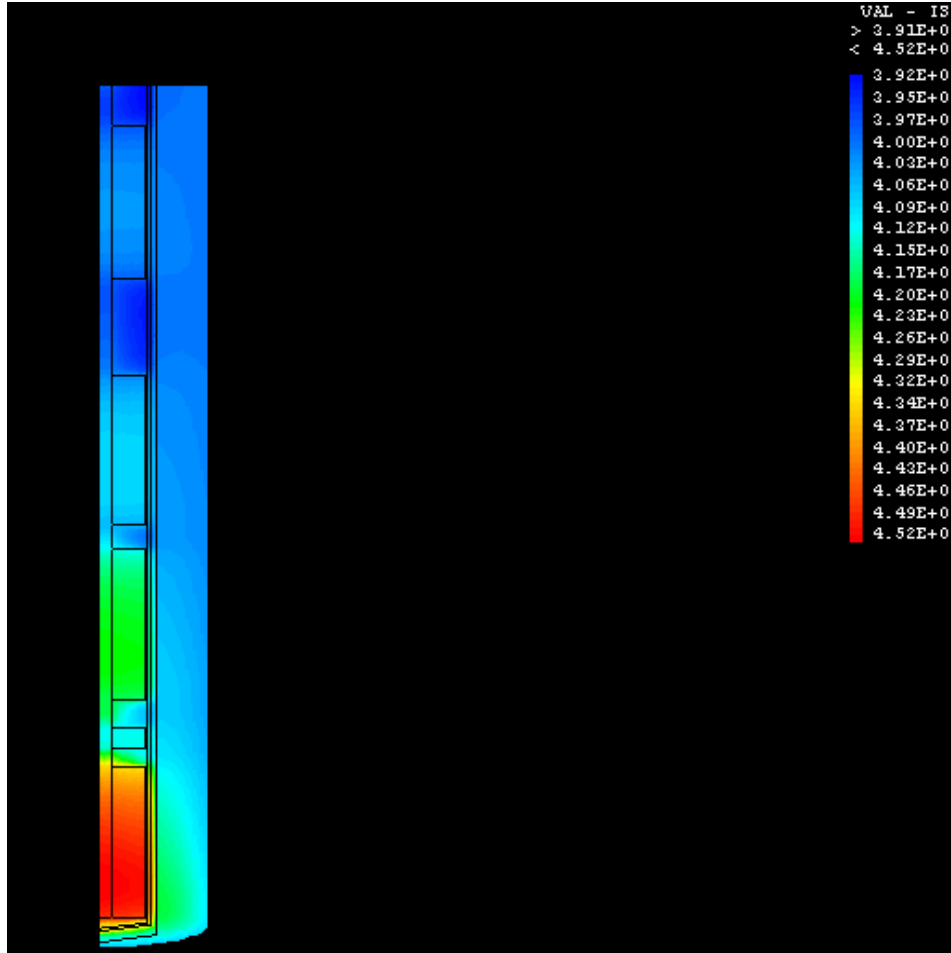
- par rayonnement entre les différentes pièces,
- par conduction dans l'hélium à 0,5 bar qui circule dans le central rod et le DNM,
- par conduction dans la structure métallique,
- par convection. Le plomb-bismuth s'écoule en effet autour du central rod et contribue à évacuer la chaleur déposée par le rayonnement gamma. Le coefficient d'échange convectif  $h$  entre l'acier et l'eutectique Pb-Bi étant peu connu, nous avons réalisé plusieurs calculs pour des valeurs<sup>12</sup> comprises entre 1000 et 10000  $\text{W}\cdot\text{m}^{-2}\cdot\text{s}^{-1}$ .

<sup>11</sup> Effectuer une soudure sur le corps d'une chambre à fission constitue une opération délicate, qui présente par ailleurs le risque d'une dégradation irréparable.

<sup>12</sup> Ordres de grandeur du coefficient d'échange  $h$ . Air en convection naturelle :  $h = 5$  à  $10 \text{ W}\cdot\text{m}^{-2}\cdot\text{K}^{-1}$ , air en convection forcé :  $h = 50$  à  $100 \text{ W}\cdot\text{m}^{-2}\cdot\text{K}^{-1}$ , eau en convection naturelle :  $h = 500$  à  $1000 \text{ W}\cdot\text{m}^{-2}\cdot\text{K}^{-1}$ , eau en convection forcé :  $h = 1000$  à  $5000 \text{ W}\cdot\text{m}^{-2}\cdot\text{K}^{-1}$ .

Par ailleurs, les variations de la capacité calorifique et de la conductivité des pièces avec la température sont prises en compte.

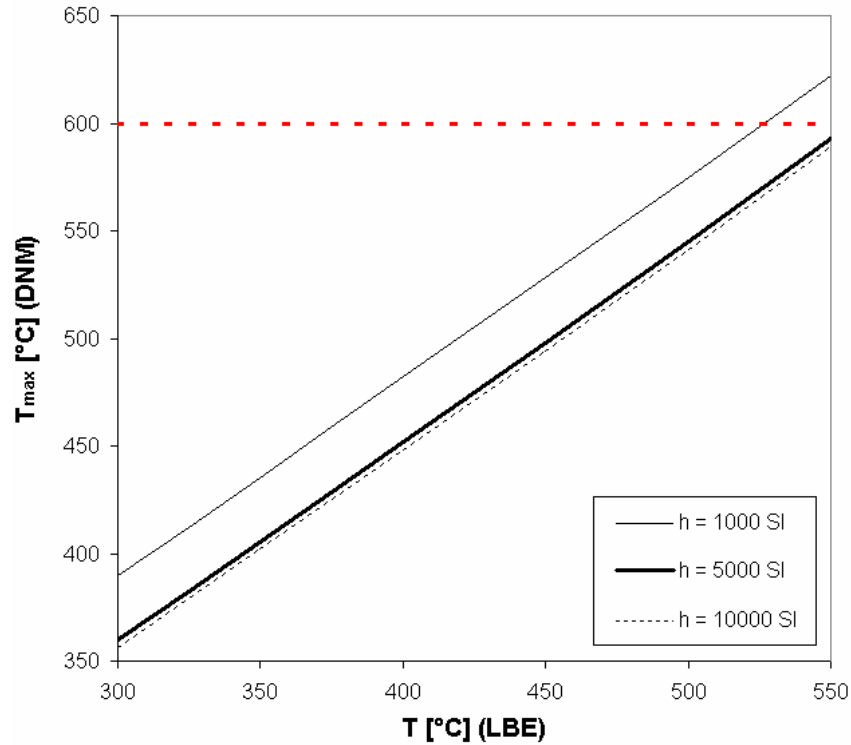
La figure 100 présente un exemple de champ de température obtenu pour un coefficient d'échange valant  $5000 \text{ W.m}^{-2}.\text{s}^{-1}$  et une température du plomb-bismuth égale à  $400^\circ\text{C}$ .



**Figure 100** : Exemple de champ de température obtenu avec CASTEM ( $T = 400^\circ\text{C}$ ,  $h = 5000 \text{ W.m}^{-2}.\text{K}^{-1}$ , intensité faisceau à 1,4 mA). NB : la figure n'est pas à l'échelle. Pour plus de visibilité, les largeurs ont été dilatées.

On constate que la chaleur est principalement évacuée par conduction radiale dans l'hélium et par conduction verticale le long des structures métalliques. La température maximale  $T_{max}$  du DNM est atteinte dans la partie basse des chambres à fission de l'étage n°1 (cf. figures 99 et 100). Son évolution avec la température de l'eutectique  $T$  est portée figure 101 pour plusieurs coefficients  $h$ . Les résultats des simulations indiquent que  $T$  ne doit en aucun cas dépasser  $500^\circ\text{C}$  sous peine de voir la température  $T_{max}$  s'approcher de la limite de fonctionnement à  $600^\circ\text{C}$ .

Enfin, les calculs prédisent une inertie temporelle conséquente du central rod et du DNM par rapport aux fluctuations de température qui se produiront dans le plomb-bismuth à chaque arrêt faisceau.



**Figure 101** : Evolution de la température maximale  $T_{max}$  du DNM avec la température  $T$  du plomb-bismuth (intensité faisceau à 1,4 mA).

### VI.3) Choix des câbles et des connecteurs, résolution des problèmes de sûreté

En tête de cible, les câbles coaxiaux organiques sont soudés sur des connecteurs triaxiaux, emboîtés sur des traversées de cloison spécifiques. Les courants émis par les chambres à fission sont ensuite véhiculés jusqu'à l'électronique d'acquisition sur 15 m par des câbles triaxiaux. Ces câbles spécifiques sont blindés électromagnétiquement, ce qui évite la création de courants induits parasites (effet d'antenne). Ce choix de connectique, nécessaire pour garantir la qualité des signaux mesurés, se doit toutefois de satisfaire à un ensemble de règles de sécurité.

En cas de rupture du système de refroidissement des pompes électromagnétiques tout d'abord, de l'eau à haute pression et à 100°C est susceptible d'inonder la cible. Pour éviter toute fuite en tête de cible, les connecteurs doivent résister à des pressions de vapeur d'eau allant jusqu'à 15 bars. Des tests conduits au CEA\SIS ont permis de valider leur étanchéité à des pressions d'hélium (et donc a fortiori d'eau) allant jusqu'à 25 bars [39].

D'autre part, la gaine des câbles triaxiaux est constituée de polychlorure de vinyle. En présence de radiations élevées, ce matériau se décompose et libère des produits halogénés. Ces substances peuvent ensuite réagir avec l'humidité de l'air pour former de l'acide chlorhydrique. La dose maximale admissible pour un câble triaxial est comprise entre  $10^6$  et  $10^7$  Gray. Les calculs effectués au PSI indiquent que le niveau de radiations atteindra  $10^5$  Gray en tête de cible, soit un ordre de grandeur en dessous de la limite autorisée.



Enfin, les tensions appliquées aux bornes des connecteurs peuvent atteindre 250 à 300 V pendant l'enregistrement des courbes de calibration des chambres à fission. Par conséquent, la pression  $P$  d'hélium à l'intérieur du central rod doit être ajustée pour éviter toute formation d'étincelles entre les soudures de l'anode et de la cathode des câbles coaxiaux sur le connecteur triaxial<sup>13</sup>. En effet, la création d'un arc électrique peut, d'une part endommager le connecteur, et de l'autre induire la circulation de courants dans la masse, ce qui risquerait d'endommager les systèmes électroniques de la collaboration MEGAPIE. La distance  $d$  entre les soudures vaut 1,35 mm environ (soit un produit  $P \times d$  de 675 mbar.mm). En utilisant les courbes de Paschen<sup>14</sup> mesurées pour l'hélium (cf. figure 102), on constate qu'il n'y a aucun risque pour des tensions allant jusqu'à 400 V.

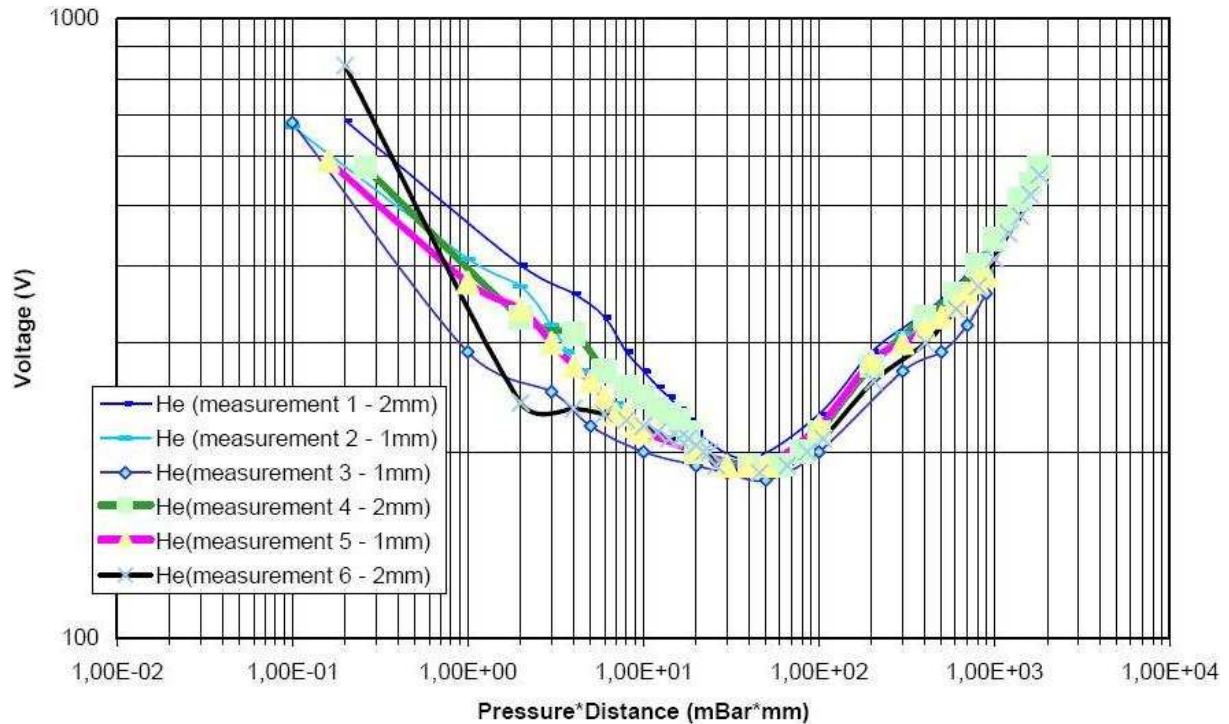


Figure 102 : Courbes de Paschen pour l'hélium.

#### VI.4) Caractéristiques des micro-chambres à fission

Au cours du chapitre II, nous avons mentionné l'impact négatif qu'ont les hauts taux de fission sur la forme des courbes de calibration. Les déformations importantes qui en résultent perturbent notablement l'exploitation des chambres. En particulier, la disparition progressive du régime de saturation quand  $\tau_f$  devient supérieur à  $10^9$  f.s<sup>-1</sup> complique outrageusement le

<sup>13</sup> Les tensions générées par les thermocouples ne dépassant pas la dizaine de Volts et ne présentent donc aucun risque.

<sup>14</sup> A basse pression, le nombre d'atomes de gaz présents entre les deux électrodes est trop faible pour permettre le déclenchement d'un arc. A haute pression, la densité atomique élevée limite le libre parcours moyen des particules ionisantes, qui devient alors insuffisant pour propager une avalanche. Entre les deux se situe un optimum de risque pour la création d'un arc qui correspond au minimum de la courbe de Paschen. Pour une pression donnée, la plage en tension à éviter coïncide donc avec la zone située au-dessus de la courbe de Paschen.

travail d'analyse (cf. paragraphe VII.5). Dans l'optique du projet MEGAPIE, il était donc crucial de s'affranchir de ces difficultés.

A l'époque, nous ne disposions pas encore de la technologie des chambres à gap réduit. Nous n'avions donc qu'une solution accessible : réduire au maximum la masse des dépôts des chambres MEGAPIE pour que leur taux de fission ne dépasse pas  $10^9$  f.s<sup>-1</sup> tout au long de l'irradiation. Pour effectuer ce travail d'optimisation, des simulations de neutronique se sont révélées nécessaires.

#### VI.4.A) Simulations MCNPX de la cible MEGAPIE

Les calculs des spectres et des flux de neutrons, de protons et de rayons gamma (cf. tableau 12) ont été effectués [38] à l'aide du code Monte Carlo MCNPX. L'intégralité du central rod a été modélisée. Les principaux résultats sont portés sur la figure 103 et dans les tableaux 13 et 14.

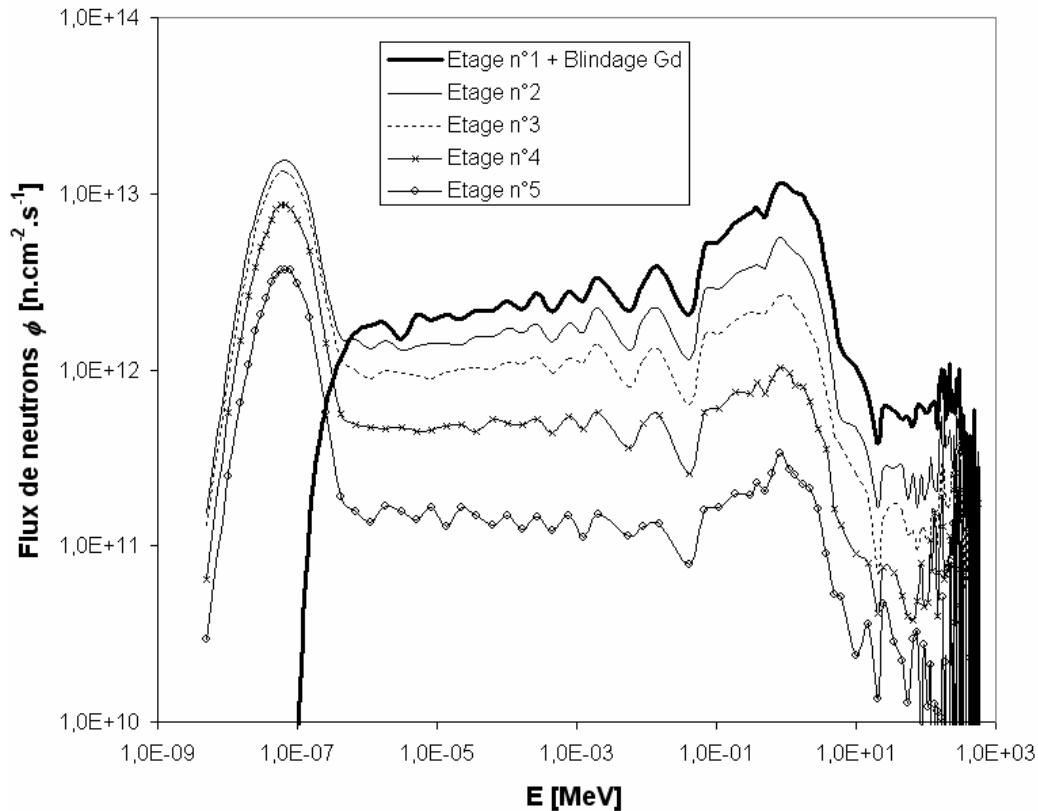


Figure 103 : Spectre du flux neutronique simulé avec MCNPX (modèle Bertini/Dresner) [38].

On notera l'efficacité du blindage au gadolinium, qui supprime intégralement la composante thermique du flux pour les chambres 1 et 2 de l'étage n°1. Par ailleurs, nous avons comparé les flux neutroniques obtenus avec deux modèles de spallation différents : Bertini/Dresner et INCL4/ABLA. Les différences obtenues sur le spectre sont faibles (inférieures à 5 % maximum). Ce constat n'est pas le premier de ce type, il a déjà été établi sur d'autres cibles de spallation, notamment à SATURNE [40]. En revanche, on constate que les niveaux de flux calculés avec Bertini/Dresner sont, quel que soit l'étage concerné, supérieurs de 10 % aux valeurs obtenues avec INCL4/ABLA.

Étage	Flux neutronique [n.cm <sup>-2</sup> .s <sup>-1</sup> ] (BD)	Pourcentage de neutrons ayant une énergie inférieure à 1 eV	Flux neutronique [n.cm <sup>-2</sup> .s <sup>-1</sup> ] (IA)
1 + blindage Gd	5,57 10 <sup>13</sup>	3,76	5,09 10 <sup>13</sup>
2	6,06 10 <sup>13</sup>	48,05	5,66 10 <sup>13</sup>
3	4,34 10 <sup>13</sup>	57,16	3,98 10 <sup>13</sup>
4	2,44 10 <sup>13</sup>	66,45	2,22 10 <sup>13</sup>
5	9,58 10 <sup>12</sup>	74,3	8,7 10 <sup>12</sup>

**Tableau 13 :** Valeurs des flux neutroniques et des composantes thermiques à l'intérieur du DNM (calculs MCNPX, BD = Bertini/Dresner, IA = INCL4/ABLA, intensité faisceau = 1,4 mA) [38].

Élément	$\sigma_f$ [barn] (BD)	$\sigma_f$ [barn] (IA)
<sup>235</sup> U (étage n°1)	11,53	12,15
<sup>235</sup> U (étage n°3)	262,91	264,5
<sup>235</sup> U (étage n°5)	351,46	360,51
<sup>237</sup> Np (étage n°4)	0,13	0,11
<sup>241</sup> Am (étage n°4)	2,08	2,08

**Tableau 14 :** Valeurs des sections efficaces moyennes (pondérées par le flux) de fission  $\sigma_f$  de l'uranium 235, du neptunium 237 et de l'américium 241 en fonction de la position dans le DNM (calculs MCNPX, BD = Bertini/Dresner, IA = INCL4/ABLA) [38].

En utilisant les résultats présentés aux tableaux 13 et 14, nous avons pu calculer les masses de dépôt à ne pas dépasser<sup>15</sup> pour satisfaire à la condition  $\tau_f \leq 10^9$  f.s<sup>-1</sup> :

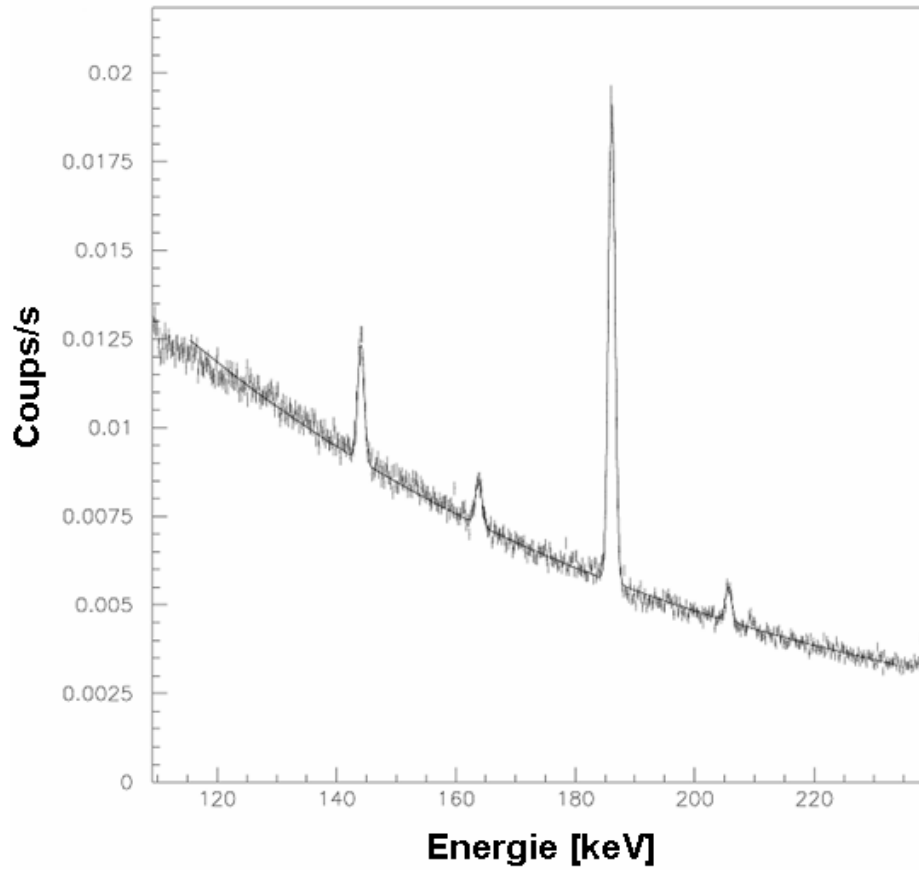
- 200 µg pour la chambre d'uranium 235 blindée au gadolinium placée à l'étage n°1,
- 35 µg pour la chambre d'uranium 235 à l'étage n°3,
- 200 µg pour les chambres d'américium 241 et de neptunium 237 placées à l'étage n°4,
- 120 µg pour la chambre d'uranium 235 à l'étage n°5.

A partir des estimations des flux gamma dans le central rod, nous avons également vérifié que l'utilisation de ces masses n'entraîne pas une réduction excessive du rapport signal sur bruit (cf. paragraphe VII.4).

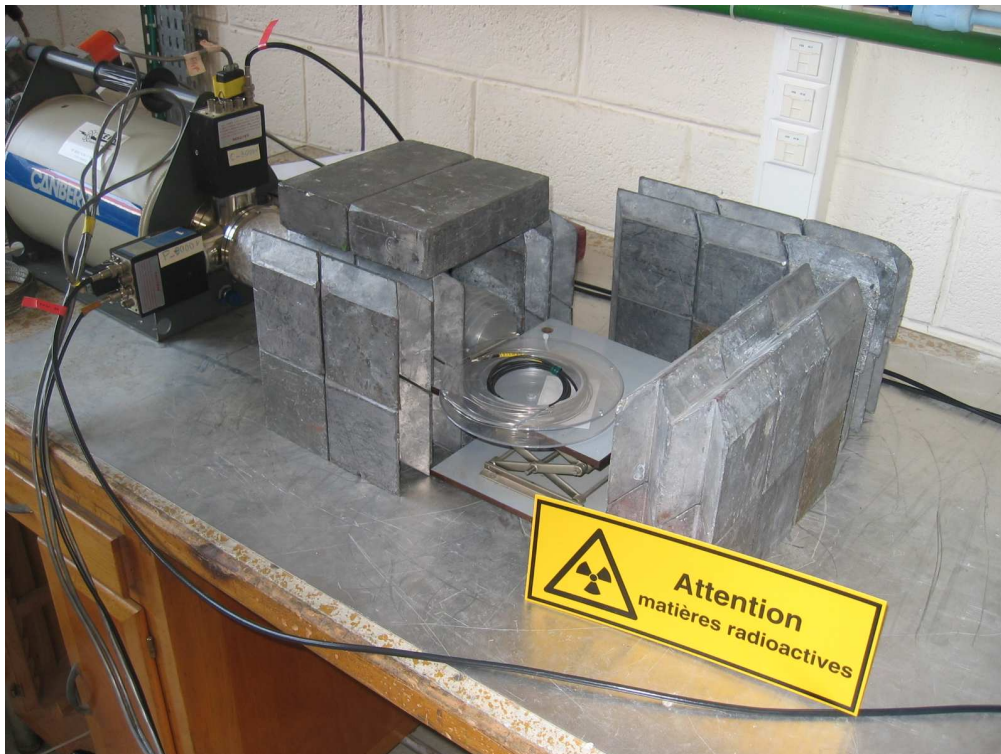
#### VI.4.B) Mesure des masses des dépôts d'uranium par spectrométrie gamma

Les masses des dépôts des chambres à fission sont fournies par leur fabricant (CEA Cadarache/DEN/DER/SPEX), avant d'être confirmées par spectroscopie de masse au DEN/DPC/SECR (CEA Saclay). Cependant, comme l'illustre l'équation (III.3.10), une incertitude sur la masse d'uranium déposée, quelle qu'elle soit, s'accompagne automatiquement d'une erreur identique sur le flux neutronique mesuré. Par précaution, nous avons donc effectué un étalonnage précis des masses concernées par spectroscopie gamma. Les dépôts correspondants sont composés à 98,5 % d'uranium 235. Or, l'uranium 235 a une demi-vie de 7,04 10<sup>8</sup> ans et décroît par radioactivité alpha sur le thorium 231. Ainsi, les raies d'intérêt pour notre étude étaient les raies à 143,764 keV, 163,358 keV, 185,712 keV et 205,309 keV émises par le thorium 231 au cours de sa désexcitation (cf. figure 104).

