HAL
open science

Mesure des sections efficaces de diffusion élastique des neutrons sur le carbone et le fluor dans le domaine épithermique sur la plate-forme PEREN

Nicolas Thiollière

To cite this version:

Nicolas Thiollière. Mesure des sections efficaces de diffusion élastique des neutrons sur le carbone et le fluor dans le domaine épithermique sur la plate-forme PEREN. Physique Nucléaire Théorique [nucl-th]. Université Joseph-Fourier - Grenoble I, 2005. Français. NNT : . tel-00011285

HAL Id: tel-00011285

https://theses.hal.science/tel-00011285

Submitted on 3 Jan 2006

HAL is a multi-disciplinary open access archive for the deposit and dissemination of scientific research documents, whether they are published or not. The documents may come from teaching and research institutions in France or abroad, or from public or private research centers.

L'archive ouverte pluridisciplinaire **HAL**, est destinée au dépôt et à la diffusion de documents scientifiques de niveau recherche, publiés ou non, émanant des établissements d'enseignement et de recherche français ou étrangers, des laboratoires publics ou privés.

UNIVERSITE JOSEPH FOURIER

LPSC 05-94

THÈSE

pour obtenir le grade de

DOCTEUR

Spécialité : Physique nucléaire

préparée au Laboratoire de Physique Subatomique et de Cosmologie

dans le cadre de **l'École Doctorale de Physique**

présentée et soutenue publiquement

par

Nicolas THIOLLIERE

le 12 octobre 2005

Titre :

Mesure des sections efficaces de diffusion élastique des neutrons sur le carbone et le fluor dans le domaine épithermique sur la plate-forme PEREN

Directeur de thèse : Eric LIATARD

co-Directeur de thèse : Olivier MEPLAN

JURY :

Bernard Berthier	rapporteur
Gérard Rudolf	rapporteur
Gérard Barreau	examinateur
Eric Liatard	directeur de thèse
Olivier Méplan	co-directeur de thèse

Thèse préparée au sein du Laboratoire de Physique Subatomique et de Cosmologie.
53, Avenue des martyrs. 38026 Grenoble Cedex.

Remerciement

Je tiens tout d'abord à remercier Mr Chauvin ainsi que Mr Collot, respectivement ancien puis actuel directeur du LPSC, pour m'avoir accueilli au sein du laboratoire. Je remercie aussi Mr Roger Brissot pour m'avoir cordialement accueilli au sein du groupe Physique des Réacteurs du LPSC Grenoble.

Mes remerciements vont ensuite à Bernard Berthier, Gérard Rudolf, Gérard Barreau, Eric Liatard et Olivier Méplan qui ont fait partie de mon jury et avec qui j'ai partagé l'épreuve de la soutenance.

L'ensemble des physiciens avec qui j'ai eu l'occasion de travailler ont largement contribué à ma vision optimiste du monde de la recherche. Je remercie donc Gérard Barreau, Mourad Aiche ainsi que toute l'équipe du CENBG de Bordeaux Gradignan pour la qualité expérimentale et humaine des manips auprès du Van De Graaff. Mes journées passées dans la "volière" ainsi que l'ensemble des manips PEREN n'auraient pas été aussi agréables sans la disponibilité et la sympathie du groupe Accélérateur et de Mécanique du LPSC dont je remercie particulièrement Michel Fruneau, Michel Planet, Alain Fontenille et Denis Marchand.

Pour l'ensemble de son oeuvre, j'entends par là soutien, confiance, bonne humeur, qualité d'encadrement tant au niveau expérimental que théorique... je remercie mon directeur de thèse Eric Liatard avec qui ces trois années passées furent "simple". Mes remerciements vont ensuite naturellement vers Olivier Méplan, mon co-directeur de thèse, qui m'a co-encadré très efficacement, C++ment et ROOTement et avec qui j'ai eu énormément de plaisir à communiquer. Je remercie de la même façon Annick Billebaud sans qui cette thèse aurait pu constituer une arme exceptionnellement efficace pour quiconque aurait voulu nuire à la santé de Bernard Pivot.