<sup>15</sup> Au-delà d'une masse de 200 µg, les dépôts fissiles sont susceptibles d'être arrachés par sputtering durant l'émission des produits de fission. Les valeurs présentées tiennent compte de cette limitation.



**Figure 104 :** Exemple de spectre  $\gamma$  obtenu. Les quatre raies du thorium 231 ont été ajustées par des gaussiennes (absence de temps mort) sur un fond exponentiel.



**Figure 105 :** Dispositif d'étalonnage des masses des dépôts d'uranium 235.

Le dispositif expérimental comprenait un détecteur germanium et un petit dispositif de centrage des chambres à fission testées (cf. figure 105). Les masses totales obtenues pour les chambres MEGAPIE sont portées au tableau 15. Les erreurs sont inférieures à 1,3 % et proviennent essentiellement des incertitudes sur le repositionnement des chambres vis à vis du détecteur (< 6 %) et des erreurs statistiques de comptage.

Numéro et étage de la chambre	Masse d'uranium 235 [ $\mu\text{g}$ ]	Courant attendu à MEGAPIE en début d'irradiation [ $\mu\text{A}$ ]	Taux de fission attendu en début d'irradiation [ $\text{f.s}^{-1}$ ]	Taux de combustion sur 4 mois d'irradiation [%]
2 (étage n°1)	$134,8 \pm 0,87$	6,81	$2,22 \cdot 10^8$	0,8
3 (étage n°3)	$38,99 \pm 0,25$	34,97	$1,14 \cdot 10^9$	13,23
8 (étage n°5)	$138,69 \pm 0,9$	36,71	$1,19 \cdot 10^9$	4,1

**Tableau 15 :** Masses des dépôts des chambres uranium du DNM. Courants, taux de fission et taux de combustion attendus à MEGAPIE pour une intensité faisceau égale à 1,4 mA (modèle Bertini/Dresner).

Compte tenu des niveaux de flux calculés (cf. paragraphe VI.4.A), le taux de combustion des dépôts d'uranium 235 ne dépassera pas 15 % en 4 mois d'irradiation continue. Par conséquent, l'obtention du flux moyen par ajustement de l'évolution du courant au cours du temps avec une exponentielle (cf. paragraphes III.3.B.c et VII.5) sera difficile, voire impossible, aux étages n°1 et n°5. La calibration des chambres avant irradiation s'est donc révélée nécessaire et a été effectuée auprès du Réacteur à Haut Flux de l'ILL (cf. chapitre VII).

#### VI.4.C) Etudes MEB de la tenue des dépôts à haute température

A l'intérieur du DNM, les chambres à fission fonctionneront à des températures proches de 400°C (cf. paragraphe VI.2). A de tels niveaux de chaleur se pose naturellement la question de la tenue des dépôts. Un effritement suivi d'une perte de masse induirait en effet une perturbation irréversible du fonctionnement des chambres.

L'étude de l'endommagement des dépôts d'uranium à haute température a été conduite au Laboratoire LCU du CEA Cadarache [29]. Des clichés pris au microscope électronique à balayage ont mis en évidence :

- une pollution légère des dépôts par des cristaux de platine<sup>16</sup> et des filaments de magnésium<sup>17</sup> (cf. figures 106 et 107), sans impact sur la réponse des détecteurs,
- une évolution progressive  $\text{UO}_3 \rightarrow \text{U}_3\text{O}_8$  de la formule chimique de l'oxyde d'uranium qui constitue le dépôt (cf. paragraphe III.2.B et figures 55),
- l'absence d'effritement à des températures allant jusqu'à 600°C.

En conséquence, les composants et les dépôts des chambres ont été soigneusement étuvés avant montage, sous vide et à 600°C pendant une dizaine d'heures pour éviter tout dégazage en cours d'irradiation.

<sup>16</sup> Ces cristaux sont issus des électrodes en platine utilisées pour effectuer le dépôt électrolytique des solutions d'uranium sur les anodes des chambres à fission.

<sup>17</sup> Ces filaments proviennent des caches en Teflon qui protègent les extrémités des anodes durant le dépôt électrolytique.

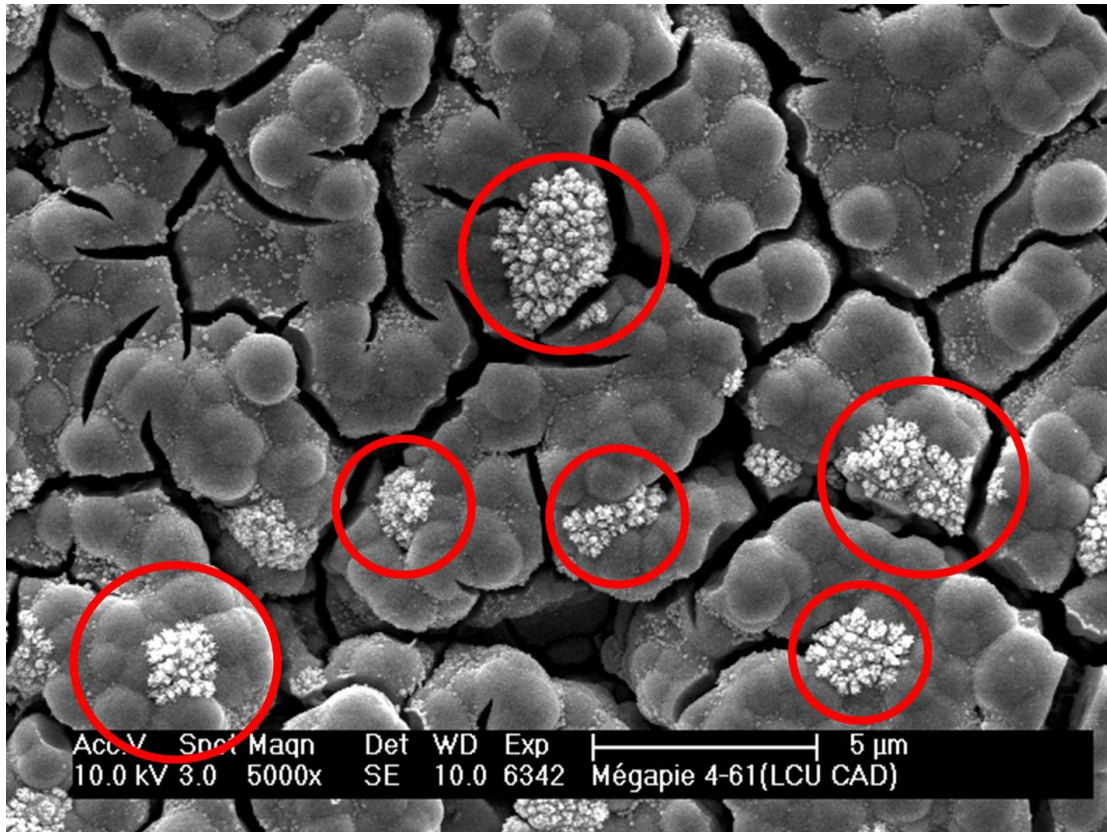


Figure 106 : Cristaux de platine en surface des dépôts d'uranium [29].

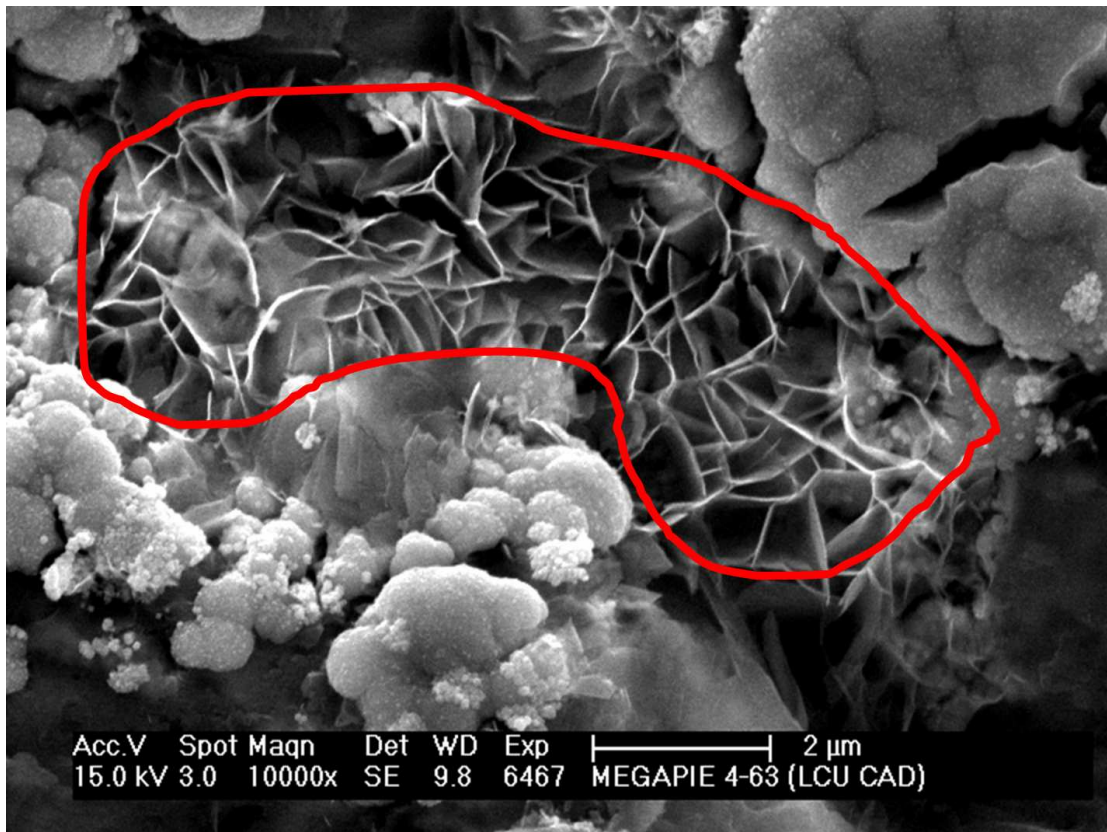


Figure 107 : Filaments de magnésium en surface des dépôts d'uranium [29].

## VI.5) Choix des moniteurs de flux

Les moniteurs de flux effectueront une mesure absolue de la fluence neutronique pour chaque composante : thermique, épithermique et rapide (cf. paragraphe VI.1). Ils seront analysés au bout d'un an de refroidissement environ par spectrométrie gamma. Les valeurs obtenues serviront, le cas échéant, de renormalisation pour les données issues des chambres à fission. Les 9 pastilles ont été choisies pour :

- leurs températures de fusion  $T_f$ , qui doivent impérativement être supérieures à 600°C. En ce qui concerne le moniteur Al-Co,  $T_f$  vaut 660°C et est trop proche de la valeur limite. Nous avons donc choisi de le sceller dans une capsule étanche en titane (cf. plan 1 en annexe A).
- leurs sensibilités à des plages différentes de spectre neutronique (thermique, épithermique, rapide). Les réactions d'intérêt sont pour la plupart des réactions de capture ou des réactions à seuil (np, nn', n2n, etc.). Elles sont répertoriées dans le tableau 16.
- leur composition chimique. A l'aide du logiciel d'évolution CINDER, nous avons simulé les spectres gamma qui seront mesurés, puis nous avons sélectionné les recettes métalliques dont les teneurs en impuretés sont suffisamment faibles pour que les raies d'intérêt ressortent nettement. Les recettes jugées défavorables ont été écartées : pastilles de palladium contenant trop d'argent, pastilles de rhodium d'épaisseurs supérieures à 25  $\mu\text{m}$  contenant trop d'iridium, pastilles de niobium d'épaisseurs inférieures à 250  $\mu\text{m}$  contenant trop de tantale, etc.. Les compositions et les caractéristiques précises de chaque moniteur figurent dans le tableau 17. Le manganèse, disponible uniquement sous forme de poudre, a été scellé dans une capsule de titane similaire à celle employée pour la pastille Al-Co, afin d'éviter toute dispersion de matière radioactive. Les activités des moniteurs sélectionnés sont récapitulées dans le tableau 18. Leurs évolutions au cours du temps sont présentées en annexe B.

Moniteurs	$T_f$ [°C]	Réactions d'intérêt	Demi-vie [jours]	Raies gamma [keV]	Energie seuil de la réaction [MeV]
Al-0,1%Co	660	$^{59}\text{Co}(n,\gamma)^{60}\text{Co}$	1925,6	1173 & 1332	X
Fe	1535	$^{54}\text{Fe}(n,p)^{54}\text{Mn}$	312,1	834	0,7
Gd	1313	$^{154}\text{Gd}(n,2n)^{153}\text{Gd}$ $^{154}\text{Gd}(n,p)^{154}\text{Eu}$	241,5 3137,5	97 & 103 123 & 723 & 1274	9 0,5
Mn	1244	$^{55}\text{Mn}(n,2n)^{54}\text{Mn}$	312,1	834	10
Nb	2468	$^{93}\text{Nb}(n,\gamma)^{94}\text{Nb}$	$7,3 \cdot 10^6$	702 & 871	X
Ni	1455	$^{58}\text{Ni}(n,p)^{58}\text{Co}$ $^{60}\text{Ni}(n,p)^{60}\text{Co}$	70,88 1925,6	511 & 810 1173 & 1332	0,5 3
Rh	1966	$^{103}\text{Rh}(n,2n)^{102}\text{Rh}$ $^{103}\text{Rh}(n,p)^{103}\text{Ru}$	207 39,25	475 & 511 497	10 1
Ti	1660	$^{46}\text{Ti}(n,p)^{46}\text{Sc}$	83,81	889 & 1120	2,5
Y	1522	$^{89}\text{Y}(n,2n)^{88}\text{Y}$ $^{89}\text{Y}(n,p)^{89}\text{Sr}$	106,61 50,55	898 & 1836 909	10 2

**Tableau 16** : Caractéristiques des moniteurs de flux MEGAPIE.

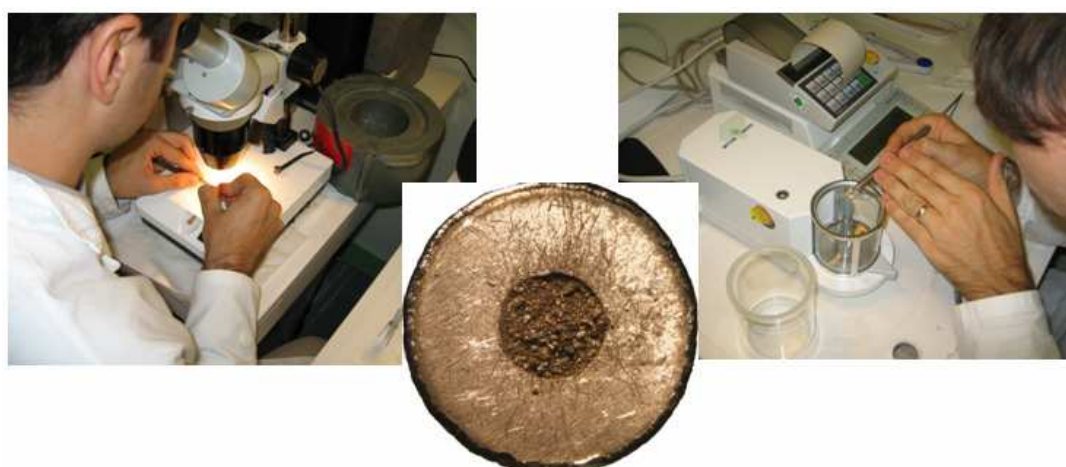
Moniteurs	Pureté [%]	Teneurs maximales en impuretés [ppm]
Al-0,1%Co	99,999	inconnu
Fe	> 99,99	Ag 1, Al 2, Ca 3, Cr 1, Cu 2, Mg 2 Mn 1, Ni 1, Si 3
Gd	> 99,9	non communiqué
Mn	98,5	non communiqué
Nb	99,9	B 10, Cu 5, Fe 30, Mo 10, Ni 5, Si 100, Ta 500, Ti 10, W 100, Zr 10, C 25, H 10, N 20, O 100
Ni	99,999	Al 2, Ca 2, Cu 1, Mg 1, Fe 2, Si 1
Rh	99,9	Al 10, Ca 10, Cu 5, Fe 40, In 100, Na 50, Ni 5, Pd 5, Pt 5, Ru 40, Si 45
Ti	99,999	Al 3, Ca 2, Cr 6, Cu 10, Fe 10, Mg 1, Mn 1, Nb 5, Ni 3, S 1, Si 5, V 3, Zn 1, Zr 3
Y	> 99,9	non communiqué

**Tableau 17 :** Compositions des moniteurs de flux, données par le fournisseur (GOODFELLOW).

Moniteurs	Activité [MBq]	
	4 mois d'irradiation	4 mois d'irradiation + 1 an de refroidissement
Al-0,1%Co	4,7	4,3
Fe	29,4	23,7
Gd	17,6	5,01
Mn	1,56	0,92
Nb	28,2	10,2
Ni	24,8	10,9
Rh	6,54	3,71
Ti	4,82	1,4
Y	28,3	5,87

**Tableau 18 :** Activités des moniteurs de flux (calculs CINDER).

Les moniteurs ont été pesés sous atmosphère contrôlée à l'aide d'une balance Mettler-Toledo haute précision (cf. figures 108). L'erreur commise sur la masse mesurée est inférieure à 0,001 mg.



**Figures 108a, 108b et 108c :** Photographies du dispositif de pesée (CEA/DRT/LNHB/LTSE) (gauche et droite), photographie du moniteur manganèse avant fermeture de sa capsule en titane (centre).



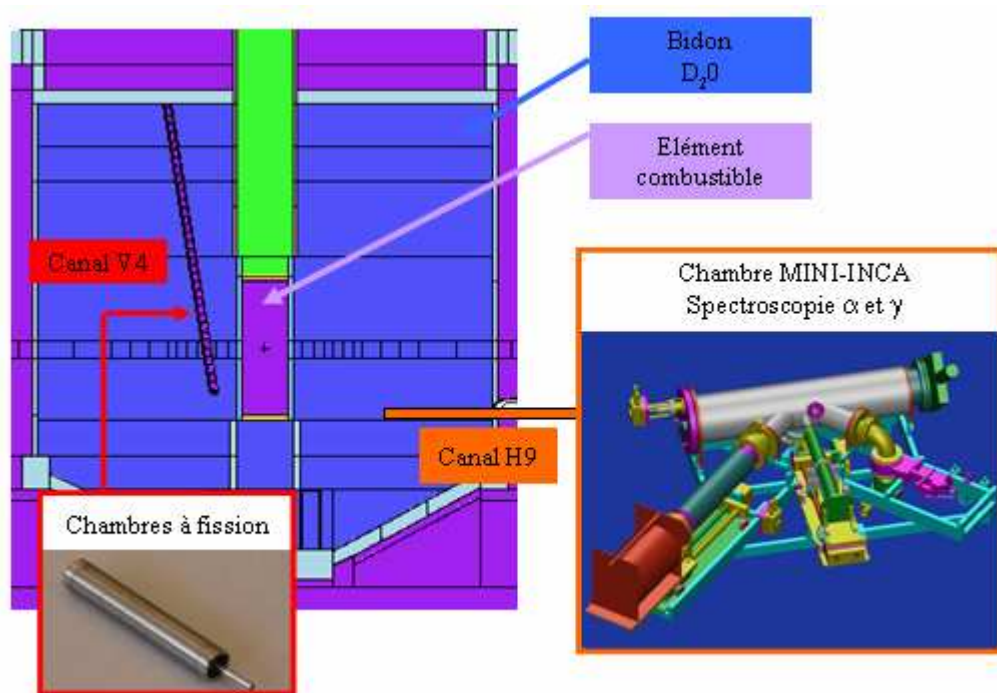
# CHAPITRE VII

## Tests intégraux à l'Institut Laue Langevin

Au cours des trois dernières années, nous avons régulièrement mené des campagnes d'irradiation auprès du Réacteur à Haut Flux (RHF) de l'Institut Laue Langevin (ILL). Nous y avons testé le fonctionnement de chambres à fission prototypes dans des flux neutroniques de l'ordre de  $10^{15}$  n.cm<sup>-2</sup>.s<sup>-1</sup>, à des températures proches de 300°C. Au-delà de l'intérêt scientifique et industriel, le but principal de ces expériences était de fournir une validation intégrale du fonctionnement des détecteurs, de leur connectique et de leur électronique pour le projet MEGAPIE.

### VII.1) Présentation succincte du RHF de l'ILL et du canal V4

L'Institut Laue Langevin (ILL) dispose d'un réacteur expérimental en fonctionnement depuis 1971, financé en partenariat par 12 pays européens. Ce réacteur à haut flux est principalement dédié aux études cristallographiques, nucléaires et fondamentales. A cet effet, il est équipé de plusieurs dispositifs d'envergure, dont de nombreux canaux d'irradiation [41, 42].



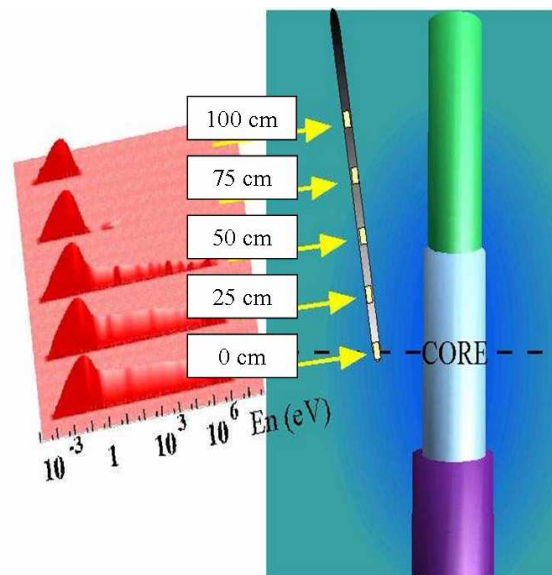
**Figure 109 :** Configuration du RHF. Le combustible est un élément cylindrique de  $\varnothing$  40 cm, pour une épaisseur de 5 cm et une hauteur de 0,8 m. Il est constitué d'uranium 235 enrichi à 93 %. Les neutrons sont modérés dans un bidon d'eau lourde de  $\varnothing$  1,25 m, placé au fond d'une piscine d'eau légère de 6 m de diamètre et de 14 m de haut. Le canal V4 est l'un des nombreux canaux d'irradiation qui entourent le cœur, mais il a l'avantage d'en être le plus proche. Parmi les autres canaux, on trouve notamment le canal H9, utilisé pour irradier des échantillons dans le cadre du projet MINI-INCA [1, 2, 3].

Dans le cadre du projet MINI-INCA et des études réalisées sur la transmutation des déchets nucléaires, un canal d'essai (appelé canal V4) a été installé puis instrumenté par le Service de Physique Nucléaire du CEA en 2000 pour permettre l'irradiation de chambres à fission et de matériaux d'intérêt pour la filière nucléaire [43].

Le canal V4 possède plusieurs atouts majeurs. Il approche le combustible à moins de dix centimètres dans sa partie basse (cf. figure 109). Cette proximité nous garantit ainsi des flux de neutrons d'une intensité unique, dépassant  $10^{15}$  n.cm<sup>-2</sup>.s<sup>-1</sup> en position basse. D'autre part, les navettes d'irradiation et les chambres à fission peuvent circuler le long du canal V4 et leur distance au combustible peut être ajustée avec précision (incertitude sur la position de l'ordre de quelques millimètres). Grâce à cette mobilité, les chambres pourront être soumises à des spectres et des flux de neutrons très différents. Le tableau 19 récapitule les valeurs moyennes du flux  $\phi$  calculées en modélisant le réacteur avec MCNP lorsque le RHF fonctionne à 58 MW [44]. On constate que  $\phi$  varie sur plus d'une décade le long du canal V4. Quant à la figure 110, elle présente la forme des spectres en fonction de la distance au combustible. On remarque ainsi que le flux est entièrement thermique (99,9 %) en position 100, alors qu'il est à 15 % épithermique en position 0.

Position	Flux [n.cm <sup>-2</sup> .s <sup>-1</sup> ]
0	$1,7 \cdot 10^{15}$
25	$1,4 \cdot 10^{15}$
50	$7,3 \cdot 10^{14}$
75	$3 \cdot 10^{14}$
100	$9,6 \cdot 10^{13}$

**Tableau 19 :** Valeurs simulées du flux de neutrons à l'intérieur du canal V4 (puissance réacteur : 58 MW) [44]. Les calculs ont été effectués avec le code MCNP.



**Figure 110 :** Evolution de la forme des spectres neutroniques à l'intérieur du canal V4.

Par souci de commodité, les chambres opèrent généralement à des emplacements prédéfinis et gradués tous les 25 centimètres. Tout au long de ce chapitre, nous ferons référence à des chambres placées en « position » 0, 25, 50, 75 ou 100. Ces dénominations indiquent en fait la distance en centimètres du détecteur au fond du canal. Une chambre en « position » 0 est en

position basse, une chambre en position 25, 50, 75 est respectivement placée à 25, 50 et 75 cm du fond du canal. Enfin, une chambre située à 100 cm est dite placée en position haute.

Les intensités et la diversité des flux qui règnent à l'intérieur du canal V4 sont uniques et font de cet instrument un outil d'irradiation incomparable. Nous présenterons dans cette section une partie des mesures effectuées à l'aide des chambres à fission prototypes destinées à l'expérience MEGAPIE.

## VII.2) Dispositif expérimental et objectifs

Le canal d'irradiation V4, de géométrie cylindrique, a une longueur de 4,8 m pour un diamètre intérieur de 2,8 cm. Il est inséré dans un doigt de gant de diamètre intérieur 4,4 cm, qui fait un angle de 8° avec la verticale (d'où la dénomination « V » 4) et s'approche à 4 cm du cœur. Les chambres à fission, qu'elles soient de type CFUT-C3 (simple corps MEGAPIE), CFUT-C6 (gap réduit) ou CFTC5 (triple corps), sont vissées sur un barillet en aluminium ( $\varnothing$  2,3 cm), solidaire d'une tige centrale du même métal ( $\varnothing$  3 mm) (cf. figure 111). L'ensemble est placé à l'intérieur d'un fourreau qui peut coulisser le long du canal V4, permettant aux chambres de passer d'une position à une autre.

Les courants de sortie des chambres à fission sont transportés par des câbles coaxiaux minéraux de type alumine ou magnésie, qui s'étirent sur 5 m jusqu'à l'embouchure du canal. Par un jeu de transitions électriques, ils sont ensuite propagés sur 15 m jusqu'à l'électronique d'acquisition par des câbles triaxiaux organiques<sup>18</sup>. D'autre part, le canal V4 est rempli d'hélium pur à une pression de 1 bar pour assurer la qualité des connexions électriques.

Les longueurs des câbles à l'ILL correspondent volontairement à celles utilisées pour le DNM de MEGAPIE. Nous avons en effet pour objectif de tester leur résistance à la température, à l'irradiation et à la pollution électromagnétique dans des conditions de fonctionnement les plus proches possibles.