Je ne saurait oublier mes partenaires de travail avec qui j'ai eu l'occasion de développer un outil puissant d'analyse balistique permettant de recréer temporairement et périodiquement l'univers quelques microsecondes après le big-bang. Merci donc à Fabien Perdu, Joachim Vollaire, Ludovic Mathieu, Olivier Laulan, Christophe Cavalier, Elsa Merle-Lucotte et Nicolas Cappellan. A vous tous, je peux maintenant vous le dire : avfs.

A tous les membres du groupe Physique des Réacteurs qui ont partagé ces trois années dans la joie et la bonne humeur, Billebaud Annick, Brissot Roger, Cognet Marie-Anne, Heuer Daniel, Laulan Olivier, Le Brun Christian, Liatard Eric, Loiseaux Jean-Marie, Méplan Olivier, Merle-Lucotte Elsa, Nifenecker Hervé, Nuttin Alexis et Wilson Jonathan, je souhaite une bonne continuation ainsi qu'aux

anciens membres du groupe que j'ai eu l'occasion de côtoyer, Sylvain David, Luc Perrot, Maëlle Kerveno, Joachim Vollaire (voir le site perso jock.com) et Fabien Perdu.

Pour le soutient musical, qui m'a apporté autant de bonheur auditif que de courbatures, je tiens à remercier Bruce, Steve, Joey, Eric, Tobias et Kaï...

Aussi, tous mes camarades m'ont rendu la vie plus agréable et plus rock'n'roll. Je remercie donc Benoit (scenseur) et Benoit (labo), Dim, Caro, Elise, Amélie, Elisa, Eric, JB, Bérangère et j'en oublie, pour les désintégrations grenobloise. Aux potes de Lyon, Ren, la Burne et Jéré, je leur souhaite l'accès à toutes les friandises de la terre. Aux montagnards anneciens, John et Fab, je dis "in tartiflette we trust".

Enfin, je n'oublie pas mes parents (papa et maman) sans qui je serais peut être aujourd'hui une tulipe, un rouge-gorge, un gnou, un delta-plane, un opossum ou encore un mérou, ce qui prouve que ce travail n'aurait jamais put être réalisé à l'identique sans eux. Je remercie aussi chaleureusement Alain et Jean-Mi, le frangin, pour les soirées passées et futures.

A tous ceux que j'ai oublié honteusement, je dis merci et à bientôt.

“The Time Has Come All Training Done
The Muscle And The Blood Will Come To Pay”
Joey DeMaio (1996)

Table des matières

1 Interêt et principe des mesures **3**

1.1 Intérêt des mesures dans le cadre de l'étude des RSF 3

1.2 État des connaissances sur σ_C, σ_F et σ_{Li} 4

1.2.1 L'interaction neutron-noyau à basse énergie 4

1.2.2 Données expérimentales existantes 6

1.2.3 Évaluations 11

1.2.4 Discussion sur les données existantes 12

1.3 Principe des mesures de sections efficaces sur PEREN 15

2 Description de la plate-forme PEREN **17**

2.1 Les massifs ralentisseurs 17

2.1.1 Le massif de graphite 17

2.1.2 Le massif de Téflon (CF_2) 21

2.1.3 Le bloc de fluorure de lithium 23

2.2 Le GEnérateur de NEutrons Pulsé Intense (GENEPI II) 23

2.2.1 Description 23

2.2.2 Évaluation du nombre de neutrons par impulsion 26

2.3 Le système de détection 29

2.3.1 Le détecteur de gammas 29

2.3.2 Le montage électronique 29

2.3.3 L'acquisition 30

2.3.4 Les cibles résonnantes utilisées 33

2.4 Les prises de données 35

3 Description de la simulation numérique **37**

3.1 Le code MCNP 37

3.2 Construction de la géométrie expérimentale 38

3.2.1 Les massifs 39

3.2.2 Le système de détection 41

3.2.3 Le doigt de gant 42
3.2.4 Influence de l'environnement 42
3.3 La source de neutrons 43
3.3.1 Description cinématique 44
3.3.2 Description temporelle 47
3.3.3 Modélisation de la source 49
3.4 Les grandeurs extraites 50