L'électronique d'acquisition, rassemblée dans une baie ventilée, est composée de :

- 8 pico-ampèremètres Keithley 6487, qui appliquent la tension d'entrée aux bornes des chambres et collectent leurs courants de sortie,
- 1 module SR 630, qui mesure la tension générée aux bornes d'un thermocouples K implanté au niveau des chambres pour enregistrer la température ambiante,
- 1 module GPIB, qui effectue le transfert Ethernet des données des modules électroniques vers le PC d'acquisition.

Le logiciel de traitement, d'enregistrement et de visualisation des données est écrit en LabView [45]. L'architecture du système d'acquisition permet également l'échange de données à grande distance via Internet. La baie ventilée et le PC d'acquisition (cf. figure 112) seront réemployés pour l'expérience MEGAPIE, après avoir été testés auprès des installations du programme MINI-INCA au RHF.

---

<sup>18</sup> Les câbles triaxiaux organiques ne peuvent être utilisés en présence de radiations intenses (les liaisons organiques se décomposent sous l'effet des radiations) ou de températures supérieures à 150°C. Leur utilisation est donc impossible à l'intérieur du canal V4. En conséquence, nous avons recouru à des câbles minéraux sur les 5 premiers mètres. Ces mêmes raisons ont prévalu pour le projet MEGAPIE et la construction du DNM.

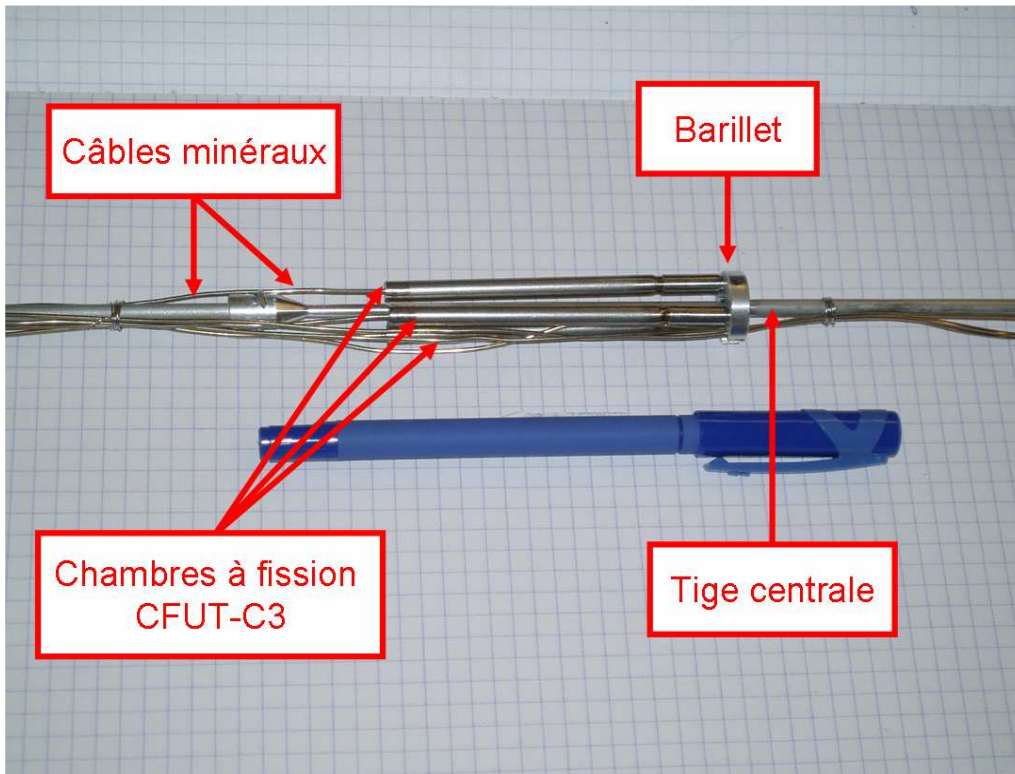


Figure 111 : Photographie de trois chambres CFUT-C3, du barillet sur lequel elles sont vissées et de la tige centrale en aluminium.

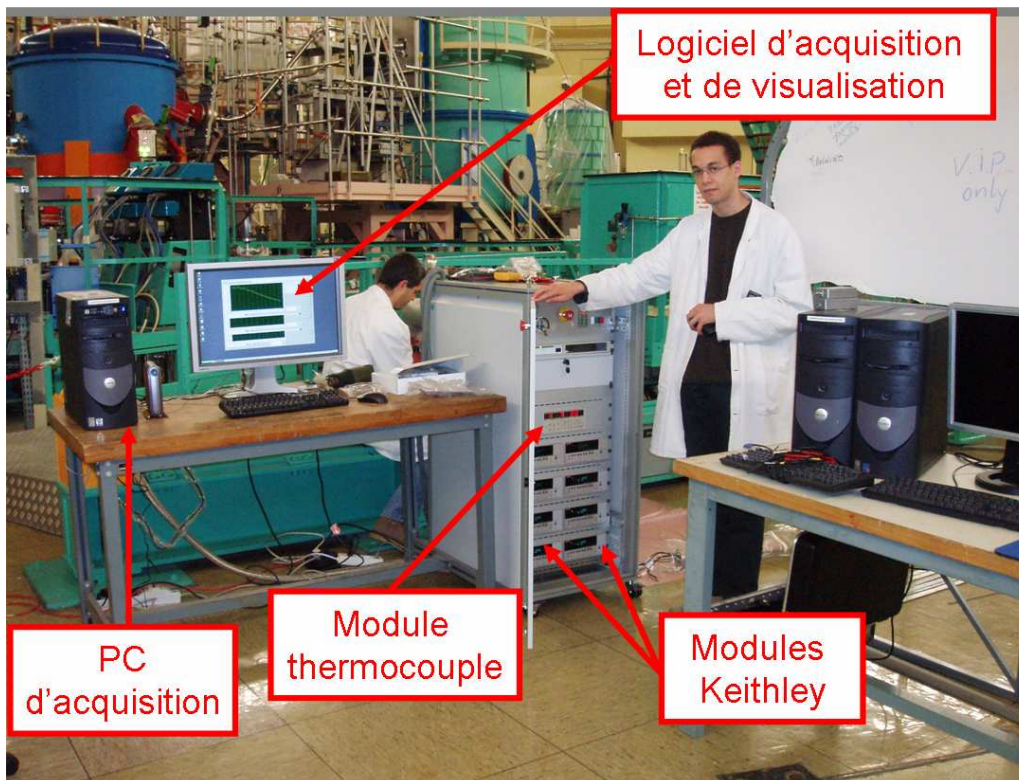


Figure 112 : Photographie du système d'acquisition.

Les objectifs des campagnes de tests à l'ILL étaient doubles : d'une part montrer la fiabilité des mesures, et d'autre part valider les choix technologiques de MEGAPIE.

Objectifs, mesures de référence :

- soustraire le bruit du signal,
- effectuer une mesure absolue du flux à toutes les positions du canal V4 avec une précision supérieure à 5 %,
- suivre les variations du flux avec une précision supérieure au pourcent,
- comprendre le fonctionnement des chambres à fission à haut flux et étudier leur comportement en régime transitoire,
- étudier les chaînes de transmutation de l'américium et du neptunium.

Objectifs, études technologiques :

- tester l'électronique et les programmes d'acquisition, les améliorer en vue de MEGAPIE,
- vérifier la bonne tenue des chambres au vieillissement thermique,
- choisir le meilleur câble coaxial minéral entre deux candidats possibles, alumine ou magnésie,
- tester les thermocouples K sous fluence élevée.

### **VII.3) Comportement général des câbles, des thermocouples et de l'électronique**

Nous avons étudié au RHF le comportement de câbles minéraux alumine ( $\text{Al}_2\text{O}_3$ ) et magnésie ( $\text{MgO}$ ), tous deux candidats au transport des signaux issus des chambres à fission. Comme l'indique la figure 113, nous avons constaté que leurs réponses sous flux et sous tension sont similaires pour des températures allant jusqu'à  $230^\circ\text{C}$ . Par conséquent, nous avons joué la carte de la prudence en ne retenant que les câbles alumine. En effet, leur comportement sous haut flux de neutrons rapides est connu et ils tolèrent mieux la présence de vapeur d'eau. Toutefois, nous nous assurerons avant utilisation que chaque câble présente une résistance de fuite suffisante, supérieure à  $2 \text{ G}\Omega \cdot \text{m}^{-1}$  à  $420^\circ\text{C}$ . A une tension de 250 V et une température de  $420^\circ\text{C}$ , le bruit thermique attendu sera alors inférieur à  $0,1 \mu\text{A}$  pour un signal total de l'ordre de la dizaine de microampères.

Par ailleurs, un thermocouple de type K, similaire à ceux qui seront implantés dans le DNM, a été irradié pendant 44 jours en continu en position 25 du canal V4. Cette durée correspond à une fluence thermique de  $4 \cdot 10^{21} \text{ n.cm}^{-2}$  (soit plus de 15 mois d'irradiation continue à MEGAPIE). Aucune dérive significative de la température mesurée n'a été observée, démontrant ainsi la robustesse de ces moniteurs aux rayonnements. Les températures relevées à différentes positions dans le canal V4 sont portées au tableau 20.

Enfin, l'électronique et les programmes d'acquisition développés ont correctement fonctionné. Leur utilisation nous aura permis de réaliser des mesures physiques avec des précisions inédites, sur des temps variables allant de la milliseconde à la dizaine de jours. Les résultats obtenus figurent dans les paragraphes suivants. Le retour d'expérience acquis au

cours de ces trois années de tests fut indispensable pour la conception et l'optimisation des systèmes d'acquisition du DNM.

Position	Température [°C]
25	230
50	180
75	80
100	55

Tableau 20 : Températures enregistrées à l'intérieur du canal V4.

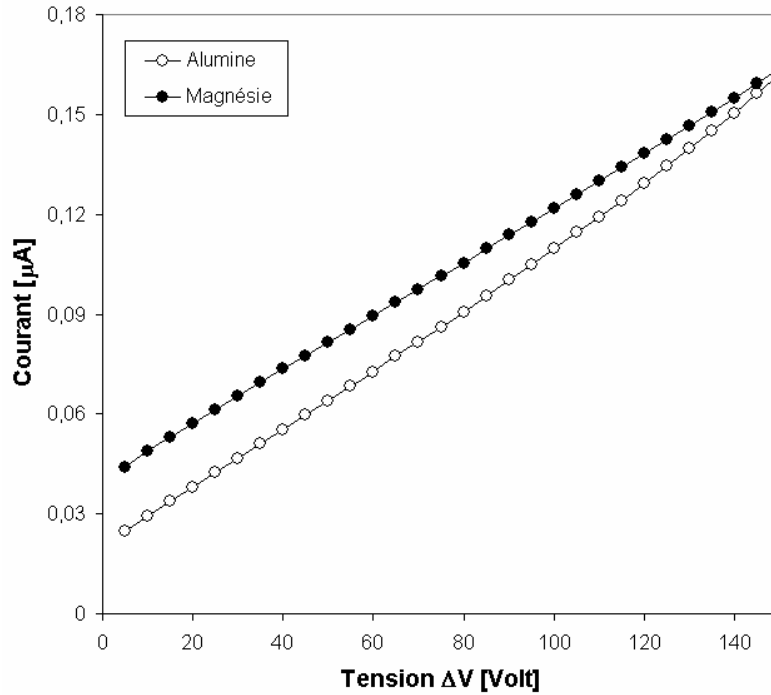


Figure 113 : Comportement des câbles  $Al_2O_3$  et  $MgO$  sous tension et sous flux (position 25 du canal V4).

#### VII.4) Suivi en ligne du flux neutronique

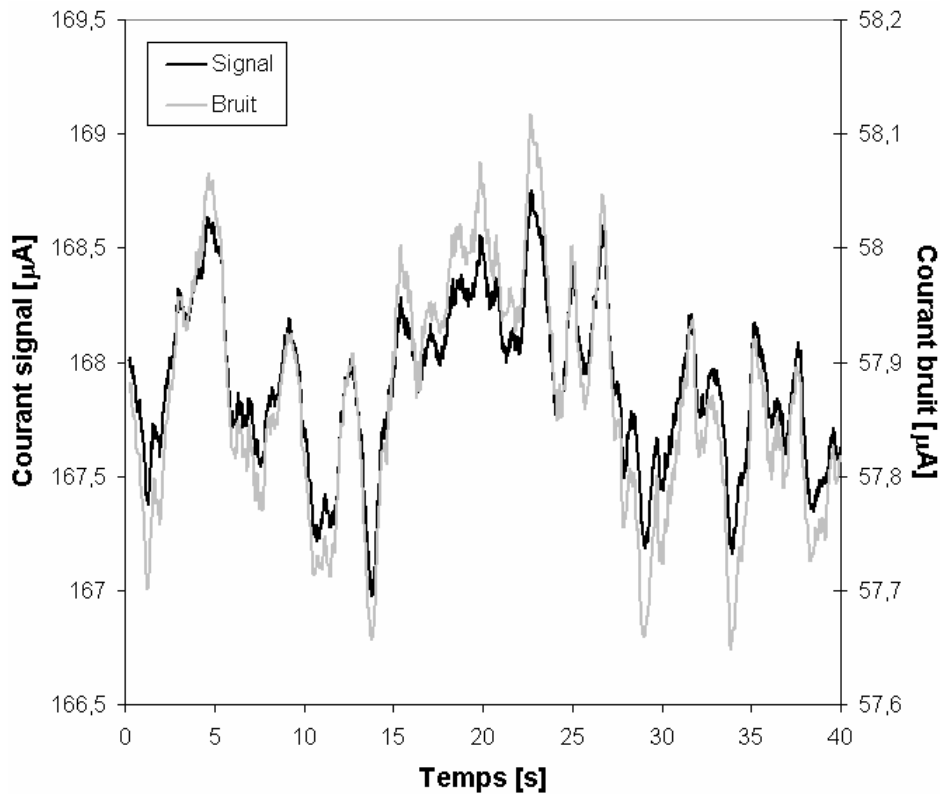
Les chambres à fission ont des temps de réponse particulièrement courts, fixés par la durée nécessaire à un ion pour traverser l'espace inter électrodes. Cette durée s'évalue en utilisant l'expression (II.1.54). Pour une chambre CFUT-C3 à une tension  $\Delta V$  de 100 V et une pression  $P$  de 1 bar, le temps de réponse est de l'ordre de la dizaine de microsecondes. Par conséquent, ces détecteurs sont des instruments privilégiés pour enregistrer en direct les fluctuations rapides d'un flux de neutrons.

Pour obtenir l'évolution temporelle du flux neutronique à partir des fluctuations du courant délivré par une chambre à fission, il suffit de discrétiser l'équation (III.3.10) et de procéder par itération. Pour une chambre à uranium 235, on obtient ainsi :

$$\phi(t + dt) = \phi(t) \frac{I(t + dt)}{I(t)} \frac{1}{1 - (\sigma_c + \sigma_f) \phi(t) dt} \quad (\text{VII.4.1})$$

où :  $\phi(t)$  et  $\phi(t+dt)$  sont respectivement les flux de neutrons à l'instant  $t$  et  $t+dt$ ,  
 $I(t)$  et  $I(t+dt)$  sont respectivement les courants à l'instant  $t$  et  $t+dt$ ,  
 $\sigma_c$  et  $\sigma_f$ , les sections efficaces de capture et de fission de l'uranium 235,

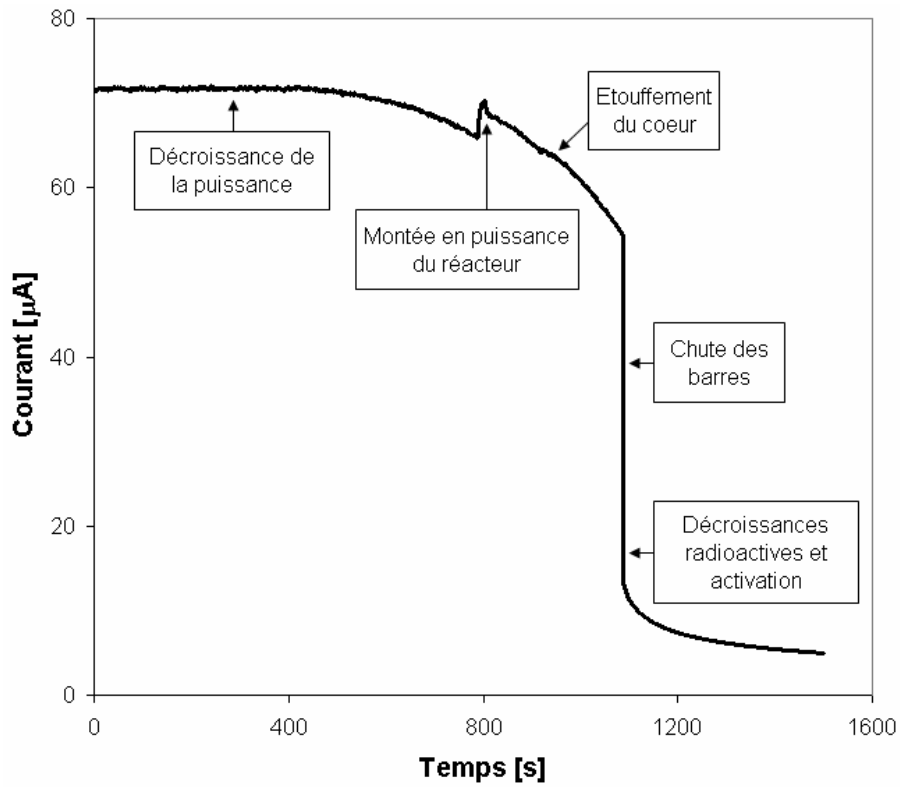
Dans l'optique de MEGAPIE, nous avons enregistré les variations du flux de neutrons en position 25 du canal V4 de l'ILL dans des conditions variées. La figure 114 présente un exemple d'acquisition des fluctuations rapides du flux, observées en simultanément sur deux chambres différentes. Ces variations sont associées aux fluctuations de réactivité du cœur et ont une amplitude de l'ordre du pourcent. Cette mesure de précision est rendue possible grâce à l'utilisation des modules Keithley de haute précision et des câbles triaxiaux insensibles au bruit électromagnétique.



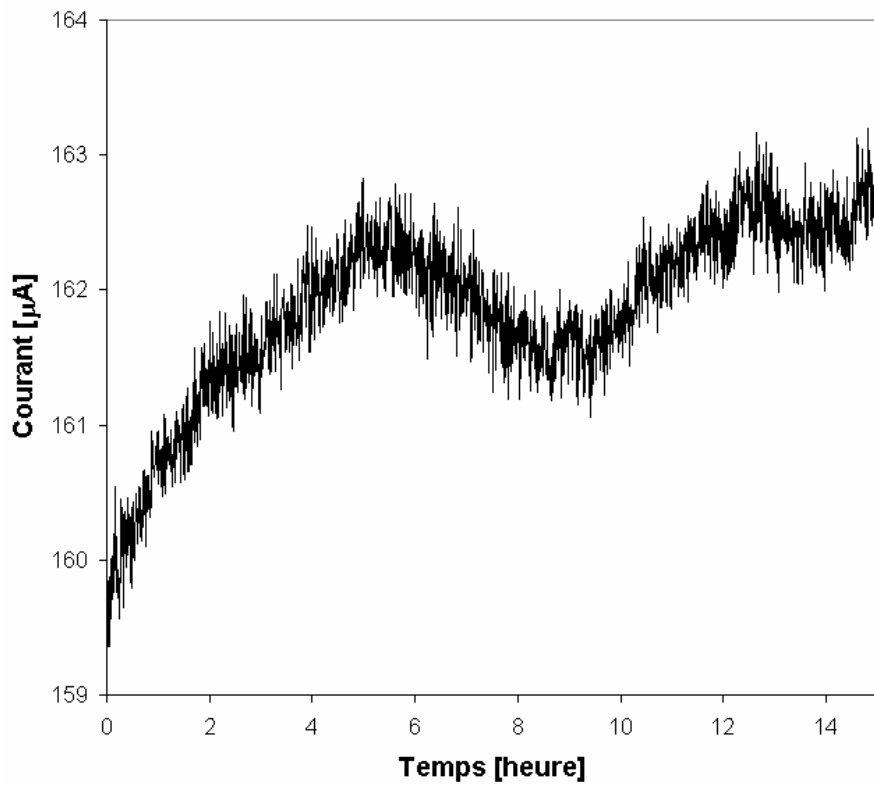
**Figure 114 :** Fluctuations rapides des flux neutroniques et gamma (cf. paragraphe VII.5), observées en simultanément sur une chambre avec dépôt d'uranium 235 et une chambre sans dépôt (position 25 du canal V4) (attention : les échelles en courant sont différentes pour les deux courbes et sont respectivement portées à gauche et à droite du graphique).

La figure 115 propose un exemple d'acquisition sur des temps de l'ordre de la minute. Elle illustre l'évolution du flux neutronique au cours d'un arrêt réacteur programmé par chute de barres en fin de cycle. On y observe la décroissance progressive de la puissance du cœur, jusqu'à la chute des barres de contrôle en une seconde. La fin de la courbe est associée à la décroissance radioactive du combustible, des éléments de structure du réacteur et des composants de la chambre.

Sur la figure 116, on notera un exemple d'oscillations lentes du flux. Ces oscillations sont corrélées à l'évolution de la température de la rivière Drac, utilisée pour le refroidissement du RHF.



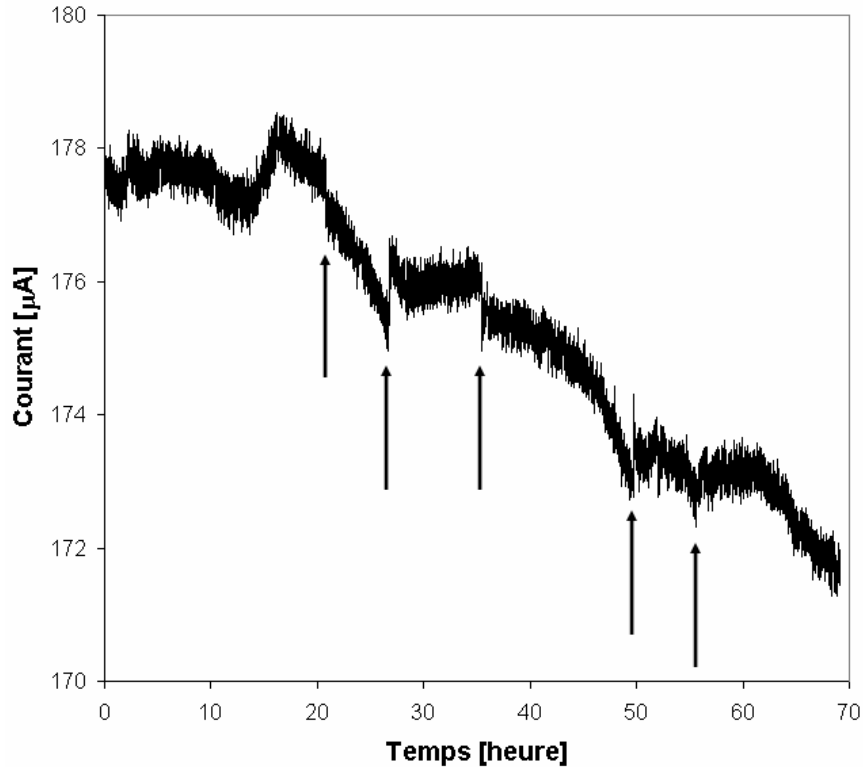
**Figure 115 :** Enregistrement d'un arrêt réacteur programmé par chute des barres en fin de cycle (position 25 du canal V4).



**Figure 116 :** Oscillations lentes du flux neutronique. Ces oscillations peuvent être corrélées aux fluctuations de la température de la rivière Drac (position 25 du canal V4).



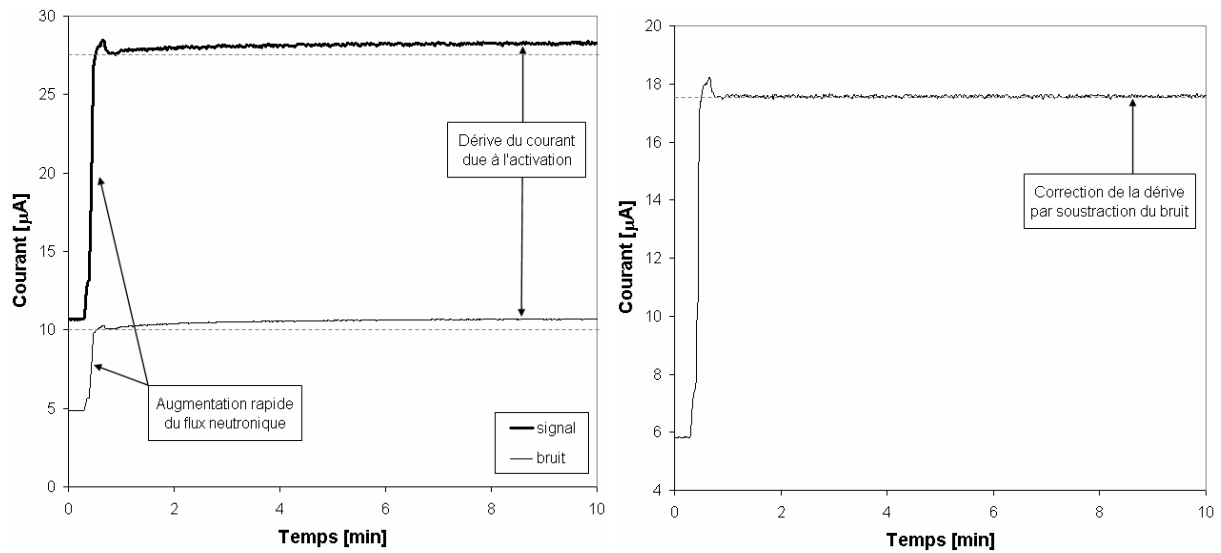
Enfin, la figure 117 illustre la sensibilité et la rapidité de réponse des chambres à fission. Lorsque la température de la rivière Drac évolue notablement, les opérateurs du RHF ajustent manuellement la puissance du réacteur en salle de contrôle. Ces manoeuvres, appelées « changements de points de consigne », induisent des modifications rapides et significatives du flux à l'intérieur du réacteur, que l'on peut suivre en direct sur nos chambres à fission.



**Figure 117 :** Modifications du flux neutronique dues à des changements de point de consigne réacteur (indiqués par des flèches) (position 25 du canal V4).

En cas de changement rapide du flux, on constate que le courant délivré par une chambre à fission dérive légèrement au cours du temps (cf. figure 118a). Cette dérive est due à l'activation des pièces du détecteur, dont l'émission de rayonnements ionisants ( $\beta$ , photons) induit une ionisation parasite du gaz de remplissage. Cette perturbation se corrige simplement en faisant la soustraction des courants émis par une chambre avec dépôt et une chambre sans dépôt placées à la même position. En effet, la composition et la géométrie des chambres avec ou sans dépôt sont identiques. De plus, la contribution à l'activité totale des produits de fission issus du dépôt est négligeable en raison des masses très faibles (de l'ordre de la centaine de microgrammes) de matière fissile utilisée. Ainsi, l'activation d'un détecteur avec ou sans dépôt est identique et peut donc être soustraite, comme l'atteste la figure 118b.

Ces exemples d'acquisition démontrent la fiabilité des chambres à fission et de leur électronique pour l'observation en ligne des fluctuations, rapides comme lentes, d'un flux neutronique. En utilisant l'équation (VII.4.1) présentée au début de ce paragraphe, nous sommes notamment parvenus à calculer l'évolution du flux de neutrons en position 25 du canal V4 sur un cycle complet de fonctionnement du RHF (cf. figure 119). Les résultats obtenus sont en accord avec les courbes issues des chambres hors cœur utilisées par les opérateurs de l'ILL. Cette méthode de reconstruction sera donc mise en oeuvre pour caractériser le flux neutronique à l'intérieur de la cible MEGAPIE.



Figures 118a et 118b : Dérive du courant délivré par une chambre à fission au cours du temps après un changement rapide et de grande amplitude du flux de neutrons (gauche). Correction de la dérive par soustraction du courant délivré par la chambre sans dépôt compagnon (droite).

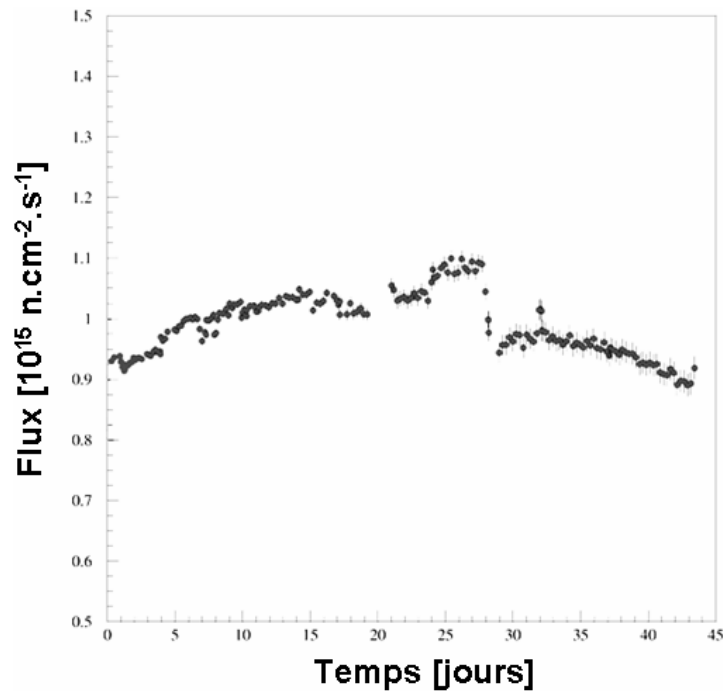


Figure 119 : Evolution du flux neutronique en position 25 sur un cycle complet du RHF.

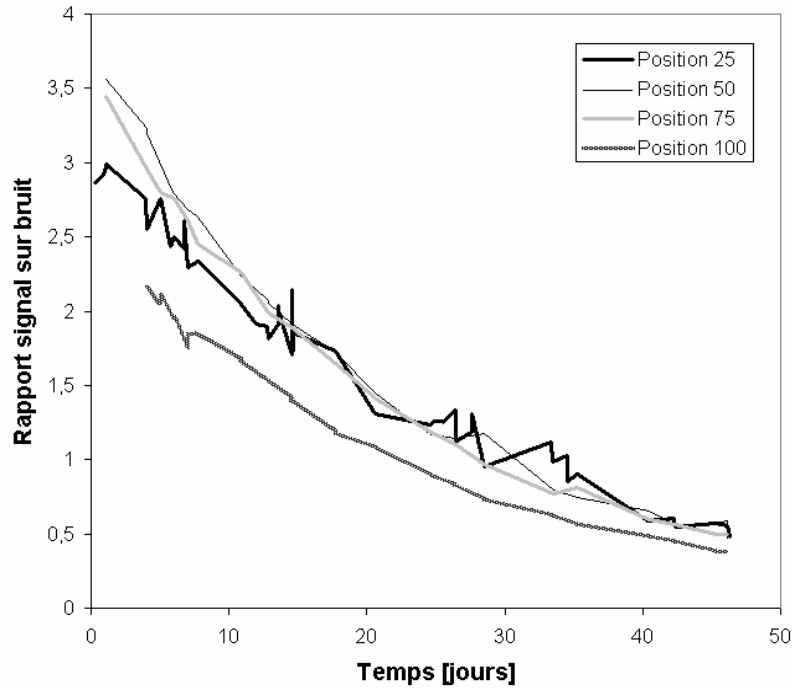
### VII.5) Mesures absolues du flux neutronique à l'intérieur du canal V4

Le courant total délivré par une chambre à fission contient une fraction non négligeable de bruit (cf. figures 118). Ce bruit provient essentiellement :

- du rayonnement gamma externe, qui interagit avec les parties massives des détecteurs et crée des charges parasites par effet photoélectrique (pour des rayons  $\gamma$  d'énergie  $E$  inférieure à 500 keV), Compton ( $E < 1$  MeV) et par création de paires ( $E > 1$  MeV),

- de l'activation des éléments de structure des chambres, qui génère de nombreux rayonnements ionisants (cf. calculs présentés en annexe C). On notera que les protons du faisceau et les rayons  $\beta$  créés à l'extérieur des chambres ne peuvent traverser leur enveloppe et n'interagissent donc pas avec leur gaz de remplissage.

A l'intérieur du canal V4, le rapport signal sur bruit pour une chambre CFUT-C3 muni d'un dépôt de  $4 \mu\text{g}$  d'uranium 235 vaut 3 environ en début d'irradiation (cf. figure 120). Il atteint 0,5 une cinquantaine de jours plus tard en raison de la combustion du dépôt.



**Figure 120 :** Evolution sur un cycle de fonctionnement du RHF du rapport signal sur bruit pour une chambre à dépôt d'uranium 235 placée en position 25 du canal V4. Occasionnellement, la chambre est déplacée à une position supérieure pour effectuer une mesure ponctuelle du flux correspondant.

Une fois la composante de bruit retranchée, le courant  $I_F$  associé aux seuls produits de fission obéit à l'équation (III.3.10). L'ajustement par une exponentielle nous permet donc de remonter aux flux neutronique moyen (cf. figure 121). Les sections efficaces moyennes de fission et de capture  $\sigma_f$  et  $\sigma_c$  qui apparaissent dans la formule (III.3.10) ont été calculées au préalable en utilisant le logiciel MCNP [44]. Elles varient d'une position à une autre, le spectre de neutrons évoluant avec la distance au combustible (cf. figure 110). Le tableau 21 récapitule les valeurs conventionnellement utilisées pour l'uranium 235 au RHF.

Position	$\sigma_f$ [barn]	$\sigma_c$ [barn]
0	395,5	68,82
25	424,68	73,32
50	466,83	79,85
75	484,29	82,43
100	487,29	82,92

**Tableau 21 :** Valeurs des sections efficaces moyennes de fission et de capture  $\sigma_f$  et  $\sigma_c$  de l'uranium 235 en fonction de la position dans le canal V4 (calculs MCNP) [44]. Le spectre du flux étant majoritairement thermique, l'erreur associée est faible (l'uranium 235 est peu sensible aux résonances).

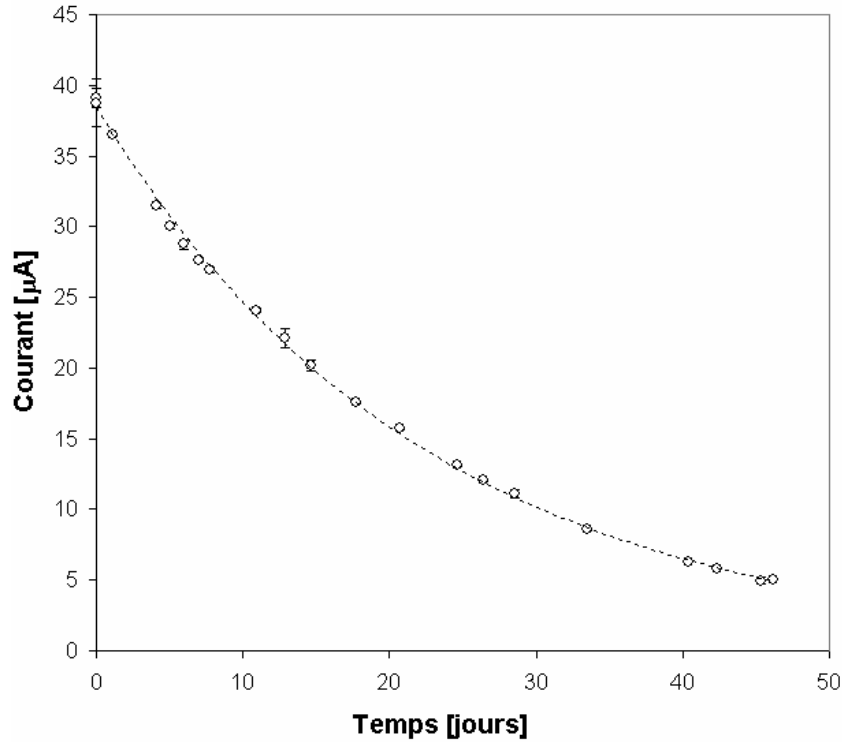


Figure 121 : Ajustement du courant délivré à bas taux de fission par une exponentielle.

A bas taux de fission, la détermination de  $I_F$  est aisée et la formule (III.3.10) s'applique directement (cf. figure 121). A haut taux de fission toutefois, il est nécessaire d'appliquer une correction qui s'écrit :

$$I_F(t) = \frac{eX_0(1+\gamma)G}{2\pi} \frac{\tau_f(t)}{(1-\varepsilon(t))} \quad (\text{VII.5.1})$$

- où :
- $e$  est la charge électrique élémentaire,
  - $G$ , un facteur qui dépend uniquement de la géométrie de la chambre (cf. équation (II.2.7)),
  - $X_0$ , le nombre de paires de charges créées par un produit de fission par unité de distance parcourue dans le gaz de remplissage (cf. paragraphe II.1.B),
  - $\gamma$  le coefficient d'émission secondaire.

La fonction de correction  $\varepsilon$  vaut :

$$\varepsilon(t) = \underbrace{\alpha(\tau_f(t))^\beta}_{(1)} \underbrace{\left(\int_0^t \tau_f(t) dt\right)^\gamma}_{(2)} \quad (\text{VII.5.2})$$

Les termes (1) et (2) traduisent respectivement l'impact qu'ont l'augmentation du taux de fission (cf. figure 82) et l'accumulation de produits de fission gazeux<sup>19</sup> sur la déformation des courbes de calibration et la détermination de  $I_0$ . Les variables  $\alpha$ ,  $\beta$  et  $\gamma$  sont indépendantes du taux de fission, donc de la position à l'intérieur du canal V4.

<sup>19</sup> La concentration des produits de fission dans le gaz de remplissage est proportionnelle au taux de combustion du dépôt

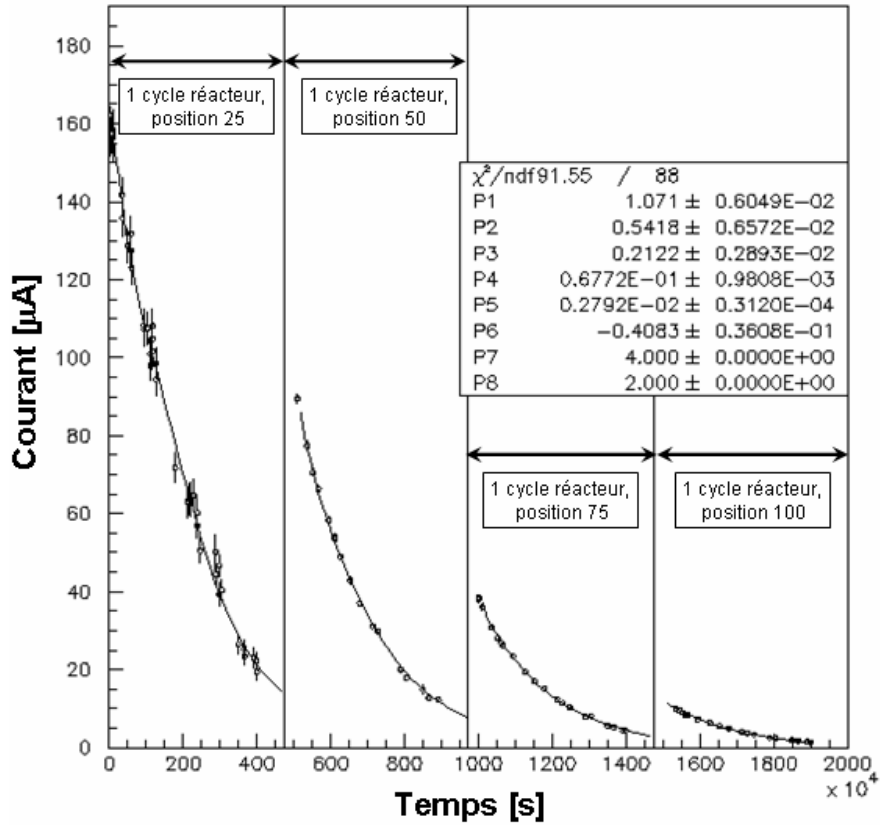


Figure 122 : Ajustement simultané sur l'ensemble des mesures effectuées en position 25, 50, 75 et 100 cm du canal V4 durant un cycle complet du RHF en utilisant la formule (VII.5.1).

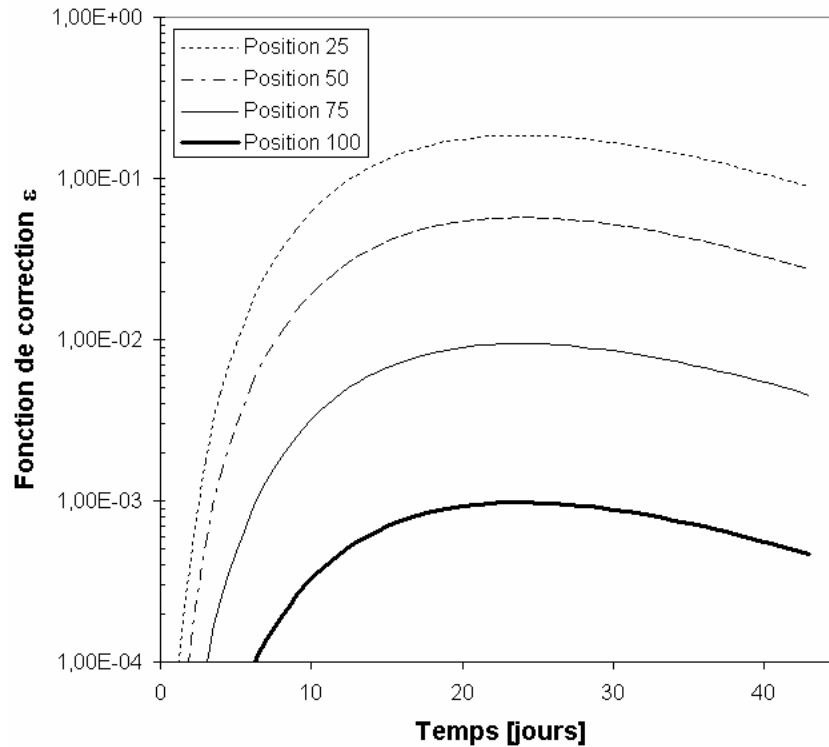


Figure 123 : Evolution de la fonction de correction  $\epsilon$  en fonction du temps pour différentes positions à l'intérieur du canal V4. Les chambres sont irradiées en position 25 et ne sont remontées qu'occasionnellement pour effectuer des mesures ponctuelles de flux neutroniques plus faibles. Le taux de combustion du dépôt atteint ainsi 90 % environ.

En ajustant l'ensemble des mesures effectuées durant un cycle d'irradiation à l'ILL à l'aide de la formule (VII.5.1), nous pouvons dès lors déterminer (cf. figure 122) :

- les valeurs des flux neutroniques moyens à chaque position du canal V4,
- les coefficients  $\alpha$ ,  $\beta$  et  $\gamma$  de la fonction  $\varepsilon(t)$ ,
- le produit  $X_0 \times (1+\gamma)$

Les flux de neutrons obtenus sont récapitulés dans le tableau 22. Pour des chambres à fission différentes, les résultats restent compatibles dans les barres d'erreur. Les coefficients  $\beta$  et  $\gamma$  ajustés valent respectivement 4 et 2. Enfin, le produit  $X_0 \times (1+\gamma)$  mesuré vaut, pour une pression d'argon de 1 bar :

$$X_0(1+\gamma) = (1,80 \pm 0,04) \times 10^8 \text{ m}^{-1} \quad (\text{VII.5.3})$$

Cette valeur correspond au résultat des simulations SRIM pour  $X_0$  seul (cf. équation (II.1.19)). Comme nous le constatons à la fin du paragraphe III.3.B.c, le coefficient  $\gamma$  apparaît donc comme négligeable, ce qui indique vraisemblablement un degré d'oxydation très important de la surface des cathodes des chambres.

Position	$\phi [10^{15} \text{ n.cm}^{-2} \cdot \text{s}^{-1}]$
25	$1,084 \pm 0,010 \pm \mathbf{0,024}$
50	$0,555 \pm 0,004 \pm \mathbf{0,012}$
75	$0,217 \pm 0,001 \pm \mathbf{0,008}$
100	$0,068 \pm 0,001 \pm \mathbf{0,002}$

**Tableau 22** : Flux neutroniques moyens mesurés avec une chambre CFUT-C3 à dépôt d'uranium 235 (puissance réacteur : 54 MW). Les erreurs présentées sont détaillées dans le corps du texte.

Comme le montre la figure 123, la fonction  $\varepsilon$  est négligeable quand le flux neutronique  $\phi$  est faible à modéré (positions 75 et 100)<sup>20</sup>. Sa contribution ne devient notable qu'à haut flux (positions 25 et 50).

Les erreurs obtenues sur la détermination de  $\phi$  (cf. tableau 22) sont inférieures à 5 % et sont essentiellement dues à deux contributions : les incertitudes sur le courant mesuré d'une part, et les erreurs systématiques sur la masse des dépôts et le repositionnement des chambres à l'intérieur du canal V4 d'autre part.

Les incertitudes sur le courant mesuré à chaque point d'une courbe de calibration sont faibles mais nombreuses. Elles résultent des erreurs commises :

- sur l'acquisition du courant par les modules Keithley : 0,2 % (chiffre fourni par le constructeur),
- sur la tension appliquée aux bornes des chambres par les modules Keithley : 0,15 % (chiffre fourni par le constructeur),
- sur la valeur du courant, en raison des fluctuations de réactivité du cœur du RHF (cf. figure 114) : 0,6 %,

<sup>20</sup> La correction à apporter aux courants qui seront mesurés à MEGAPIE sera inférieure à 0,1 %, les masses des dépôts ayant été optimisées pour éviter toute déformation des courbes de calibration (cf. paragraphe VI.4.B).

- sur la valeur du courant, en raison des oscillations de la température du Drac, rivière servant au refroidissement du RHF (cf. figure 116) : 0,7 %,
- sur la valeur du courant, en raison des changements de point de consigne au RHF (cf. figure 117) : 0,4 %

Le nombre de mesures effectuées durant une courbe de calibration est élevé (au minimum une centaine). Par conséquent, la contribution de ces erreurs sur la détermination du flux  $\phi$  est limitée (chiffres en italique dans le tableau 22). En revanche, les erreurs commises sur le repositionnement exact de la chambre après un mouvement dans le canal V4 (hauteur + rotation) (2 %) et sur la masse d'uranium 235 déposée ( $< 1,3$  %) sont systématiques et dominantes (chiffres en gras dans le tableau 22).

## VII.6) Transmutation du neptunium 237 et de l'américium 241 à l'ILL

Dans ce dernier paragraphe, nous effectuerons un bref rappel sur les déchets nucléaires, les actinides mineurs et la problématique qui leur est associée. Nous présenterons ensuite une méthode permettant la caractérisation des chaînes de transmutation d'éléments tels que l'américium, le curium ou le neptunium en un petit nombre d'irradiation à l'aide de chambres à fission. Enfin, nous appliquerons cette technique auprès des installations du programme MINI-INCA, pour obtenir une mesure de référence de l'incinération du neptunium dans un flux thermique élevé.

Les déchets nucléaires français sont essentiellement produits au sein des réacteurs électrogènes. Chaque année, 1150 tonnes de combustible usé sont ainsi déchargées des centrales d'EDF. A sa sortie du réacteur, un assemblage de combustible présente une radiotoxicité fortement supérieure à celle du minerai d'uranium naturel ayant servi à sa fabrication. Dans les 300 premières années, les produits de fission, notamment le césium 137 et le strontium 90, sont à l'origine de l'essentiel de l'activité. Au delà de quelques centaines d'années et jusqu'à 20000 ans, la radiotoxicité et le dégagement de chaleur sont dominés par les contributions du plutonium 238 et de l'américium 241 (émetteur  $\alpha$ , 433 ans de période, formé par désintégration  $\beta$  du plutonium 241). Enfin, la radioactivité des actinides (plutonium, américium, curium, neptunium) décroît lentement et rejoint au bout de 200000 ans environ une valeur égale à celle de l'uranium naturel. Du reste, certains radionucléides conservent encore une activité notable imposant un confinement sur de plus longues durées. En particulier, le neptunium 237 a une période de 2,14 millions d'années et est émetteur  $\alpha$ .

Malgré le rôle majeur que jouent l'américium et le neptunium dans la radiotoxicité totale des déchets nucléaires, le manque de données expérimentales sur leur comportement est important. Les sections efficaces des réactions qui impliquent leurs isotopes sont peu ou pas connues. Par exemple, la section efficace thermique de capture du neptunium 237 est connue à 20 barns près. Elle a été remesurée dans le cadre du projet MINI-INCA avec une précision accrue et vaut  $180 \pm 5$  barns [46]. En ce qui concerne la section efficace thermique de fission du neptunium 238, il existe des écarts importants entre les mesures de Danon ( $2638 \pm 58$  barns) [47], Abramovitch ( $2110 \pm 740$  barns) [48] et les bibliothèques JENDL et ENDF (respectivement 2070 et 2030 barns). Par ailleurs, la section efficace thermique de capture du neptunium 238 donnée par JENDL vaut 450 barns, contre 202,8 barns seulement pour ENDF. Les données disponibles pour les isotopes d'américium ne sont guère plus précises. L'un des objectifs centraux des projets MINI-INCA et MEGAPIE concerne donc l'étude de la

transmutation de l'américium et du neptunium, afin d'obtenir les valeurs de leurs sections efficaces à 25 meV et de recalibrer ainsi les mesures de sections efficaces différentielles.

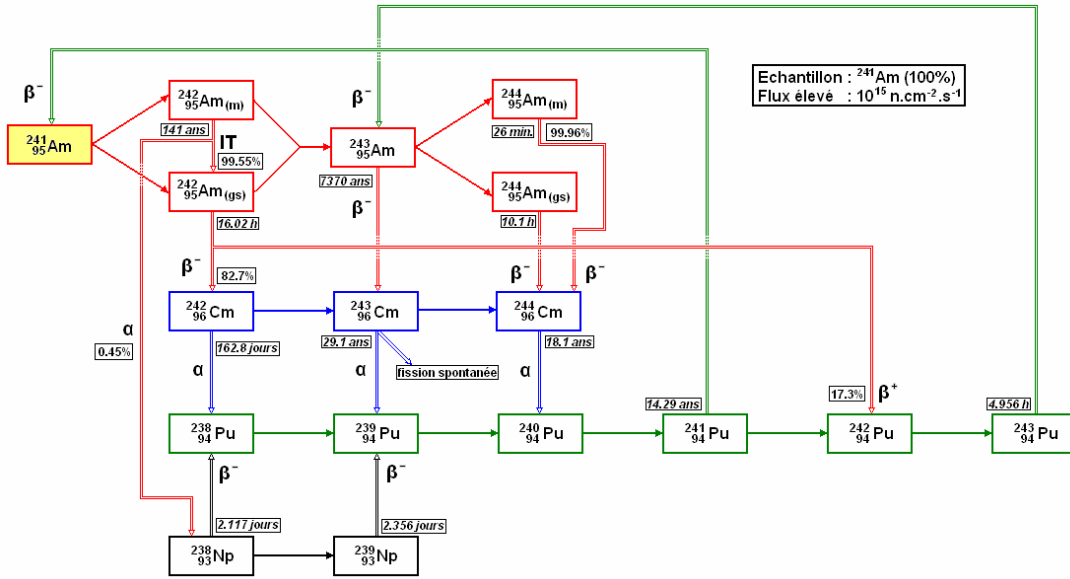


Figure 124 : Chaîne de transmutation de l'américium (en position 25 du canal V4) [53].

Pour réaliser ces mesures, nous utilisons des chambres à fission présentant des dépôts de neptunium 237 et d'américium 241, irradiées dans des flux neutroniques extrêmes. Un flux élevé nous permet en effet d'accéder aux isotopes à durées de vie courtes, en remontant le plus loin possible dans la chaîne de transmutation par captures neutroniques successives (cf. figure 124). Une partie des radioéléments formés sont fissiles et participeront donc au courant délivré par le détecteur, en éjectant des produits de fission dans le gaz de remplissage (cf. chapitre II). Le taux de fission mesuré par le détecteur sera donc la somme des taux de fission induits par chaque élément fissile X :

$$\begin{cases} \tau_f^{TOT}(t) = \sum_X \tau_f^{(X)}(t) = N_a \sum_X n^{(X)}(t) \sigma_f^{(X)} \phi \\ I(t) = \frac{eX_0(1+\gamma)G}{2\pi} \tau_f^{TOT}(t) \end{cases} \quad (\text{VII.6.1})$$

- où :
- $t$  est le temps passé depuis le début de l'irradiation,
  - $n^{(X)}(t)$  est le nombre de moles de l'élément X formé dans le dépôt,
  - $\tau_f^{(X)}(t)$ , son taux de fission
  - $\sigma_f^{(X)}$ , sa section efficace de fission,
  - $\phi$ , le flux de neutrons,
  - $N_a$ , le nombre d'Avogadro.
  - $I(t)$ , le courant délivré par la chambre à fission,
  - $e$ , la charge électrique élémentaire,
  - $G$ , le facteur géométrique de la chambre (cf. paragraphe II.2.A),
  - le produit  $X_0 \times (1+\gamma)$  est donné au paragraphe VII.5.