4 Principe d'un spectromètre à temps de ralentissement 55
4.1 Cinématique du choc élastique 55
4.2 La relation $E-t$ dans un spectromètre à temps de ralentissement 58
4.2.1 Dans un milieu monoatomique 59
4.2.2 Dans un milieu poly-atomique 62
4.3 Extraction du paramètre K par la simulation 64
4.3.1 Méthode 64
4.3.2 Application au massif de graphite 65
4.3.3 Application au massif de Téflon 67

5 Traitement des données expérimentales et simulées 71
5.1 Les expériences 71
5.1.1 Méthode de reconstitution des spectres expérimentaux 71
5.1.2 Réponse du détecteur silicium 73
5.1.3 Réponse du P.M. 79
5.1.4 Temps de référence expérimental 87
5.2 Les simulations numériques 90
5.2.1 Les taux de réaction dans les cibles 90
5.2.2 Les taux de réaction dans l'environnement expérimental 91
5.2.3 Temps de référence de la simulation 93

6 Extraction des sections efficaces 99
6.1 Reconstitution des spectres expérimentaux par simulations 99
6.1.1 Méthode 99
6.1.2 Application au bruit de fond 101
6.1.3 Application aux spectres avec cible : méthode 1 102
6.1.4 Application aux spectres avec cible : méthode 2 105
6.2 Reconstitution des résonances simulées à partir des spectres expérimentaux 105
6.2.1 Méthode 105
6.2.2 Normalisation par le détecteur Si 110

6.2.3 Normalisation par la méthode des moindres carrés 111
6.3 Extraction des sections efficaces 113
6.3.1 Méthode des moindres carrés 115
6.3.2 Méthode de la relation E-t 116
6.3.3 Section efficace du Carbone 119
6.3.4 Section efficace du fluor 124
6.4 Discussion des résultats 127
6.4.1 Domaine énergétique des mesures 127
6.4.2 Visualisation des résultats 131

7 Sections efficaces totales sur le carbone et le fluor entre 200 **et** $600\,keV$ **: validation des bases de données. 135**
7.1 Introduction 135
7.2 Description de l'expérience 137
7.2.1 Principe de la mesure 138
7.2.2 La source de production de neutrons 139
7.2.3 Les échantillons de Graphite et de Téflon 140
7.2.4 Le système de détection et d'acquisition 141
7.2.5 Les mesures : description et normalisation 144
7.3 Modèle théorique de l'expérience 146
7.3.1 Bruit de fond issu de la cible de production de neutrons 147
7.3.2 Largeur énergétique de la source de neutrons 148
7.3.3 Distribution angulaire de la source de neutrons 150
7.3.4 Efficacité de détection 153
7.3.5 Bornes d'intégration des spectres expérimentaux 153
7.3.6 Diffusion des neutrons sur l'environnement expérimental 155
7.3.7 Détermination de la section efficace 156
7.3.8 Estimation de l'erreur sur la section efficace 158
7.4 Modélisation de l'expérience par le code MCNP 159
7.4.1 La géométrie 159
7.4.2 La source de neutrons 160
7.4.3 Réponse modélisée du détecteur 161
7.5 Analyse 161
7.5.1 Détermination des retours avec MCNP 161
7.5.2 Stabilité de la source de neutrons 164
7.5.3 Erreur total sur un taux de comptage 167
7.6 Détermination de la section efficace sur le carbone et le fluor 169