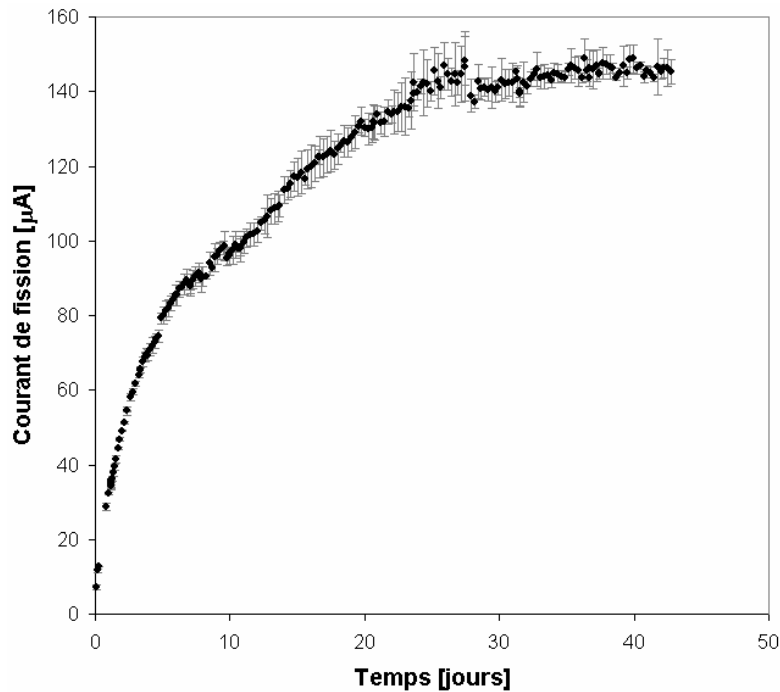
Or, la concentration  $n^{(X)}(t)$  d'un isotope X obéit aux équations de Bateman, qui relie sa durée de vie aux sections efficaces des réactions auxquelles il participe. Pour le neptunium, on obtient par exemple le système d'équations différentielles suivant :



$$\left\{ \begin{aligned}
 \frac{\partial}{\partial t} n(^{238}\text{Np})(t) &= \sigma_c(^{237}\text{Np}(n, \gamma)^{238}\text{Np}) \phi \cdot n(^{237}\text{Np})(t) - \sigma_c(^{238}\text{Np}(n, \gamma)^{239}\text{Np}) \phi \cdot n(^{238}\text{Np})(t) \\
 &\quad - \sigma_f(^{238}\text{Np}(n, f)X) \phi \cdot n(^{238}\text{Np})(t) - \lambda(^{238}\text{Np}) \times n(^{238}\text{Np})(t) \\
 \frac{\partial}{\partial t} n(^{239}\text{Np})(t) &= \sigma_c(^{238}\text{Np}(n, \gamma)^{239}\text{Np}) \phi \cdot n(^{238}\text{Np})(t) - \sigma_c(^{239}\text{Np}(n, \gamma)^{240}\text{Np}) \phi \cdot n(^{239}\text{Np})(t) \\
 &\quad - \lambda(^{239}\text{Np}) \times n(^{239}\text{Np})(t) \\
 \frac{\partial}{\partial t} n(^{238}\text{Pu})(t) &= \varepsilon \lambda(^{238}\text{Np}) \times n(^{238}\text{Np})(t) - \sigma_c(^{238}\text{Pu}(n, \gamma)^{239}\text{Pu}) \phi \cdot n(^{238}\text{Pu})(t) \\
 &\quad - \lambda(^{238}\text{Pu}) \times n(^{238}\text{Pu})(t) \\
 \text{etc ...} &
 \end{aligned} \right. \quad (\text{VII.6.2})$$

où :  $n$  est un nombre de moles,  
 $\sigma_c$  et  $\sigma_f$ , des sections efficaces de capture et de fission,  
 $\lambda$ , une durée de vie,  
 $\varepsilon$ , un rapport d'embranchement

En ajustant l'évolution temporelle du courant  $I(t)$  délivré par une chambre à fission (cf. équation (VII.6.1) et figure 125) avec les expressions de Bateman, on peut donc remonter aux sections efficaces de l'ensemble des réactions qui impliquent chaque radioélément de la chaîne de transmutation étudiée. Il s'agit là d'une méthode puissante, qui permet de réaliser la mesure de plusieurs paramètres nucléaires en une seule irradiation.



**Figure 125** : Evolution au cours du temps du courant délivré par une chambre à fission irradiée en position 25 du canal V4 et possédant un dépôt de neptunium 237.

Les résultats obtenus pour une chambre triple corps {uranium 235 + neptunium 237 + sans dépôt} (cf. paragraphe IV.2) sont présentés au tableau 23. Les erreurs proviennent :

- de l'incertitude sur le courant mesuré (détaillée au paragraphe VII.5),
- de l'incertitude systématique sur la masse du dépôt d'actinide : 3 %,
- des incertitudes sur les paramètres nucléaires qui ne sont pas ajustés : 1,3 % dans le cadre de la mesure de  $\sigma(^{238}\text{Np}(n,f)\text{X})$  et 6 % pour  $\sigma(^{238}\text{Pu}(n,\gamma)^{239}\text{Pu})$ . En effet, les valeurs des sections efficaces de capture du neptunium 237, de combustion du neptunium 239 et de fission du plutonium 238 et 239 ont été mesurées au cours d'autres expériences et ont été fixées durant l'ajustement,
- des erreurs statistiques.

Source	$\sigma(^{238}\text{Np}(n,f)\text{X})$ [barn]	$\sigma(^{238}\text{Pu}(n,\gamma)^{239}\text{Pu})$ [barn]
ENDF/B-VI.8	2026,9	560,9
JENDL-3.3	2070	540,2
JEFF3.1		542
Danon [47]	$2638 \pm 58$	
Abramovich [48]	$2110 \pm 740$	
Butler [49, 50]		$403 \pm 8$ et $489 \pm 3$
Bruehlman [51]		$455 \pm 50$
Hulet [52]		$520 \pm 40$
<b>Nos mesures</b>	<b><math>2165 \pm 70</math></b>	<b><math>476 \pm 33</math></b>

Tableau 23 : Valeurs préliminaires des sections efficaces à 25 meV.

Les sections efficaces déterminées à l'ILL compléteront les mesures qui seront effectuées à MEGAPIE dans un spectre plus dur, à 34 % épithermique. On notera enfin que le taux d'incinération<sup>21</sup> du neptunium 237 vaut 16 % après 43 jours d'irradiation dans un flux moyen de  $0,9 \cdot 10^{15} \text{ n.cm}^{-2}.\text{s}^{-1}$  à 90 % thermique. Le taux de transmutation<sup>22</sup> atteint 38,58 % sur la même durée. En ce qui concerne l'américium 241, l'analyse est en cours [53].

Pour conclure ce chapitre, nous soulignerons les succès scientifiques et technologiques remportés par les chambres prototypes CFUT-C3 durant ces trois années de tests à l'ILL. Ces chambres ont repoussé les limites de flux accessibles d'un ordre de grandeur, tout en garantissant des mesures précises à 5 % près. Elles nous auront permis d'enregistrer en direct les battements du cœur de l'ILL, ou d'observer l'impact de la température extérieure d'un réacteur sur ses performances neutroniques. Elles ont rendu possible l'exploration des chaînes de transmutation de l'américium et du neptunium, en réalisant des mesures originales de leurs sections efficaces. Ces réalisations valident nos choix pour le projet MEGAPIE et préfigurent, nous l'espérons, le succès que rencontrera le DNM pour la caractérisation du flux à l'intérieur de la cible.

<sup>21</sup> Le taux d'incinération est la probabilité qu'à un isotope d'être transformé en isotopes plus légers (produits de fission) dans un flux de neutrons donné. Il varie au cours du temps et est donné par :

$$\chi(t) = \frac{\int_0^t \tau_f dt}{N_0} = \frac{2\pi}{eX_0(1+\gamma)GN_0} \int_0^t I(t) dt$$

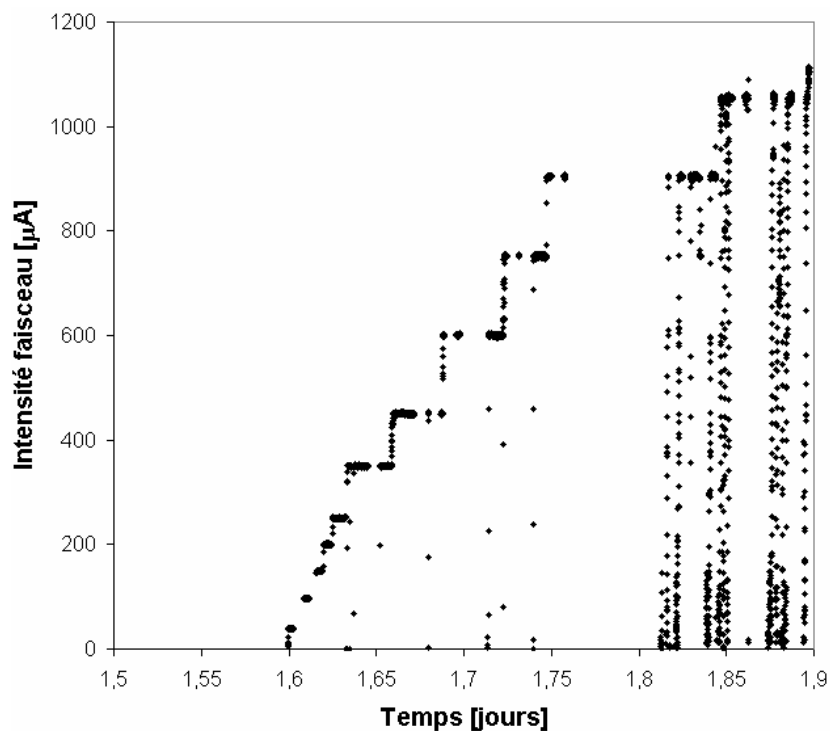
où  $\tau_f$  est le taux de fission.  $N_0$  est le nombre initial d'atomes du dépôt à incinérer. Le taux  $\chi$  se détermine donc directement en intégrant le courant de fission délivré par la chambre (cf. équation (VII.6.1)).

<sup>22</sup> Le taux de transmutation est la probabilité qu'à un isotope d'être transformé en un isotope différent dans un flux donné.

# CHAPITRE VIII

## MEGAPIE : premiers résultats

La cible MEGAPIE a fourni ses premiers neutrons le 14 août 2006. La procédure de mise en route prévoyait une série de paliers croissants pour l'intensité du faisceau de protons, de 40  $\mu\text{A}$  jusqu'à 1,4 mA (cf. figure 126). Cette période, cruciale pour notre détecteur, a fourni l'essentiel des renseignements que nous étions en mesure d'attendre. En dépit d'une dégradation de l'environnement du central rod, les chambres à fission et les thermocouples implantés à l'intérieur du DNM nous ont ainsi permis d'étudier en ligne l'évolution du flux neutronique et de la température en cœur de cible en fonction de l'intensité faisceau. Par ailleurs, l'utilisation du blindage au gadolinium à l'étage n°1 (cf. figure 99) a rendu possible la caractérisation de la composante épithermique du flux dans la partie basse du central rod MEGAPIE. Ces résultats, préliminaires, feront l'objet de ce dernier chapitre.



**Figure 126** : Evolution de l'intensité faisceau lors de la phase de mise en marche de la cible par paliers de puissance croissants (des instabilités apparaissent lorsque le courant dépasse 1 mA).

### VIII.1) Des conditions de fonctionnement dégradées

La mise en service du Détecteur de Neutrons pour MEGAPIE s'est effectuée dans des conditions de fonctionnement fortement dégradées. En raison d'une déficience probable d'un circuit d'alimentation des pompes électromagnétiques de la cible, les opérateurs n'ont pas pu maintenir la pression (0,5 bar) et la pureté d'hélium requise à l'intérieur du central rod. L'apparition d'une contamination rapide, importante et régulière de l'hélium par des produits

gazeux, vraisemblablement issus d'une fuite d'huile, a eu des conséquences désastreuses sur deux des huit chambres à fission. Comme nous le mentionnions au paragraphe VI.3, les soudures des connecteurs sont exposées à des risques de claquage, fonction de la tension appliquée et de la pression du gaz. Pour de l'hélium à 0,5 bar, la tension maximale autorisée aux bornes des chambres à fission vaut ainsi 400 V, un seuil supérieur aux tensions maximales de fonctionnement, y compris durant l'enregistrement d'une courbe de calibration. Or, les analyses effectuées à l'intérieur du central rod ont révélé la présence d'hydrogène, d'oxygène, d'azote, de méthane et de xénon, à des pressions fluctuant entre 0,1 et 0,7 bars. Ces polluants ont abaissé la tension de claquage des connecteurs, entraînant la perte complète de la chambre n°2 d'uranium 235 blindée au gadolinium (étage n°1) au bout de 3 jours de fonctionnement. La chambre n°7, sans dépôt (étage n°5), a subi les mêmes désagréments, mais les conséquences ont pu être limitées. Elle a continué à délivrer un courant mesurable, toutefois mâtiné d'une perturbation résistive qu'il sera difficile d'extraire.

Pour prévenir tout risque d'accident sur les détecteurs restants, nous avons donc été amené à limiter à 200 V les tensions appliquées aux bornes des chambres. Cette contrainte nous empêche d'observer le régime d'avalanche des courbes de calibration, prohibant du même coup le recours à la technique « exponentielle » d'analyse (cf. paragraphe III.3.B.c). Cependant, grâce à l'optimisation conduite sur la masse des dépôts des chambres, les faibles valeurs de taux de fission attendues (cf. tableau 15) puis observées (cf. paragraphe VIII.4) ont permis l'obtention de plateaux de saturation de bonne qualité, sans déformation excessive (cf. figure 127). Par conséquent, un suivi de l'intensité à une tension constante égale à 100 V s'est révélé suffisant. De plus, les taux de combustion des dépôts demeureront faibles, même après 4 mois d'irradiation continue. Nous sommes ainsi assurés que la perturbation des courbes de calibration par accumulation de produits de fission gazeux restera négligeable.

Par ailleurs, des problèmes d'instabilité du faisceau de protons ont conduit les opérateurs du SINQ à limiter l'intensité à 1,2 mA au lieu des 1,4 mA initialement prévus. Cette réduction, associée à la diminution de la durée de fonctionnement à 4 mois, abaisse automatiquement la transmutation prévue des dépôts de neptunium 237 et d'américium 241 insérés à l'étage n°4 du DNM (cf. figure 99). La détermination des sections efficaces de capture et de fission des éléments des chaînes de l'américium et du neptunium nécessitera un suivi sur plusieurs mois et ne figurera donc pas dans ce rapport.

## VIII.2) Détermination du coefficient $k$ de recombinaison de l'argon à 1 bar

Les courbes de calibration présentées figure 127 ont été obtenues avec la chambre 2 d'uranium<sup>23</sup> blindée au gadolinium (étage n°1) pour des intensités faisceau croissantes, allant de 40  $\mu\text{A}$  à 1,17 mA.

Pour une intensité faisceau égale à 40  $\mu\text{A}$ , le taux de fission attendu<sup>24</sup> à l'étage n°1 est faible :  $6,4 \cdot 10^6 \text{ f.s}^{-1}$  (cf. tableau 15). Dans ce régime, conformément aux résultats présentés au paragraphe II.2.B, les perturbations dues aux charges d'espace sont négligeables et les résultats présentés au paragraphe II.2.E sont valables. Par conséquent, l'ajustement des courbes de calibration à l'aide de la formule (II.2.56) nous permettra donc d'effectuer une mesure de référence du coefficient de recombinaison  $k$  de l'argon à une pression de 1 bar.

<sup>23</sup> Avant sa perte par dégradation de ses connecteurs (cf. paragraphe VIII.1)

<sup>24</sup> Le taux de fission mesuré vaut en fait  $4,8 \cdot 10^6 \text{ f.s}^{-1}$  (cf. tableau 24)

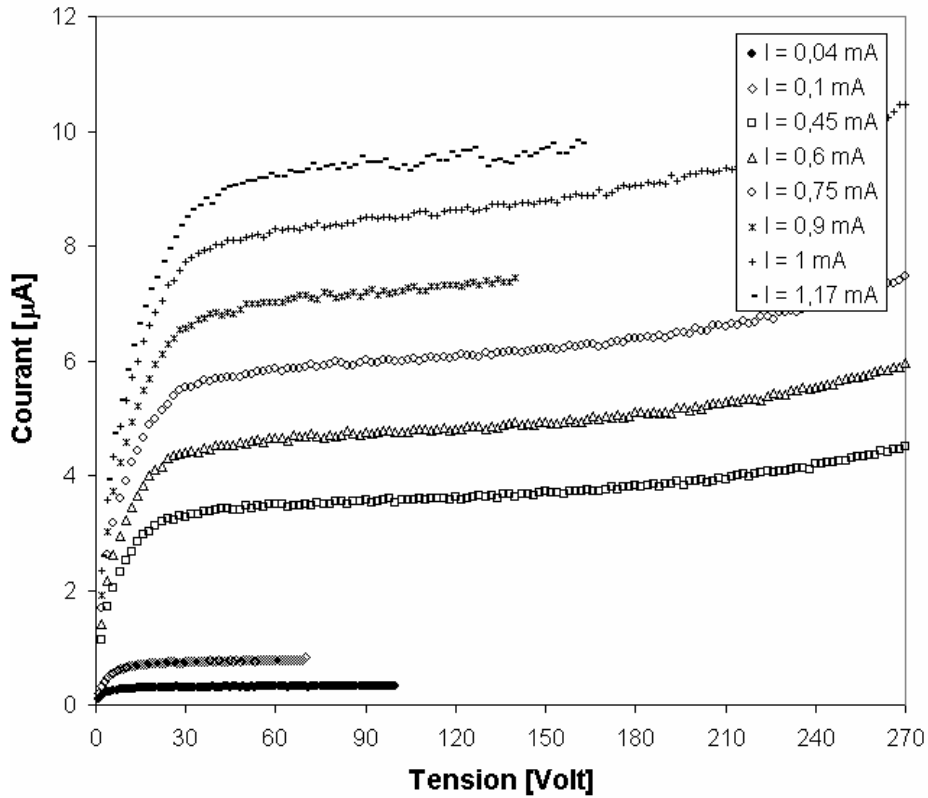


Figure 127 : Exemples de courbes de calibration enregistrées avec la chambre uranium de l'étage n°1 du DNM pour des intensités faisceau croissantes, allant de 40  $\mu\text{A}$  à 1,17 mA (masse du dépôt d'uranium 235 = 134,8  $\mu\text{g}$ , pression d'argon = 1 bar).

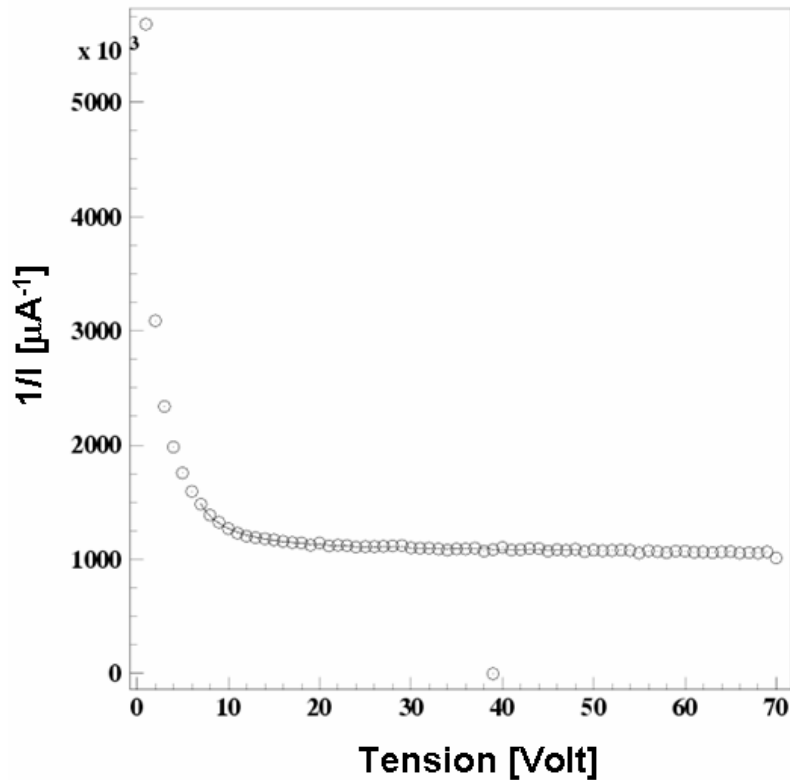


Figure 128 : Exemple d'ajustement d'une courbe de calibration expérimentale en utilisant l'expression (VIII.2.1).

Une fois corrigé du bruit de fond, le courant délivré par une chambre à fission est la somme d'un courant de fission et d'une contribution due à la résistance  $R$  de fuite des câbles. Cette contribution est faible lorsque l'intensité est de l'ordre du microampère. Toutefois, à très bas taux de fission, sa prise en compte est nécessaire et nous corrigerons donc l'expression (II.2.56) en écrivant :

$$I = \frac{\Delta V}{R} + \frac{I_{sat}}{1 + \sum_{n=1}^{+\infty} (-1)^{n+1} \lambda_n \left( \frac{kN(R_2^2 - R_1^2) \ln(R_2/R_1)^2}{\mu_e \mu_a} \right)^n} \frac{1}{\Delta V^{2n}} \quad (\text{VIII.2.1})$$

Les coefficients  $\lambda_n$  sont répertoriés au paragraphe II.2.E. En nous limitant aux 5 premiers ordres du développement en  $1/\Delta V^2$ , nous obtenons finalement  $k = (2,38 \pm 0,15) \cdot 10^{-11} \text{ m}^3 \cdot \text{s}^{-1}$ . La barre d'erreur est préliminaire, car elle prend uniquement en compte l'erreur statistique. Un exemple d'ajustement de  $1/I$  est présenté figure 128.

### VIII.3) Champ de température dans la partie basse du central rod

Les températures enregistrées par nos thermocouples à l'intérieur de la cible MEGAPIE évoluent linéairement avec l'intensité du faisceau (cf. figure 129). A 37,1 cm de la fenêtre, elles varient de 230°C<sup>25</sup> à 440°C pour un courant de protons allant de 0 à 1,4 mA.

Les mesures effectuées sont en accord avec les simulations CASTEM dans la partie basse du DNM pour un coefficient d'échange acier-PbBi de 5000 W.m<sup>-2</sup>.s<sup>-1</sup>. En revanche, lorsque l'on s'éloigne de la fenêtre de la cible, l'écart se creuse légèrement (respectivement 26°C et 29°C à 1,4 mA pour les thermocouples 2 et 3, cf. figure 129). Cette différence résulte probablement de la combinaison de trois facteurs :

- la géométrie du système {central rod + DNM} et la définition des matériaux qui le compose ont été simplifiées pour permettre un calcul raisonnable dans un temps accessible (une source d'erreur caractéristique de toute simulation),
- la conduction dans les sous-structures très fines (câbles, pièces millimétriques, etc.) du DNM est très probablement sous-estimée,
- La nature et la pression du gaz présent dans le central rod ont été modifiées. Au lieu de l'hélium pur et statique à 0,5 bar utilisé pour le calcul, le central rod est en réalité rempli d'un mélange d'hélium, de composés organiques et d'eau à des pressions variables allant jusqu'à 0,7 bar (cf. paragraphe VIII.1).

Par ailleurs, conformément aux simulations CASTEM, on constate que l'ensemble {central rod + DNM} présente une inertie significative à un changement brusque de l'intensité faisceau. Comme l'illustre la figure 130a, les températures des chambres augmentent ou diminuent lentement lorsque le faisceau de protons redémarre ou s'interrompt, avant de se stabiliser après plusieurs centaines de secondes. Une observation plus détaillée nous montre que l'évolution de la température est en fait une exponentielle parfaite du temps, dont la constante caractéristique vaut un peu moins de 60 secondes (cf. figure 130b).

<sup>25</sup> A l'arrêt du faisceau, la température est maintenue à 230°C par un système de chauffettes pour éviter tout risque de solidification de l'eutectique plomb-bismuth.

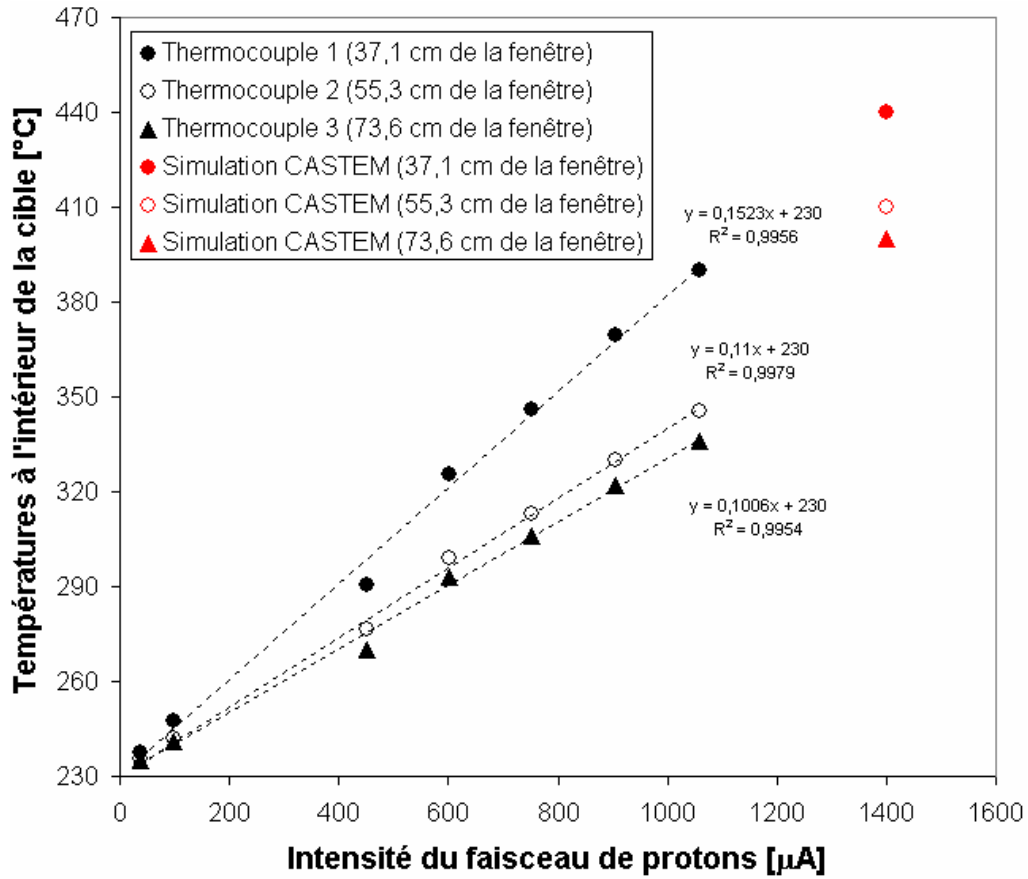
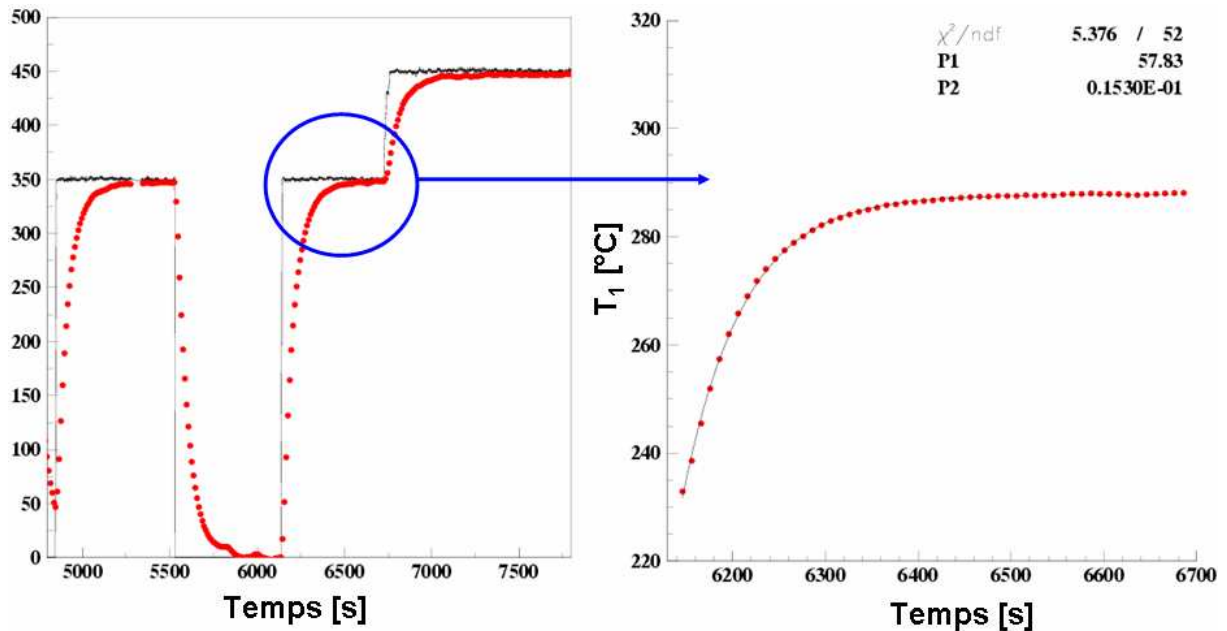


Figure 129 : Evolution des températures à l'intérieur de la cible MEGAPIE en fonction de l'intensité du faisceau de protons.