7.6.1 Carbone 170
7.6.2 Fluor 171
7.7 Conclusion 174

A Propagation d'erreurs **179**

Introduction

Les travaux du groupe Physique des Réacteurs du Laboratoire de Physique Subatomique et de Cosmologie de Grenoble concernant l'étude par simulation numérique de Réacteurs à Sels Fondus (RSF) basés sur le cycle thorium-uranium 233 ont mis en évidence l'intérêt de cette filière pour une production d'énergie qui, dans le cadre du forum international Génération-IV [GEN4], doit satisfaire certains critères parmi lesquels :

- La sûreté [Pe04], afin de réduire au mieux le risque d'accident.
- La minimisation de la production de déchets [Nu02], pour que le besoin de stockage soit minimisé.
- La régénération ou surrégénération, qui consiste à générer, en cours de fonctionnement du réacteur, autant ou plus de matière fissile qu'on en consomme et qui permet une exploitation optimisée des ressources en combustible. Les deux seuls cycles de combustible permettant ce critère, sont les cycles fertiles/fissiles $^{238}U/^{239}Pu$ et $^{232}Th/^{233}U$. La régénération avec le cycle U/Pu n'est possible qu'avec un spectre de neutrons rapide alors qu'avec le cycle Th/U, elle est atteinte aussi bien en spectre rapide que thermique.

Un RSF type se compose d'une structure en graphite, servant de modérateur, percé de canaux dans lesquels circule le sel fondu ($^{7}LiF + ThF_4 + UF_4$) qui joue à la fois le rôle de caloporteur et de combustible. Les études par simulation numérique d'un RSF en cycle Th/U [Ma05] montrent que le bilan neutronique, relativement tendu, implique que certaines grandeurs, telles que les taux de régénération, sont très sensibles à certaines données neutroniques de base, ce qui met en évidence la nécessité d'une ré-actualisation de grandeurs dont la précision est jugée insuffisante, telles que les sections efficaces de diffusion élastique des neutrons sur les matériaux de structures et sur les noyaux légers composant le combustible.

Ces considérations ont conduit à la création de la Plate-forme d'Etude et de Recherche sur l'Electro-Nucléaire (PEREN), fonctionnelle depuis 2003 sur le site du laboratoire et dédiée à l'acquisition de données nucléaires et chimiques de base dont la qualité soit au niveau de l'exigence des simulations numériques.

Le volet neutronique qui nous intéresse dans ce travail comprend un générateur de neutrons pulsé pouvant être couplé à différents massifs ralentisseurs composés de graphite (C), de Téflon (CF_2) et de fluorure de lithium (^{7}LiF). L'étude du ralentissement des neutrons dans ces milieux permettra

successivement la détermination des section efficaces de diffusion élastique du carbone, du fluor puis du lithium 7.

Le chapitre 1 présente précisément les motivations de ces mesures ainsi que les données existantes, expérimentales et évaluées, avant d'énoncer la méthode de mesure, basée sur l'utilisation des massifs en tant que spectromètre à temps de ralentissement.

La description complète du dispositif expérimental utilisé auprès de la plate-forme PEREN est effectuée dans le chapitre 2. Dans le chapitre 3, nous nous appuyons sur cette description pour construire les fichiers sources modélisant l'expérience, utilisables par le code de simulation MCNP.

L'aspect théorique de la physique d'un spectromètre à temps de ralentissement est détaillé dans le chapitre 4.

L'extraction de données exploitables à partir des données brutes expérimentales et simulés, effectuée au chapitre 5, conduit à la détermination explicite, présentée dans le chapitre 6, des sections efficaces de diffusion élastique du carbone et du fluor avec une précision de l'ordre du pour-cent pour un domaine énergétique compris entre quelques eV et une centaine de keV.

Enfin, le chapitre 7 est dédié à des mesures complémentaires à plus haute énergie ($200-600\,keV$) réalisées lors d'une expérience de transmission de neutrons à travers des échantillons de graphite et de Téflon auprès de l'accélérateur Van De Graaff du CENBG.