Figures 130a et 130b : Inertie de la température de l'ensemble {central rod + DNM} à un changement rapide de l'intensité faisceau (gauche). Les traits pleins correspondent au profil faisceau, donné en  $\mu\text{A}$ . Les ronds représentent l'évolution de la fonction  $6 \times (T_1 - 230^\circ\text{C})$ , où  $T_1$  est la température en degrés Celsius enregistrée par le thermocouple 1. Zoom sur une montée de la température  $T_1$  et ajustement par une exponentielle du temps (droite).

## VIII.4) Caractérisation du flux neutronique à l'intérieur de la cible MEGAPIE

A l'intérieur du Détecteur de Neutrons pour MEGAPIE, les chambres à fission sont insérées par paire à chaque étage pour une soustraction optimale du bruit de fond (cf. figure 99 et paragraphe VII.5). Ainsi, chaque chambre uranium est accompagnée d'une chambre sans dépôt. On définit  $I_F$ , courant de fission, comme étant la soustraction du courant total  $I$  (délivré par une chambre avec dépôt) et du courant de bruit  $I_B$  (donné par la chambre sans dépôt compagne). Dans le cas de la chambre d'américium, la compensation est assurée par la chambre neptunium, dont le courant de fission est négligeable ( $< 5 \%$ ) devant le bruit durant les premiers jours d'irradiation. Les rapports signal sur bruit  $I_F/I_B$  sont illustrés figure 131. En raison des faibles incertitudes de mesure sur le courant, ils sont très favorables.

Les masses des dépôts des détecteurs ont été optimisées pour que les courbes de calibration ne présentent pas de déformations excessives. Par ailleurs, dans les premiers jours d'irradiation, le taux de combustion des dépôts est négligeable (cf. figure 132 et tableau 15). Dans ces conditions, la formule (III.3.10) se simplifie et devient :

$$I_F(t) = \frac{eX_0(1+\gamma)G}{2\pi} \frac{N_a m}{M} \sigma_f \phi(t) \quad (\text{VIII.3.1})$$

où :  $\phi(t)$  est le flux de neutrons à l'instant  $t$ ,  
 $\sigma_f$ , la section efficace de fission de l'élément du dépôt,  
 $m$ , la masse du dépôt,  
 $M$ , la masse molaire de l'élément du dépôt,  
 $N_a$ , le nombre d'Avogadro,  
 $e$ , la charge électrique élémentaire,  
 $G$ , un facteur géométrique (cf. équation (II.2.7)),

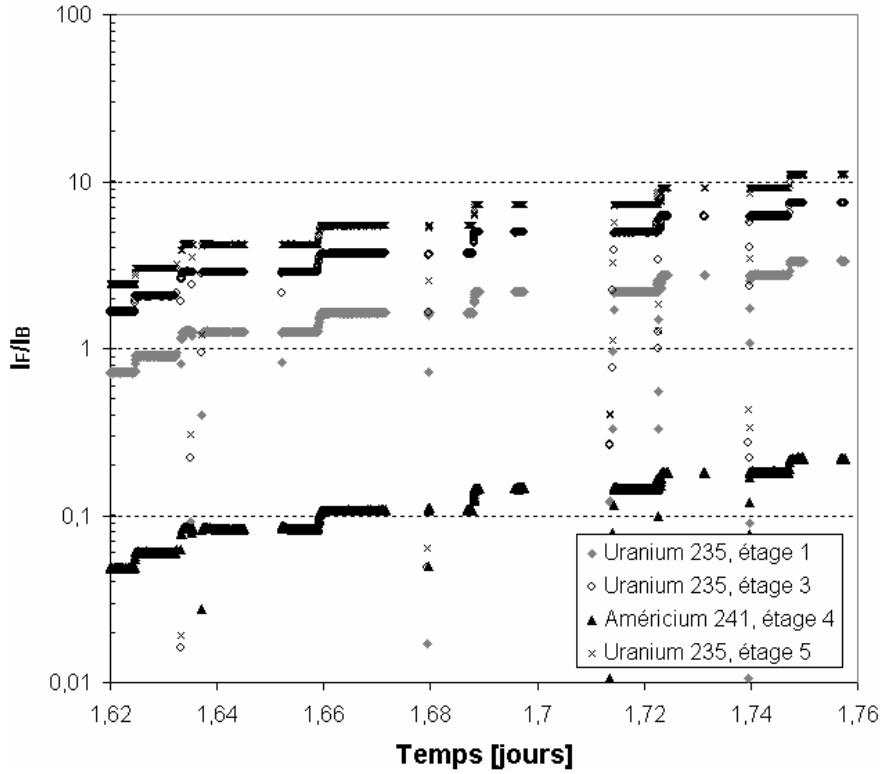
Le produit  $X_0 \times (1+\gamma)$  a été déterminé au RHF et vaut  $(1,80 \pm 0,04) \times 10^8 \text{ m}^{-1}$  pour de l'argon à un bar de pression (cf. paragraphe VII.5). On utilisera ce résultat pour tous les détecteurs (cf. tableau 10), en prenant en compte l'incertitude sur la pression des chambres (1 % maximum).

A partir de l'égalité (VIII.3.1), on obtient le produit  $\sigma_f \times \phi$ , qui est la proportion d'atomes du dépôt qui fissionnent par seconde. La mesure de cette observable est indépendante de la simulation. En revanche, son calcul MCNPX est, lui, fonction des ingrédients du code. Par conséquent, sa comparaison avec la valeur expérimentale nous permettra de tester la pertinence des simulations de neutronique [38].

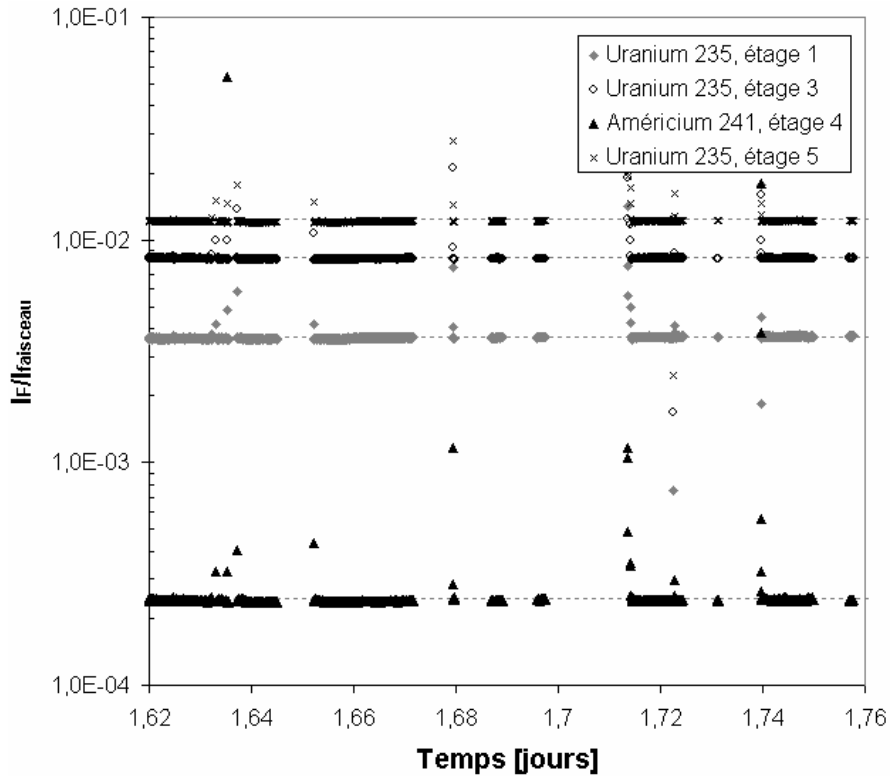
L'erreur statistique sur les produits  $\sigma_f \times \phi$  simulés est égale à 2 %. Les erreurs sur les produits  $\sigma_f \times \phi$  mesurés valent 3 % et proviennent :

- des incertitudes sur la masse des dépôts des chambres : 1,3 % (cf. paragraphe VI.4.B),
- des incertitudes sur les pressions des chambres :  $< 1 \%$ ,
- des incertitudes sur le produit  $X_0 \times (1+\gamma)$  des chambres : 2,3 % (cf. paragraphe VII.5),
- des incertitudes de mesure du courant, détaillées au paragraphe VII.5,
- des incertitudes de soustraction  $I_F = I - I_B$ , associées à la résistance des câbles :  $< 1 \%$  (à évaluer plus précisément, notamment pour les chambres n°2 et n°7)





**Figure 131** : Evolution du rapport signal sur bruit  $I_F/I_B$  au cours du temps pour les trois chambres uranium et la chambre américium en début d'irradiation.



**Figure 132** : Evolution du rapport signal sur intensité faisceau au cours du temps pour les trois chambres uranium et la chambre américium en début d'irradiation. On vérifie l'absence de combustion des dépôts dans les premiers jours de fonctionnement de la cible.

Les tableaux 24 et 25 récapitulent les résultats obtenus pour les 3 chambres uranium et la chambre américium, puis les comparent aux résultats des simulations présentés au paragraphe VI.4.A pour deux modèles de spallation différents : Bertini/Dresner (BD) et INCL4/ABLA (IA).

Etage	$\sigma_f \times \phi$ (mesure) [s <sup>-1</sup> ]	$\sigma_f \times \phi$ (calcul MCNPX + BD [38]) [s <sup>-1</sup> ]	Rapport simulation/mesure
1	4,13 10 <sup>-10</sup>	5,5 10 <sup>-10</sup>	1,33
3	3,23 10 <sup>-9</sup>	9,78 10 <sup>-9</sup>	3,03
4	1,65 10 <sup>-11</sup>	4,35 10 <sup>-11</sup>	2,64
5	1,36 10 <sup>-9</sup>	2,89 10 <sup>-9</sup>	2,13

**Tableau 24** : Valeurs des produits  $\sigma_f \times \phi$  mesurés et simulés pour une intensité faisceau de 1,2 mA (calculs MCNPX + BD). Les erreurs expérimentales et les erreurs statistiques sur la simulation valent respectivement 3 et 2 %.

Etage	$\sigma_f \times \phi$ (mesure) [s <sup>-1</sup> ]	$\sigma_f \times \phi$ (calcul MCNPX + IA [38]) [s <sup>-1</sup> ]	Rapport simulation/mesure
1	4,13 10 <sup>-10</sup>	5,3 10 <sup>-10</sup>	1,28
3	3,23 10 <sup>-9</sup>	9,02 10 <sup>-9</sup>	2,79
4	1,65 10 <sup>-11</sup>	3,96 10 <sup>-11</sup>	2,4
5	1,36 10 <sup>-9</sup>	2,69 10 <sup>-9</sup>	1,98

**Tableau 25** : Valeurs des produits  $\sigma_f \times \phi$  mesurés et simulés pour une intensité faisceau de 1,2 mA (calculs MCNPX + IA). Les erreurs expérimentales et les erreurs statistiques sur la simulation valent respectivement 3 et 2 %.

On constate que les valeurs expérimentales sont inférieures aux résultats des premiers calculs MCNPX, ce quel que soit l'étage considéré et le modèle de spallation utilisé. De plus, cet écart n'est pas constant et varie avec la distance à la fenêtre. Plusieurs pistes peuvent être à l'origine des différences observées. Tout d'abord, la modélisation du terme source (profil faisceau) se fonde sur un calcul effectué en 2001 [54]. Ce calcul cherche à reproduire l'éclatement du faisceau sur un bloc de graphite situé en amont de la cible. Si la largeur de la tache faisceau modélisée était sous-estimée, on peut envisager une modification du nombre de neutrons vus par les chambres à fission. Par ailleurs, la température de l'ensemble {modérateur + Pb-Bi} est fixée à 20°C dans la simulation, au lieu de 50°C pour le modérateur et 400°C pour le plomb-bismuth liquide (à puissance nominale). La température du modérateur peut jouer d'une dizaine de pourcents sur la composante thermique du spectre. En revanche, l'effet de la température du plomb-bismuth sur le produit  $\sigma_f \times \phi$  doit être faible. On observe en effet expérimentalement que le courant de fission  $I_F$  est strictement proportionnel à la l'intensité faisceau  $I_{fais}$  (cf. figure 132)<sup>26</sup>. Ensuite, les moniteurs de flux (et notamment la pastille de gadolinium) ne figurent pas dans les calculs. Ils sont pourtant susceptibles de réduire la composante thermique à l'étage n°3 (à l'étage n°1, le blindage au gadolinium coupe déjà tous les neutrons thermiques). D'autre part, la présence de canaux d'irradiation et d'une source froide auprès de la cible peut réduire le flux thermique mesuré. Enfin, on peut se demander si des éléments neutrophages ont été omis dans la composition de la cible. L'eutectique plomb-bismuth contiendrait en effet des quantités non négligeables de Bore.

<sup>26</sup> Si cette température avait eu un impact, son augmentation avec  $I_{fais}$  (cf. figure 129) se serait accompagnée d'une diminution de la section efficace de fission de l'uranium 235, et la proportionnalité de  $I_F$  avec  $I_{fais}$  aurait été brisée.

De nouvelles simulations, s'appuyant sur une géométrie plus complète de la cible, doivent être réalisées pour explorer les différentes pistes mentionnées précédemment. En particulier, la modélisation des chambres à fission y sera traitée de manière plus fine, en calculant le flux dans le seul volume actif des détecteurs. Les nouveaux fichiers d'entrée incluront également les moniteurs de flux. Cependant, des phénomènes complexes, tel que l'écoulement du plomb-bismuth liquide, ne pourront être pris en compte.

Nous récapitulons dans le tableau 26 les valeurs de flux obtenues en divisant les produits  $\sigma_f \times \phi$  expérimentaux par les sections efficaces de fission calculées avec MCNPX. L'évolution de ce flux de neutrons  $\phi$  au cours de la phase de mise en route de la cible MEGAPIE par paliers d'intensité faisceau croissants est portée figure 133. On observe que le temps de réponse des chambres est suffisamment court pour permettre un suivi en ligne des fluctuations de  $\phi$ . Durant cette période, nous avons vérifié que le flux  $\phi$  reste strictement proportionnel à l'intensité faisceau, en dépit de variations parfois brusques lors des coupures, des redémarrages ou des phases d'augmentation (cf. figures 126 et 134). Enfin, on notera qu'à 37 cm de la fenêtre, le flux obtenu en utilisant les sections efficaces Bertini/Dresner atteint  $3,45 \cdot 10^{13} \text{ n.cm}^{-2}.\text{s}^{-1}$  pour les neutrons d'énergies supérieures à 1 eV.

Distance à la fenêtre [cm]	% de neutrons d'énergie inférieure à 1 eV	$\phi$ (mesure) [n.cm <sup>-2</sup> .s <sup>-1</sup> ] (BD)	$\phi$ (mesure) [n.cm <sup>-2</sup> .s <sup>-1</sup> ] (IA)
37	3,76	$3,58 \cdot 10^{13}$	$3,4 \cdot 10^{13}$
50	57,16	$1,23 \cdot 10^{13}$	$1,22 \cdot 10^{13}$
60	66,45	$7,92 \cdot 10^{12}$	$7,92 \cdot 10^{12}$
74	74,3	$3,86 \cdot 10^{12}$	$3,77 \cdot 10^{12}$

**Tableau 26** : Valeurs des flux neutroniques à l'intérieur de la cible MEGAPIE, obtenues en divisant les produits  $\sigma_f \times \phi$  expérimentaux par les sections efficaces de fission calculées avec MCNPX pour deux modèles de spallation différents (intensité faisceau = 1,2 mA, BD = Bertini/Dresner, IA = INCL4/ABLA).

Les travaux effectués sur le développement et l'optimisation des chambres à fission MEGAPIE ont permis la détermination des produits  $\sigma_f \times \phi$  avec une erreur de 3 %, inférieure aux écarts constatés entre les modèles Bertini/Dresner et INCL4/ABLA. Ces résultats, importants pour la mise au point des futures sources intenses de neutrons, ont montré un désaccord notable avec les simulations. Ils illustrent ainsi la nécessité des démonstrateurs et des mesures intégrales dans le cadre des systèmes complexes. Les mesures présentées au tableau 24 nécessiteront une analyse plus fine. En effet, le courant délivré par les détecteurs est perturbé par la résistance des câbles (cf. équation (VIII.2.1)), qui évolue linéairement avec la température du DNM. L'erreur induite est faible, mais son évaluation n'est pas encore achevée pour l'ensemble des chambres (en particulier pour les détecteurs n°2 et n°7, cf. paragraphe VIII.1). L'acquisition des données se poursuivra jusqu'à l'arrêt de la cible, fin 2006. A terme, elle permettra la caractérisation du potentiel de la cible MEGAPIE en terme d'incinération/transmutation de l'américium et du neptunium. Enfin, l'analyse des moniteurs de flux, prévue pour 2008, viendra compléter les mesures effectuées par les chambres à fission. Les résultats obtenus nous permettront de vérifier les valeurs des flux thermiques (moniteurs Nb et Al-Co) et épithermiques (moniteurs Fe, Gd, Mn, Ni, Rh, Ti et Y) présentées dans ce rapport.

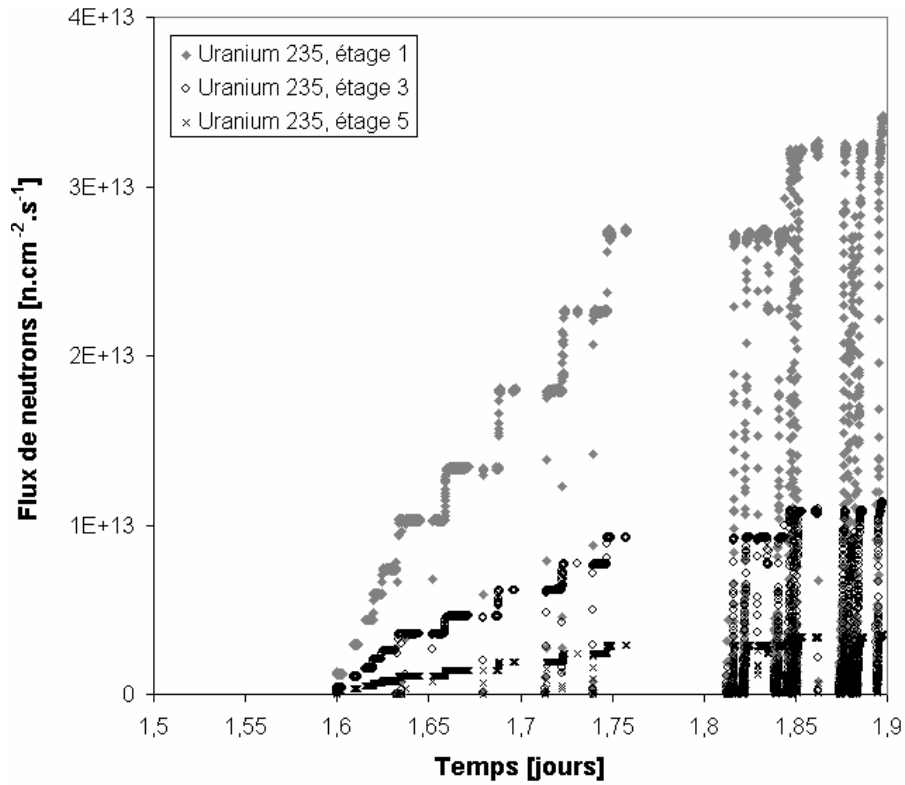


Figure 133 : Réponse des chambres à fission. Evolution au cours du temps du flux neutronique mesuré par les trois chambres uranium en début d'irradiation (sections efficaces Bertini/Dresner).

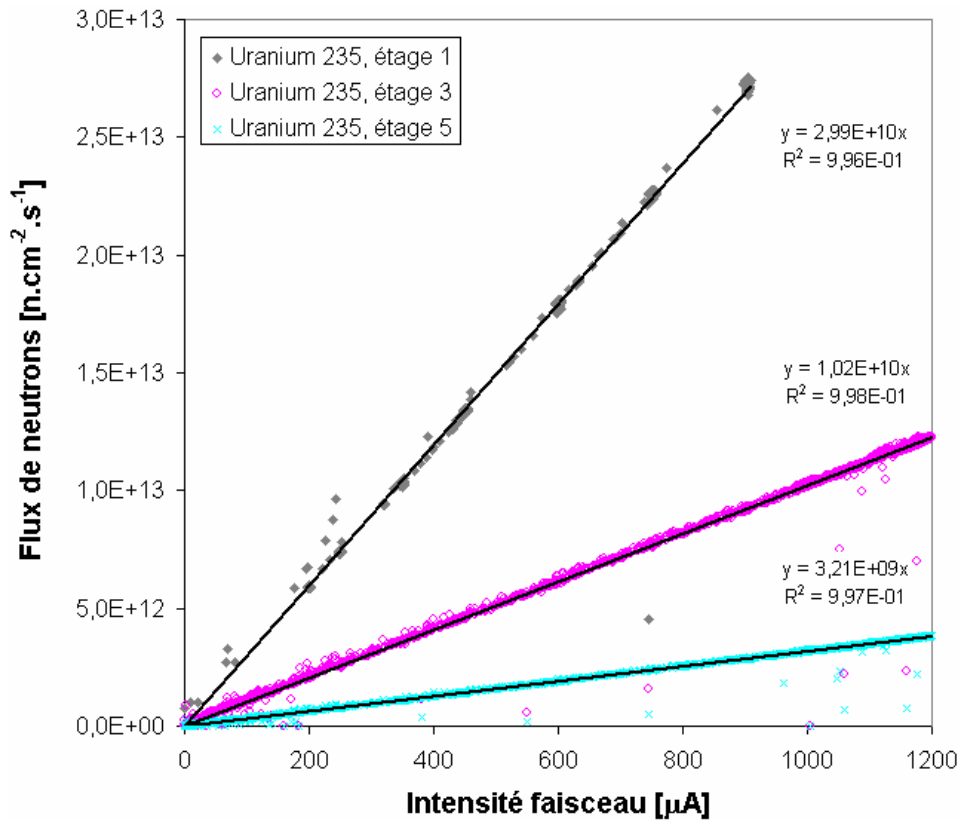


Figure 134 : Evolution du flux neutronique en fonction de l'intensité faisceau entre 1,5 et 1,9 jour (cf. figure 126) (sections efficaces Bertini/Dresner).

# CONCLUSION

Le projet MEGAPIE a pour objectif la conception et l'exploitation de la première cible de spallation liquide à haute puissance. Il s'inscrit dans la double perspective du développement des sources de neutrons intenses, d'une part, et de l'axe 1 de la loi Bataille du 30 décembre 1991 sur les déchets nucléaires d'autre part. Afin de caractériser les performances neutroniques de la cible MEGAPIE, nous avons développé un détecteur spécifique, le DNM, dont la nature et l'agencement des composants ont été méthodiquement optimisés par le calcul et l'expérience, en particulier auprès du Réacteur à Haut Flux (RHF) de l'Institut Laue Langevin (ILL). Le Détecteur de Neutrons pour MEGAPIE (DNM) est entré en service le 14 août 2006, pour une durée de fonctionnement prévue de 4 mois. Il intègre 8 micro chambres à fission, dont la fonction première est le suivi en direct des composantes thermique et épithermique du flux de neutrons à l'intérieur de la cible. Les niveaux de précision requis (5 %) sur la détermination du flux ont nécessité un important travail de modélisation théorique, qui a fait l'objet des premiers chapitres de ce rapport. Pour effectuer une mesure précise, il était en effet indispensable de comprendre et de prédire le comportement des chambres placées dans les conditions de fonctionnement extrêmes (températures élevées, flux neutronique important, perturbations électromagnétiques sévères) qui règnent au sein de la cible MEGAPIE.

En conséquence, nous avons détaillé dans une première partie les processus physiques qui se déroulent à l'intérieur d'une chambre à fission fonctionnant en mode courant. A partir des équations de base qui régissent la formation et le transport des charges électriques dans un gaz, nous avons développé une modélisation complète permettant le calcul analytique des courbes de calibration en fonction de paramètres tels que la pression du gaz de remplissage, la géométrie des chambres ou le taux de fission. La forme des courbes obtenues est en accord avec le retour d'expérience accumulé auprès du Réacteur à Haut Flux de l'Institut Laue Langevin depuis une demi-douzaine d'années. En particulier, l'écart entre théorie et expérience sur le courant à la saturation ne dépasse pas 10 %. D'autre part, les calculs reproduisent la déformation progressive des courbes de calibration et la disparition du régime de saturation lorsque le taux de fission augmente. Nous avons également calculé le taux de fission au-delà duquel les perturbations associées aux charges d'espace ne sont plus négligeables. Nous avons établi la tension à ne pas dépasser pour éviter le déclenchement massif des réactions d'ionisation secondaire. Nous prédisons à cet effet un décalage du régime d'avalanche vers les tensions basses lorsque des polluants à faible potentiel d'ionisation, tels que le xénon, s'accumulent dans le gaz de remplissage. Cette perturbation se vérifie expérimentalement et complique notablement le travail d'analyse des courbes de calibration expérimentales. Enfin, nous avons calculé la tension au premier point du plateau de saturation, avant d'établir le développement limité du courant au voisinage du point de fonctionnement. Par la suite, cette loi nous a permis de réaliser la première mesure du coefficient de recombinaison de l'argon à pression atmosphérique, à partir des courbes de calibration à très bas taux de fission issues des irradiations MEGAPIE.

Néanmoins, et quels que soient ses succès, une approche purement analytique des courbes de calibration ne peut suffire à prendre en compte les perturbations associées aux charges d'espace, dont nous avons démontré l'importance à des taux de fission élevés. Le modèle

## CONCLUSION

analytique n'incorpore pas non plus les interactions qui mettent en jeu les atomes excités du gaz de remplissage, ou les électrons issus des processus d'émission secondaire cathodique. L'intégration de ces processus physiques complexes a nécessité le développement d'un modèle numérique et d'une série de codes informatiques. Ces outils nous ont permis de déterminer les densités des électrons, des ions et des atomes métastables présents dans le gaz de remplissage en fonction de la pression, du taux de fission ou de la tension appliquée aux bornes des électrodes. Nous avons également calculé la distorsion du champ électrique induite par l'accumulation des charges d'espace dans l'espace inter électrodes à haut taux de fission. Par ailleurs, l'impact des atomes métastables et des processus d'émission secondaire sur le courant a pu être quantifié. Enfin, nous avons pu caractériser les zones de production et de destruction des charges et des atomes excités à l'intérieur du gaz. Nous avons notamment mis en évidence un déplacement des phénomènes d'avalanche de l'anode vers la cathode quand le taux de fission augmente. Nous avons par ailleurs estimé le degré de pulvérisation du métal de la cathode induit par le bombardement ionique ou l'impact des produits de fission. Les résultats obtenus à l'aide du modèle numérique ont permis le développement d'une nouvelle technique d'analyse des courbes de calibration, qui s'appuie sur l'étude du régime d'avalanche plus que sur le relevé du point d'inflexion. Cette méthode réduit les erreurs commises sur la détermination du flux neutronique, tout en s'affranchissant des perturbations associées à la contamination progressive de l'argon des chambres par les produits de fission gazeux ou les atomes d'oxygène issus du dépôt. Si les procédures numériques que nous avons mises en place reproduisent correctement les courbes de calibration à des tensions de fonctionnement conventionnelles, il nous reste cependant des progrès à réaliser à basse tension, principalement en ce qui concerne l'intégration des processus de diffusion des charges.

Au fur et à mesure de nos progrès dans la compréhension du fonctionnement des chambres, nous avons remarqué qu'une réduction de leur gap inter électrodes facilite la détermination d'un flux neutronique élevé, tout en limitant les perturbations qui accompagnent généralement les mesures à haut taux de fission (déformation des courbes de calibration, disparition de la zone de saturation, charges d'espace, etc.). Ce constat nous a amené à développer des concepts novateurs de détecteurs, à gap réduit et triple corps, dont les avantages sont énumérés à la fin de la première partie de ce rapport. Les prototypes de ces nouvelles chambres, testés auprès du RHF de Grenoble, ont donné des résultats prometteurs, en permettant notamment des mesures innovantes de sections efficaces.

Parallèlement aux études menées sur le comportement des chambres à fission, le choix et l'agencement des composants du DNM a nécessité un important travail d'optimisation, détaillé dans les premiers chapitres de la deuxième partie. Ces travaux ont été étayés par des simulations de thermique et de neutronique complètes. Les calculs de thermique, effectués avec le logiciel CASTEM, indiquent une température de fonctionnement proche de 400°C en régime nominal. Ce chiffre élevé nous a conduit à effectuer des modifications du design initial de nos chambres, appuyées par des analyses au microscope électronique à balayage indispensables pour vérifier la bonne tenue des dépôts à température élevée. A partir des estimations de flux et de spectres neutroniques obtenues avec le code MCNPX, nous avons adapté la masse des dépôts de chaque détecteur, afin que leur taux de fission maximal ne dépasse pas  $10^9$  f.s<sup>-1</sup>. Cette valeur représente en effet le seuil au delà duquel apparaissent les premiers signes de déformation rédhibitoire du régime de saturation pour une chambre de type MEGAPIE. Les masses des dépôts d'uranium 235 ont été déterminées par spectrométrie gamma, afin de réduire les erreurs sur la détermination des flux neutroniques. Les tailles, les épaisseurs et les compositions des moniteurs de flux insérés à l'étage n°2 du DNM ont été

## CONCLUSION

optimisées à l'aide du logiciel CINDER, afin que les radioéléments utiles à la caractérisation des différentes composantes du flux neutronique restent détectables par spectrométrie gamma après un an de refroidissement. Les organes du DNM ont été méthodiquement testés en conditions de fonctionnement réelles auprès du RHF de l'ILL pendant trois ans. L'endurance des câbles et de l'électronique d'acquisition y ont été progressivement améliorées puis validées. A l'instar de la connectique, les chambres à fission prototypes de type MEGAPIE ont démontré leur robustesse et leur précision. L'association d'une chambre uranium et d'une chambre sans dépôt permet une compensation efficace du bruit issu du rayonnement gamma. Les niveaux de flux mesurables avec une précision supérieure à 5 % atteignent  $10^{15}$  n.cm<sup>-2</sup>.s<sup>-1</sup>. Les chambres ont réalisé sans difficulté un suivi en ligne des fluctuations, lentes comme rapides, d'un flux neutronique élevé jusqu'à combustion complète de leurs dépôts. On indiquera également que l'ajustement des courants délivrés au cours du temps par ces détecteurs sur un cycle complet d'irradiation fournit la valeur du produit  $X_0 \times (1+\gamma)$  de l'argon, qui vaut  $(1,80 \pm 0,04) \times 10^8$  m<sup>-1</sup> à une pression de 1 bar. Par ailleurs, l'utilisation des nouveaux modèles de chambres triple corps a permis d'effectuer la mesure des sections efficaces de fission du neptunium 238 et de capture du plutonium 238 en une seule irradiation. Ces mesures, obtenues dans un flux thermique, contraignent les valeurs répertoriées dans les bases de données nucléaires et serviront de référence pour les études de transmutation effectuées à MEGAPIE.

Enfin, le dernier chapitre de ce rapport récapitule les premiers résultats obtenus auprès de l'expérience MEGAPIE. En dépit de conditions de fonctionnement dégradées, les chambres à fission et les thermocouples implantés dans le DNM ont permis de dresser la carte des flux neutroniques et des températures qui règnent en cœur de cible. Pour une intensité faisceau de 1,2 mA, la température s'échelonne ainsi de 360 à 420°C le long de la partie basse du central rod. L'inertie thermique de l'ensemble {central rod + DNM} à un changement brusque de l'intensité faisceau est élevée et vaut 60 secondes environ. Les travaux de développement et d'optimisation des chambres MEGAPIE ont permis la détermination des produits  $\sigma_f \times \phi$  à chaque étage du DNM avec une erreur inférieure à 3 %. A l'aide de ces résultats, nous évaluons le flux de neutrons épithermiques ( $E > 1$  eV) à 37 cm de la fenêtre à  $3,4 \cdot 10^{13}$  n.cm<sup>-2</sup>.s<sup>-1</sup>. Le flux de neutrons vaut également  $1,2 \cdot 10^{13}$ ,  $7,9 \cdot 10^{12}$  et  $3,9 \cdot 10^{12}$  n.cm<sup>-2</sup>.s<sup>-1</sup> à 50, 60 et 74 cm de la fenêtre. Ces valeurs sont notablement inférieures aux données des simulations MCNPX. Des calculs plus précis sont par conséquent en cours. Toutefois, ces premières données ont souligné l'intérêt des mesures intégrales, incontournables dans le cadre des dispositifs complexes. Enfin, on notera que l'ajustement des courbes de calibration enregistrées à très bas taux de fission a permis la détermination du coefficient de recombinaison de l'argon pour 1 bar de pression :  $k = (2,4 \pm 0,2) \times 10^{-11}$  m<sup>3</sup>.s<sup>-1</sup>.

Le retour d'expérience acquis auprès du RHF et de MEGAPIE offre plusieurs conclusions et perspectives intéressantes. En particulier, nous avons validé le concept de chambres uranium 235 blindées au gadolinium pour la mesure de la composante épithermique d'un flux de neutrons. Malgré des difficultés d'usinage inhérentes aux propriétés mécaniques du gadolinium, ce blindage demeure en effet plus simple et plus efficace qu'un recours à un dépôt de plutonium 242, dont la grande sensibilité aux traces d'éléments fissiles en thermique nécessite un degré de pureté inatteignable. Par ailleurs, l'électronique et la connectique associées aux détecteurs ont donné toute satisfaction. Nous conseillerons néanmoins la prudence en ce qui concerne les risques de claquage des connecteurs en présence d'un gaz dégradé. Enfin, la fiabilité et la précision des chambres prototypes employées à l'ILL et à MEGAPIE dans des conditions difficiles (pollution électromagnétique, températures élevées, flux et fluences extrêmes) ouvre la voie à de nouvelles applications auprès des réacteurs haut

## CONCLUSION

flux de nouvelle génération, tels le RJH ou les centrales Gen-IV. Les températures de fonctionnement des chambres atteignent en effet 600°C. Si l'on souhaite les implanter à l'intérieur de réacteurs dotés d'échangeurs sodium-gaz (800°C) ou de centrales VHTR (1000°C), des développements technologiques additionnels seront toutefois nécessaires pour augmenter la résistance de leurs passages étanches, de leurs soudures et de leurs câbles. Nous recommanderons enfin l'utilisation de chambres triple corps/gap réduit/krypton, dont la technologie novatrice permettra une meilleure cartographie du flux neutronique et du bruit de fond, tout en autorisant l'accès à des niveaux de flux supérieurs à  $10^{15}$  n.cm<sup>-2</sup>.s<sup>-1</sup>.

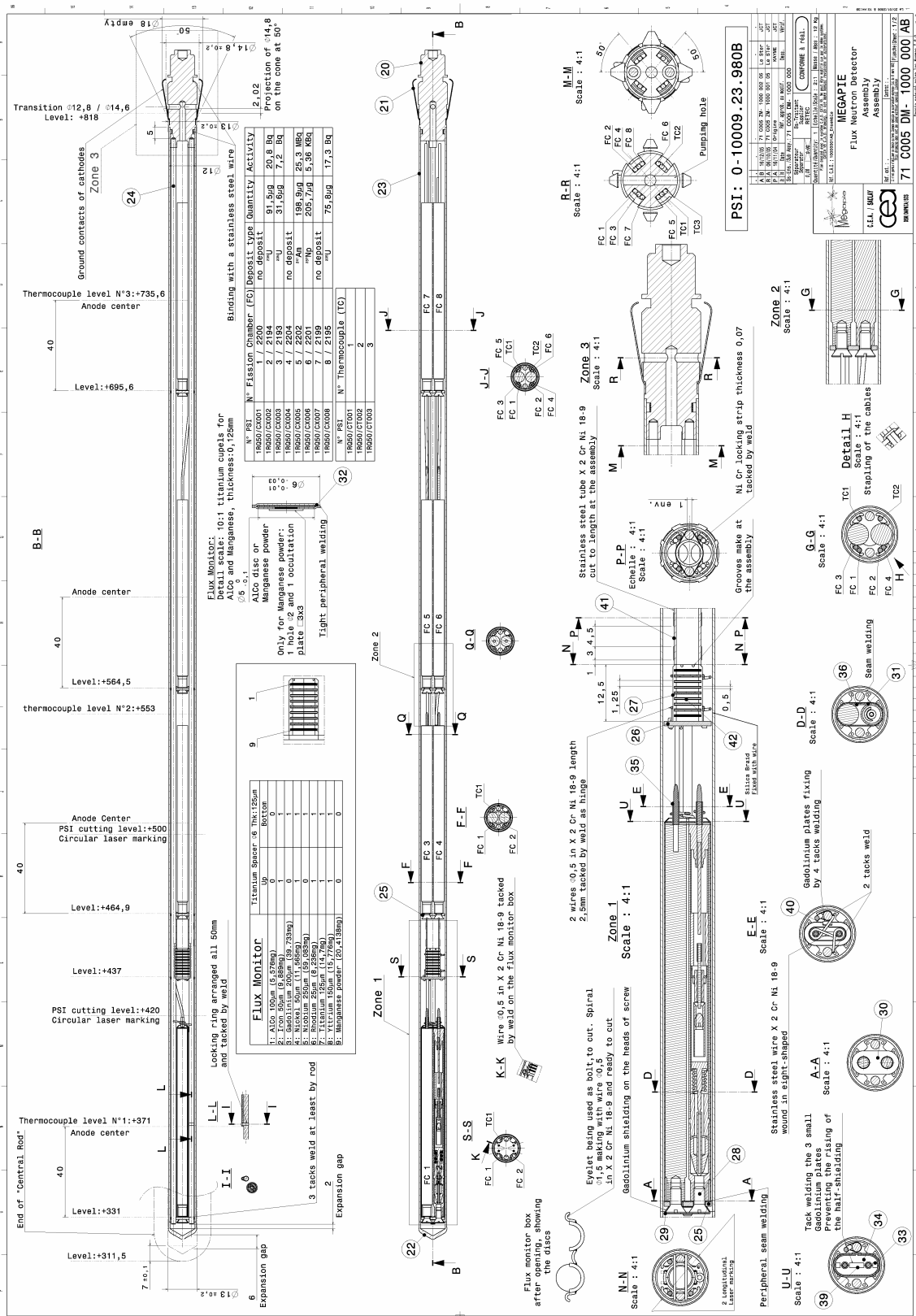


# BIBLIOGRAPHIE

- [1] G. Fioni et al, Nucl. Phys. A693 (2001) 546
- [2] F. Marie et al, ND2004, Proceedings of International Conference on Nuclear Data for Science and Technology, Sept. 26 – Oct. 01 2004, Santa Fe, USA
- [3] A. Letourneau et al, ND2004, Proceedings of International Conference on Nuclear Data for Science and Technology, Sept. 26 – Oct. 01 2004, Santa Fe, USA
- [4] *Stratégie et programmes des recherches sur la gestion des déchets radioactifs et à vie longue, acquis et perspectives*, rapport, Direction de la technologie du Ministère de la Recherche (2004)
- [5] S. Chabod et al, *Modelling of fission chambers in current mode – analytical approach*, NIM A 566 (2006) 633-653
- [6] O. Poujade, A. Lebrun, NIM A 433 673-682 (1999)
- [7] Disponible en freeware sur le site [www.srim.org](http://www.srim.org)
- [8] Rapport ICRU, *Average energy required to produce an ion pair* (1979)
- [9] St. Behle et al, Plasma Sources Sci. Technol. 9 57-67 (2000)
- [10] A. Zastawny, NIM A 385 239-242 (1997)
- [11] C. S. Lakshminarasimha et al, J. Phys. D, Appl. Phys. Vol. 10, 313-321 (1997)
- [12] Disponible en freeware sur le site [www.siglo-kinema.org](http://www.siglo-kinema.org)
- [13] L. Onsager, Phys. Rev. Vol. 54 554-557 (1938)
- [14] I. S. Grigoriev, E. Z. Meilikhov, Handbook of Physical Quantities (CRC Press, Inc.) (1997)
- [15] K. Shinsaka et al, J. Chem. Phys. 88 (12) (1988)
- [16] S. Flügge, G. Francis, Phys. Handbook, Vol. 22, *Gas Discharges II* (Springer-Verlag, Berlin) (1956)
- [17] M. A. Biondi, Phys. Rev. 129 3 1181-1188 (1963)
- [18] Atomic Data and Nuclear Data Tables n°17, *Transport properties of gaseous ions over a wide energy range* (1976)
- [19] J. A. Hornbeck, Phys. Rev. Vol. 84, n°4, 615-620 (1951)
- [20] S. Robertson et al, Phys. Rev. E 67 046405 (2003)
- [21] A. Babuty, rapport de stage effectué sous la direction de S. Chabod et la responsabilité de S. Panebianco (2006)
- [22] W. L. Borst, Phys. Rev. A 9(3), 1195-1200 (1974)
- [23] N. J. Mason, W. R. Newell, J. Phys. B, At. Mol. Phys. 20 1357-1378 (1987)
- [24] C. M. Ferreira, J. Loureiro, J. Appl. Phys. 57(1) 82-90 (1984)
- [25] Données issues du site <http://physics.nist.gov>
- [26] N. E. Small-Warren, L. Chow Chiu, Phys. Rev. A, Vol. 11, n°6 (1975)
- [27] D. Thon-That, M. R. Flannery, Phys. Rev. A 15(2) 517-526 (1977)
- [28] J. H. Kolts, D. W. Setser, J. Chem. Phys. 68(11), 4848-4859 (1978)
- [29] C. Ablitzer, rapport interne
- [30] A. V. Phelps, J. P. Molnar, Phys. Rev. Vol. 89, n°6, 1202-1208 (1953)
- [31] B. Chapman, *Glow Discharge Processes* (John Wiley & Sons, New York) (1980)
- [32] P Sigmund, Phys. Rev. 184 n°2 383-416 (1969)
- [33] H. Oechsner, Phys. Rev. B 17 (3) 1052-1056 (1978)
- [34] Site Internet <http://sinq.web.psi.ch>
- [35] G. S. Bauer et al, *MEGAPIE, a 1 MW Pilot Experiment for a liquid Metal Spallation Target*, PSI\_BQ87/GK87\_28.06.2002

- [36] M. Salvatores et al, *the MEGAPIE initiative*, rapport MPO-1-GB-6/0\_GB, Institut Paul Scherrer, Zurich (1999)
- [37] S. Chabod et al, *Neutron flux characterization of MEGAPIE target*, NIM A 562 (2006) 618
- [38] Y. Foucher, *Feasibility study of the neutron flux measurements in the MEGAPIE target using fission micro chambers*, rapport interne
- [39] J.C. Toussaint, rapport interne
- [40] J.C. David et al, *Spallation Neutron Production on Thick Target at Saturne*, Proceedings of the International Workshop on Nuclear Data for the Transmutation of Nuclear Waste, GSI-Darmstadt, Germany, September 1-5, 2003, ISBN 3-00-012276-1
- [41] H. Mayer-Leibnitz, B. Jacrot, *But de l'Institut Max Von Laue – Paul Langevin. Organisation et structures scientifiques*, rapport ILL (1971)
- [42] Site Internet [www.ill.fr](http://www.ill.fr)
- [43] M. Fadil, *Mise au point d'une méthodologie innovante pour la mesure du potentiel d'incinération d'actinides mineurs sous des sources très intenses de neutrons, dans la perspective de transmutation des déchets nucléaires*, thèse INPG (2003)
- [44] A. Letourneau et al, *Effect of a non-maxwellian component of the neutron flux in the determination of minor actinides thermal cross sections*, rapport interne CEA/DAPNIA-03-243 (2003)
- [45] P. Lotrus, rapport interne
- [46] A. Letourneau, S. Chabod et al, *Incineration of  $^{237}\text{Np}$  induced by thermal neutrons*, à publier
- [47] Y. Danon et al, Nucl. Science and Eng. 124 482 (1996)
- [48] S. Abramovich et al, 13<sup>th</sup> Meeting on Physics of Nuclear Fission, Obninsk 303 (1995)
- [49] J.P. Butler et al, Can. Journal of Chemistry Vol. 34 253 (1956)
- [50] J.P. Butler et al, Can. Journal of Physics Vol. 35 147 (1957)
- [51] R.J. Bruehlman et al, Argonne National Laboratory report series, n°4215 17 (1948)
- [52] E.K. Hulet et al, Phys. Rev. Vol. 107 1294 (1957)
- [53] O. Bringer, rapport interne
- [54] Y. Foucher, *Etude et développement d'une cible de spallation*, thèse Université de Nantes

# ANNEXE A : Schéma technique du DNM



Plan 1 : Dessin technique du premier tronçon du DNM.



# ANNEXE B : Activité des moniteurs de flux

Les graphiques suivants présentent l'évolution au cours du temps de l'activité des moniteurs de flux insérés dans le DNM après 4 mois d'irradiation continue.

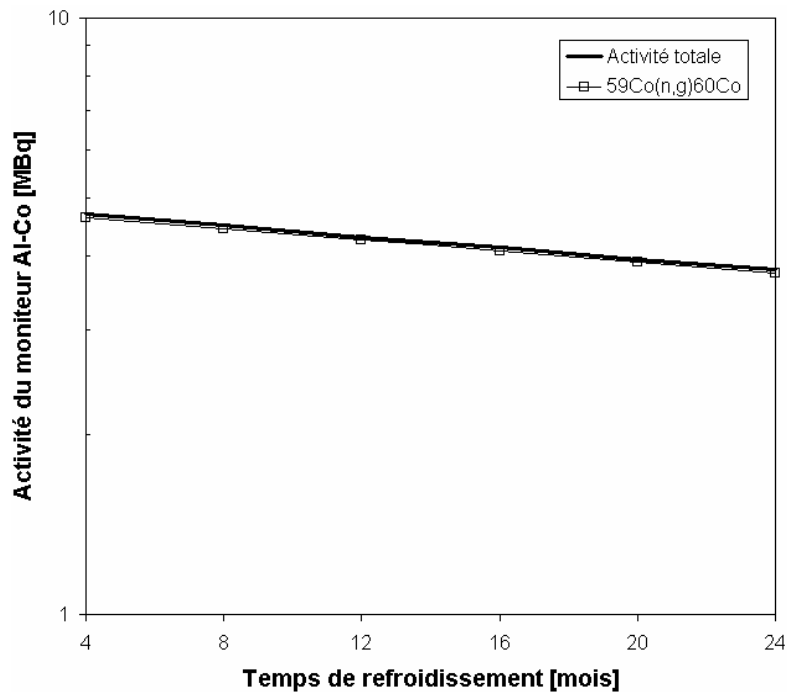


Figure 1 : Evolution de l'activité du moniteur Al-0,1%Co.

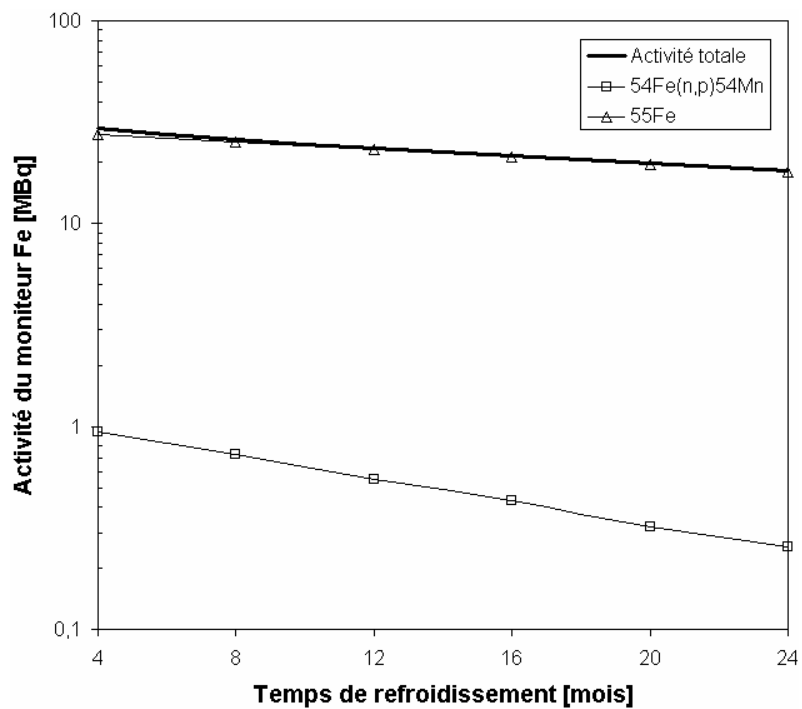


Figure 2 : Evolution de l'activité du moniteur fer.

ANNEXE B

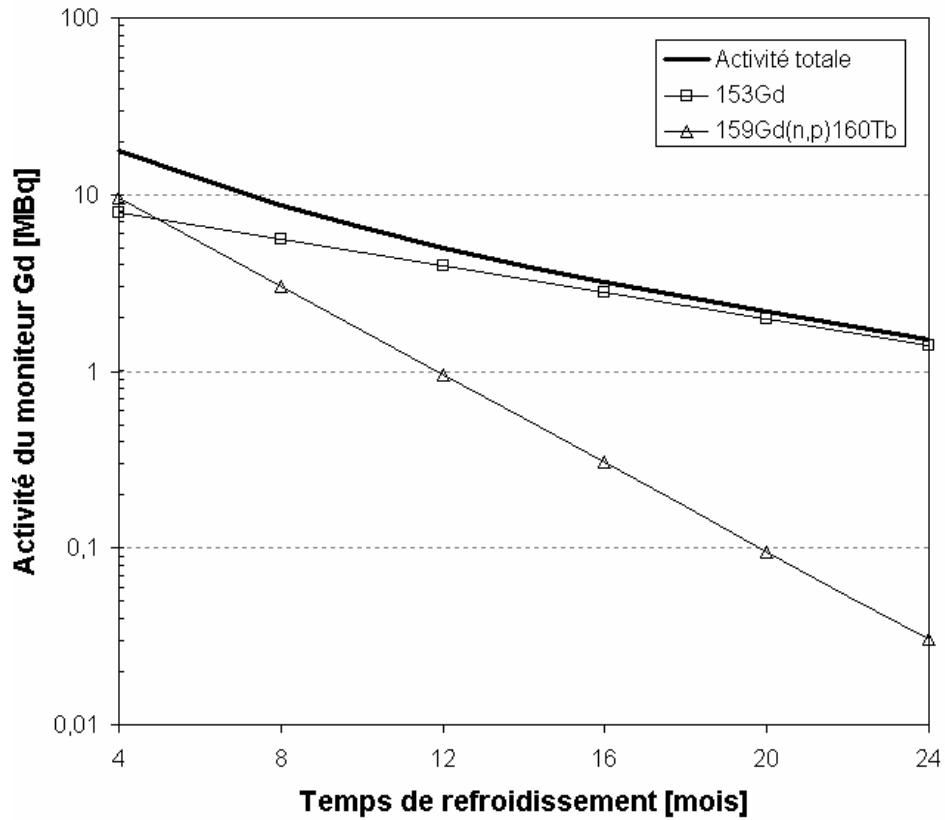


Figure 3 : Evolution de l'activité du moniteur gadolinium.