Chapitre 1

Interêt et principe des mesures

1.1 Intérêt des mesures dans le cadre de l'étude des RSF

Parmi les potentialités étudiées dans le cadre des réacteurs de la génération IV, les Réacteurs à Sels Fondus (RSF) avec un combustible thorium-uranium 233 sont l'objet de nombreux travaux au sein du CNRS, et dans le groupe Physique des Réacteurs du LPSC en particulier [Nu05], [Nu02], [Ma05].

Le principe de fonctionnement d'un RSF type est schématisé figure 1.1.

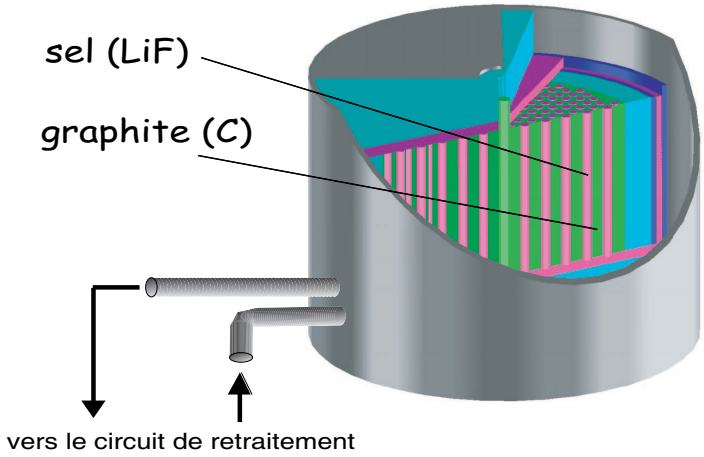


FIG. 1.1 – *Schéma du coeur d'un Réacteur à Sels Fondus.*

Le squelette du réacteur en graphite assure le rôle de modérateur et de structure solide de l'ensemble. Il est percé de canaux dans lesquels le sel fondu à haute température ($\sim 700\,°C$) circule. Le sel, de formule chimique $^{7}LiF + ThF_4$, assurant la fonction de fluide caloporteur et de combustible, circule librement dans les canaux vers d'éventuels circuits de retraitements. Le choix du lithium 7 dans la composition du sel est une conséquence du fait que le lithium 6, présent à 7.5% dans le lithium naturel, constitue un poison neutronique extrêmement pénalisant (sa section efficace de réaction

$^6Li(n,t)^4He$ est de l'ordre de 3000 *barn* à l'énergie thermique).

L'étude d'un tel réacteur est réalisée par simulation numérique avec le code Monte-Carlo N-Particules MCNP [Br-97] qui évalue des observables physiques par couplage entre un traitement stochastique et des bases de données nucléaires. Ces dernières contiennent un grand nombre d'évaluations de grandeurs (sections efficaces, distributions angulaires...) pour une grande quantité de noyaux.

Actuellement, la précision des grandeurs extraites des simulations numériques est telle que l'incertitude sur les sections efficaces des matériaux d'intérêt d'un RSF (C, F et ^7Li) devient une source d'erreur non-négligeable. En effet, l'économie de neutrons et le taux de régénération d'un RSF $Th/^3U$ dépend fortement du spectre de neutrons que voit le thorium fertile, spectre qui dépend du ralentissement des neutrons, donc des section efficaces de diffusion du modérateur et des noyaux légers du sel.

Le besoin d'actualiser et d'affiner ces données nucléaires de bases ont conduit à la réalisation au LPSC de la Plate-forme PEREN auprès de laquelle ce travail de thèse a été réalisé avec pour but la détermination précise des sections efficaces de diffusions élastiques de neutrons σ_c, σ_F et σ_{Li} sur le carbone, le fluor et le lithium 7 pour un spectre énergétique type d'un RSF.

1.2 État des connaissances sur σ_C, σ_F et σ_{Li}

Nous allons dans ce paragraphe faire un tour d'horizon des différentes mesures et évaluations sur les trois noyaux nous concernant après avoir introduit un modèle relativement simple qui nous permettra d'extraire certaines propriétés sur les sections efficaces recherchées.