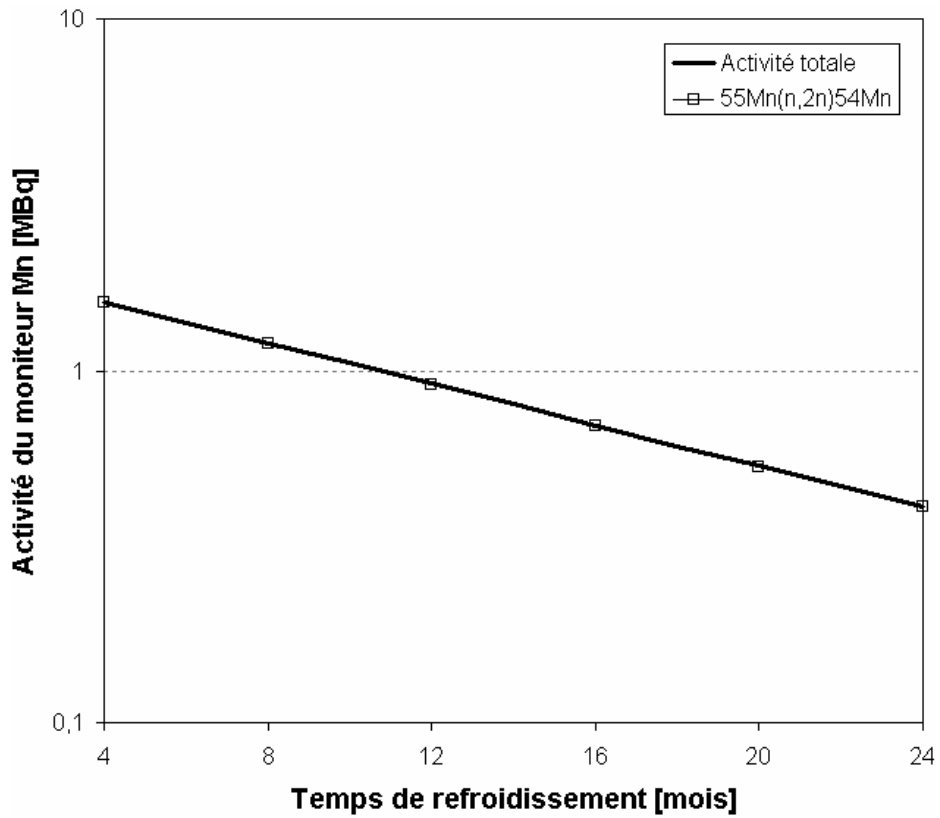


Figure 4 : Evolution de l'activité du moniteur manganèse.

ANNEXE B

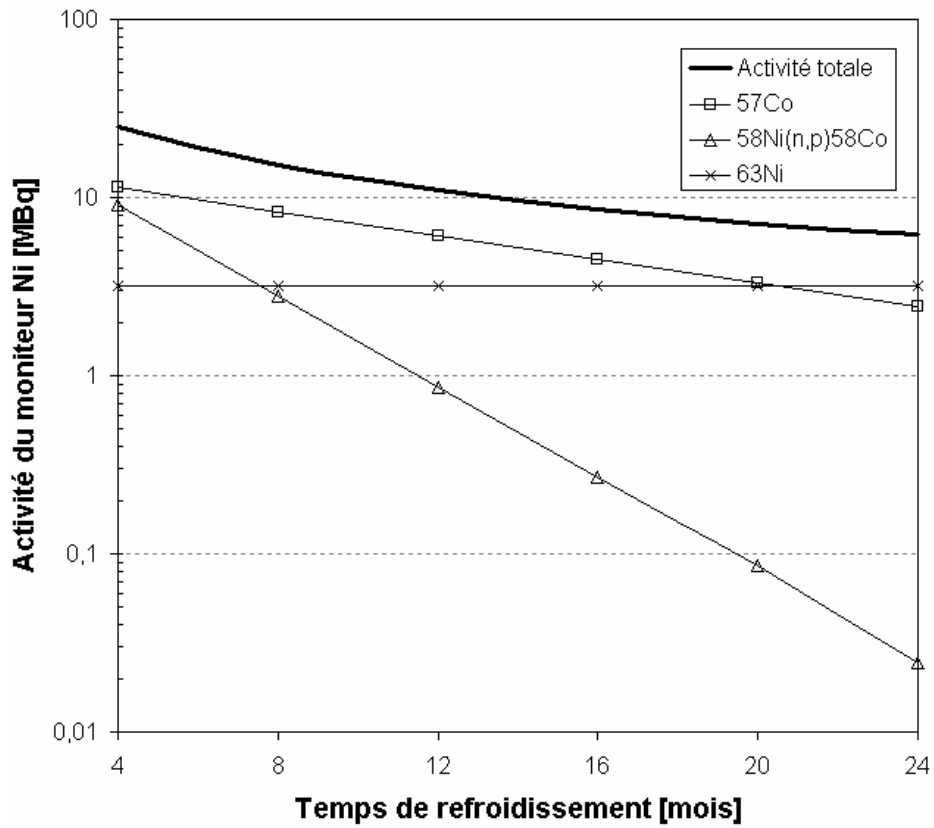


Figure 5 : Evolution de l'activité du moniteur nickel.

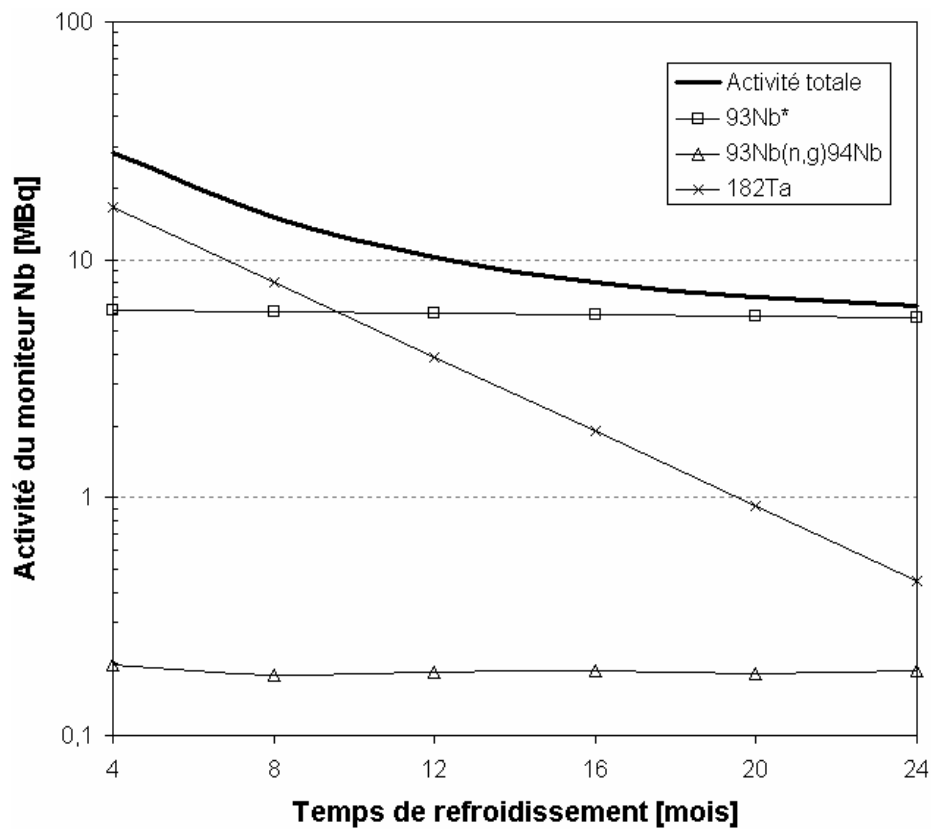


Figure 6 : Evolution de l'activité du moniteur niobium.

ANNEXE B

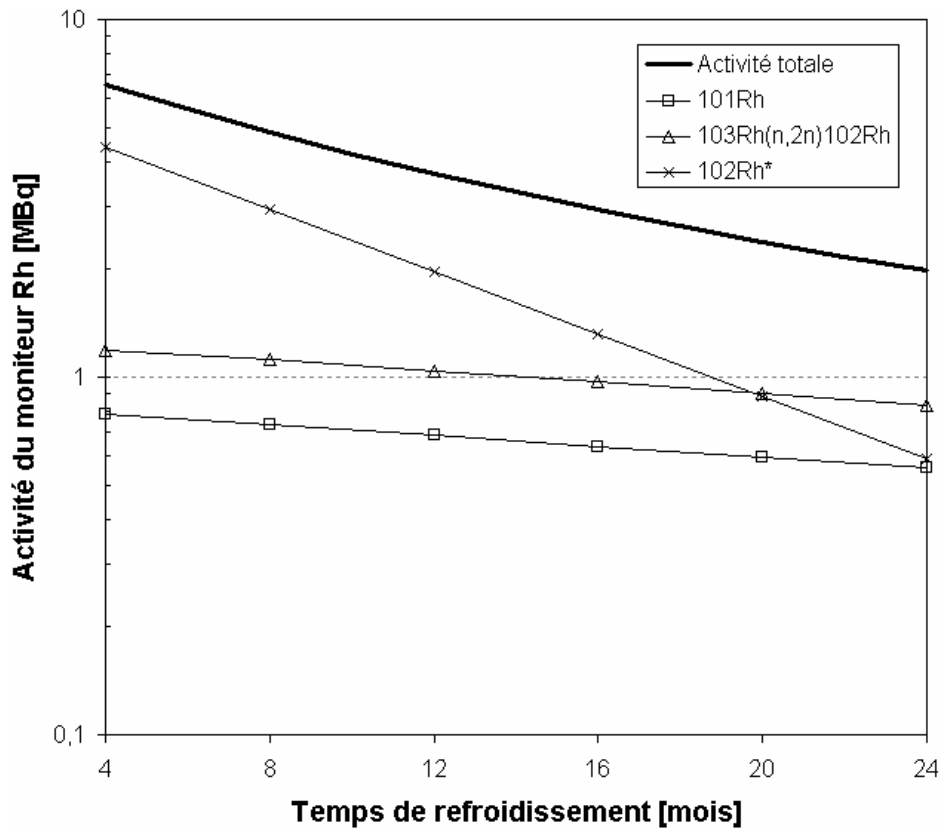


Figure 7 : Evolution de l'activité du moniteur rhodium.

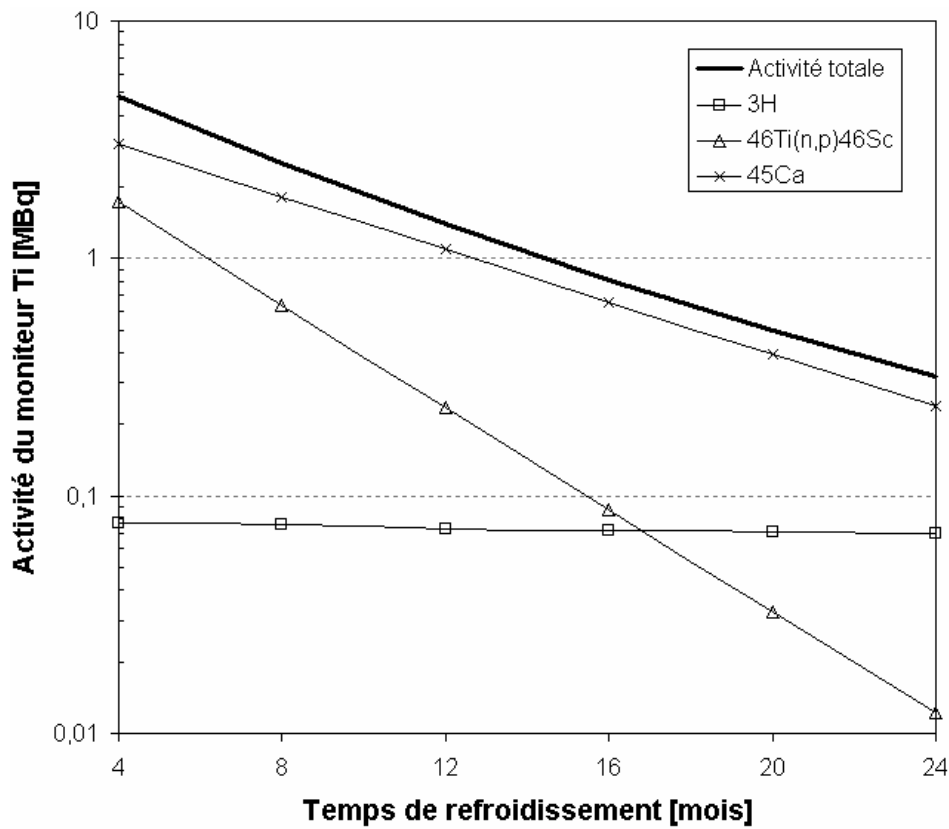


Figure 8 : Evolution de l'activité du moniteur titane.



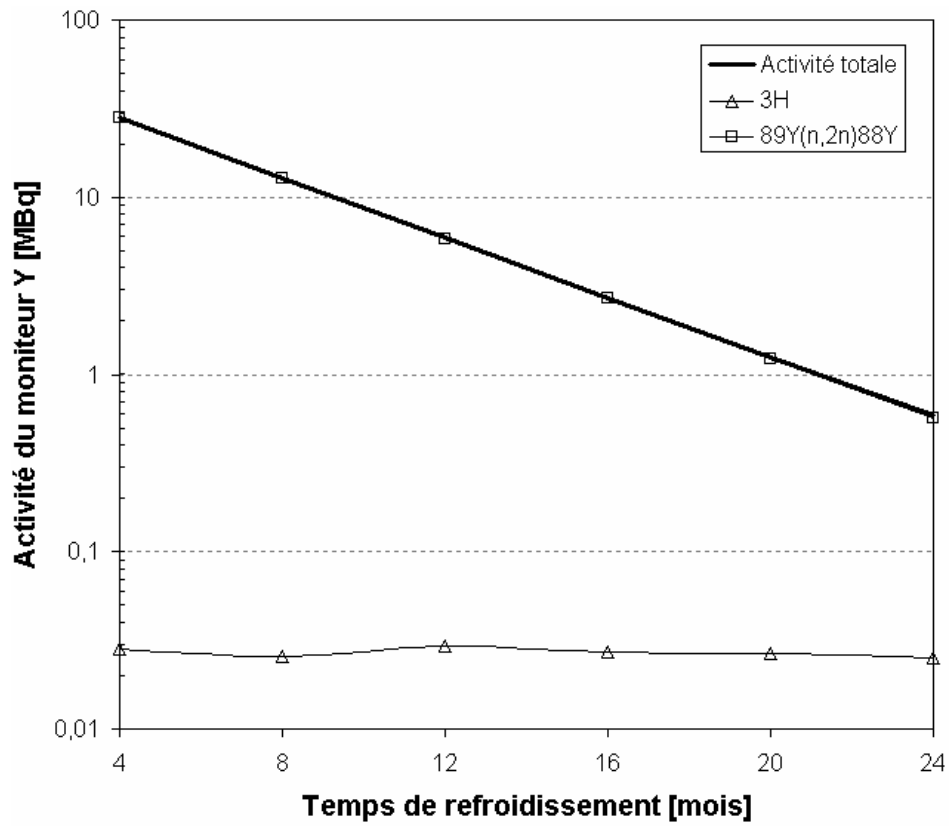


Figure 9 : Evolution de l'activité du moniteur yttrium.

# ANNEXE C : Activation des chambres à fission dans le canal V4 du RHF de l'ILL

Les principaux éléments présents dans une chambre à fission de type CFUT-C3 et susceptibles d'être activés sont :

- l'acier inox (anode, porte dépôt, corps de chambre),
- l'aluminium (passages étanches),
- le dépôt fissile,
- le titane TA6V (cathode).

Nous avons également étudié le comportement sous flux de l'argon du gaz de remplissage. Les compositions en pourcentage des alliages inox et titane sont récapitulées dans les tableaux 1 et 2 :

Elément	acier inox (anode)
B	0,0016
C	0,043
Co	0,034
Cr	17,31
Fe	reste
Mn	1,16
N	0,31
Ni	9,75
P	0,03
S	0,011
Si	0,08

Elément	titane TA6V (cathode)
Al	10,46
C	0,095
Fe	0,15
H	0,14
N	0,026
O <sub>2</sub>	0,43
Ti	reste
V	3,48

**Tableaux 1 et 2 :** Composition en pourcentage de l'acier inox (gauche) et du titane TA6V (droite).

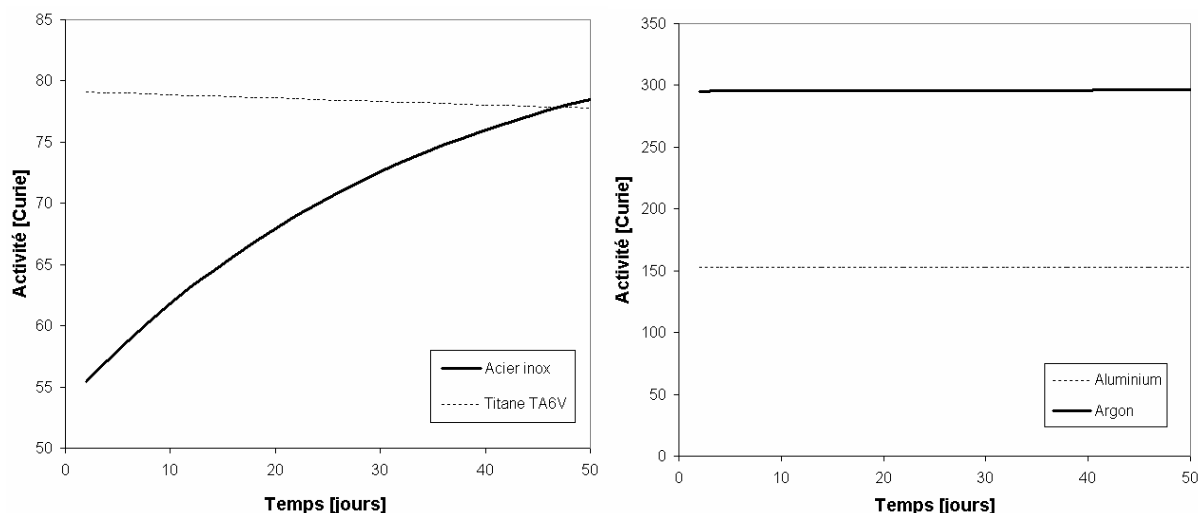
Les tableaux 2 et 3 donnent respectivement les masses des pièces qui constituent une chambre CFUT-C3 et la composition standard d'un dépôt d'uranium en pourcentage.

Composant	Masse [g]
gaz (argon)	$2,5 \cdot 10^{-4}$
anode (inox)	0,14
cathode (TA6V)	0,23
jupe (inox)	0,65

Elément	dépôt d'uranium
<sup>234</sup> U	0,063
<sup>235</sup> U	98,49
<sup>236</sup> U	0,038
<sup>238</sup> U	1,409

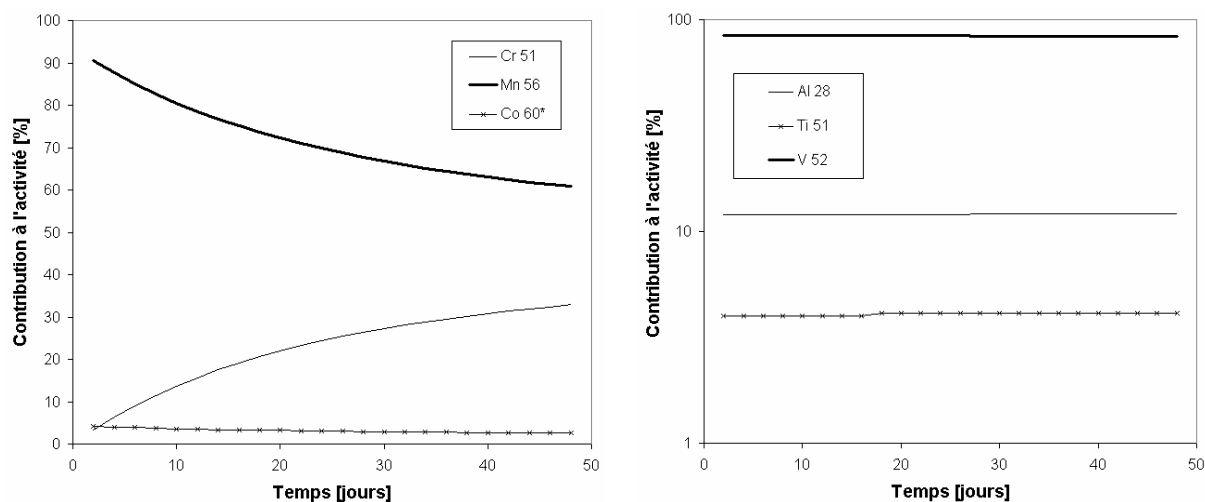
**Tableaux 2 et 3:** Masse des composants employés dans une chambre CFUT-C3 (gauche), composition en pourcentage d'un dépôt d'uranium (droite).

Pour étudier l'activation des chambres au RHF, nous avons effectué des calculs d'évolution à l'aide du logiciel CINDER. Les simulations reproduisent les conditions d'irradiation en position 25 du canal V4. Pour rappel, le flux y atteint  $10^{15} \text{ n.cm}^{-2}.\text{s}^{-1}$ , avec une composante épithermique à 15 %. La période d'irradiation est continue et dure un cycle réacteur complet, soit une cinquantaine de jours.



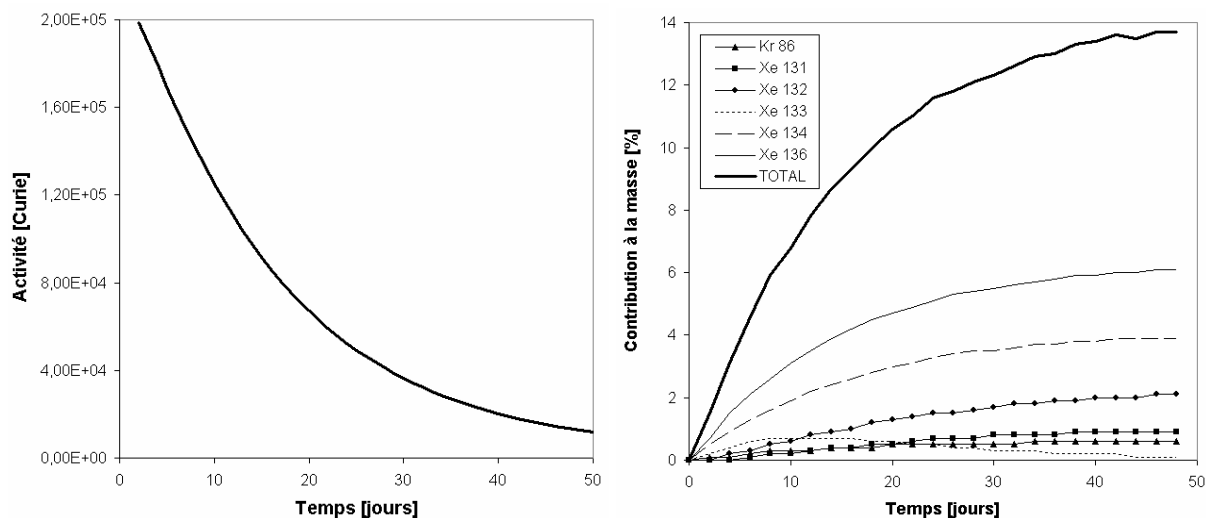
**Figures 1 et 2** : Evolution au cours du temps des activités d'un gramme d'acier inox et de titane TA6V (gauche), et d'un gramme d'aluminium et d'argon pur (droite) en position 25 du canal V4.

On remarquera que les activités du titane TA6V, de l'argon et de l'aluminium saturent rapidement (cf. figures 1 et 2). En revanche, l'activité de l'acier croît, elle, continûment.



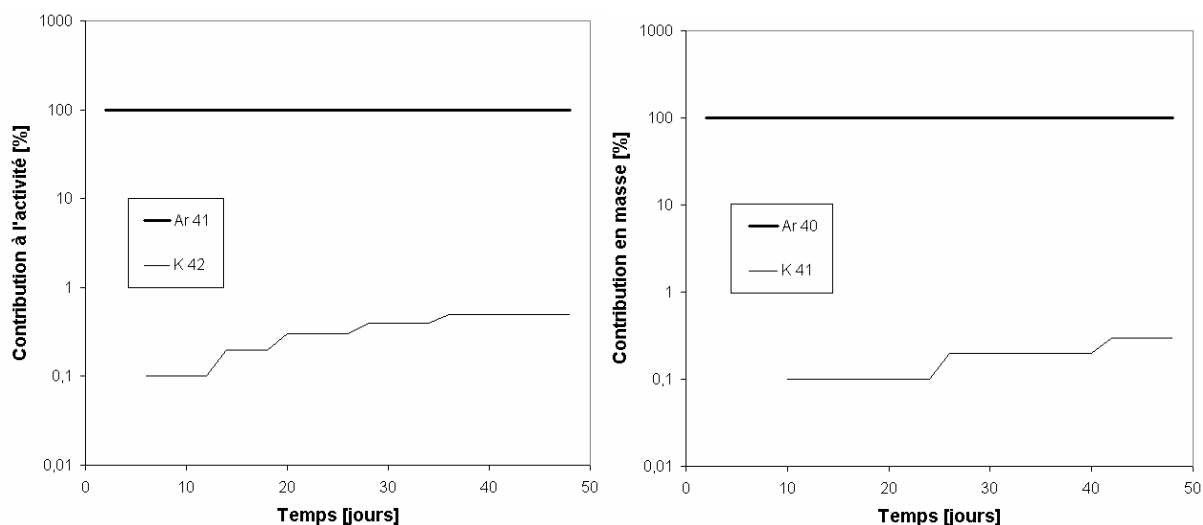
**Figures 3 et 4** : Eléments contribuant le plus aux activités de l'acier inox (gauche) et du titane TA6V (droite).

En début d'irradiation, l'activité de l'acier inox est dominée à 91 % par le manganèse 56 (durée de vie 2,58 heures, émetteur  $\beta$ ). Puis, la contribution du chrome 51 (durée de vie 27,7 jours, émetteur X) augmente progressivement et passe à 33 % après 50 jours d'irradiation (cf. figure 3). En ce qui concerne le titane TA6V, les éléments qui contribuent le plus à son activité sont le titane 51 à 4 % (durée de vie 5,76 minutes, émetteur  $\beta$ ), l'aluminium 28 à 12 % (durée de vie 2,24 minutes, émetteur  $\beta$ ) et le vanadium 52 à 84 % (durée de vie 3,74 minutes, émetteur  $\beta$ ) (cf. figure 4). Pour l'aluminium et pour l'argon, l'essentiel de l'activité provient respectivement de l'aluminium 28 à 100 %, et de l'argon 41 à plus de 99,5 % (durée de vie 109,34 minutes, émetteur  $\beta$ ).



**Figures 5 et 6** : Evolution au cours du temps de l'activité d'un gramme d'uranium 235 pur en position 25 du canal V4 (gauche) et contribution des produits de fission gazeux à la masse du dépôt (droite).

L'activité d'un dépôt d'uranium 235 diminue rapidement au cours du temps avec la combustion des noyaux fissiles et la décroissance des produits de fission (cf. figure 5). On remarquera qu'une part importante des produits de fission est gazeuse (cf. figure 6). Après 50 jours d'irradiation, environ 14 % du dépôt a été transformé en xénon (13,1 %) et en krypton (0,6 %). Ces atomes seront relâchés dans l'espace inter électrodes et contamineront petit à petit le gaz de remplissage.



**Figures 7 et 8** : Éléments contribuant le plus à l'activité de l'argon (gauche) et transmutation lente de l'argon en potassium 41 en position 25 du canal V4 (droite).

Enfin, on remarquera que l'argon reste particulièrement stable sous irradiation. Après 50 jours, seuls 0,3 % de ses atomes ont été transmutés (en potassium 41) (cf. figure 8).