L'ensemble des données énoncées dans la suite sont issus de la base de donnée du National Nuclear Data Center de Brookhaven [NNDC] qui regroupe les principales bases de données évaluées (ENDF/B-VI, JENDL, JEFF...) et expérimentales (EXFOR, CINDA). Ces bases nous permettent d'extraire les données évaluées et mesurées sur un grand nombre de grandeurs physiques.

1.2.1 L'interaction neutron-noyau à basse énergie

L'étude de la diffusion d'une particule de masse m_1 sur une masse m_2 se réduit, dans le cas d'un potentiel qui ne dépend que de la distance entre les deux particules, à la diffusion dans le centre de masse d'une particule de masse réduite μ par un potentiel $V(r)$. Considérons alors une particule incidente, de direction orientée selon un axe Oz, évoluant dans un potentiel central statique $V(\vec{r})$ à courte portée placé à l'origine du référentiel. La forme asymptotique (c'est à dire pour r grand devant la limite de portée du potentiel) de la solution de l'équation de Schrödinger s'écrit comme une combinaison d'une onde plane transmise et d'une onde sphérique diffusée dans une direction (α,φ).

$$\Psi_k(\vec{r}) \sim e^{ikz} + f_k(\alpha,\varphi)\frac{e^{ikr}}{r} \tag{1.1}$$

où le vecteur d'onde k est relié à l'énergie de la particule incidente dans le centre de masse par la relation $E = \frac{\hbar^2 k^2}{2\mu}$. La fonction $f_k(\alpha, \varphi)$, appelée amplitude de diffusion, dépend de la direction de la particule diffusée dans l'angle solide $d\Omega = sin(\theta) d\theta d\varphi$ et du potentiel $V(\overrightarrow{r})$. Elle est reliée à la section efficace différentielle par la relation suivante :

$$\frac{d\sigma}{d\Omega} = |f_k(\alpha, \varphi)|^2 \tag{1.2}$$

Dans un cas général, pour un potentiel indépendant du temps, la résolution de l'équation de Schrödinger se réduit à la détermination des états stationnaires de diffusion :

$$\left(\Delta + k^2\right) \varphi(\overrightarrow{r}) = U(\overrightarrow{r}) \varphi(\overrightarrow{r}) \tag{1.3}$$

où $U(\overrightarrow{r}) = \frac{2\mu}{\hbar^2} V(\overrightarrow{r})$. Il est possible [CT73] de déterminer une équation équivalente à l'équation de Schrödinger qui inclue de plus la forme asymptotique de la fonction d'onde diffusée. Cette équation, appelée "équation intégrale de la diffusion", s'écrit :

$$\Psi_k(\overrightarrow{r}) = e^{i\overrightarrow{k_i}\,\overrightarrow{r}} + \int \left(-\frac{1}{4\pi}\right) \frac{e^{ik|\overrightarrow{r} - \overrightarrow{r}'|}}{|\overrightarrow{r} - \overrightarrow{r}'|} U(\overrightarrow{r}') \Psi_k(\overrightarrow{r}')\, d^3\overrightarrow{r}' \tag{1.4}$$

Nous avons ici introduit le vecteur d'onde initiale $\overrightarrow{k_i} = k\overrightarrow{u_z}$. Le comportement asymptotique de cette équation permet, par analogie avec l'équation (1.1) d'extraire l'amplitude de diffusion :

$$f_k(\alpha, \varphi) = -\frac{1}{4\pi} \int e^{-i\overrightarrow{k_d}\,\overrightarrow{r}'} U(\overrightarrow{r}') \Psi_k(\overrightarrow{r}')\, d^3\overrightarrow{r}'$$

où le vecteur $\overrightarrow{k_d}$, vecteur d'onde de la particule diffusé à la position $\overrightarrow{r}$ est tel que $\left|\overrightarrow{k_d}\right| = k$ (conservation de l'énergie avant et après l'interaction dans le centre de masse). Le terme de droite de l'équation intégrale de la diffusion se restreint, dans le cadre de l'approximation de Born, à son premier terme $e^{i\overrightarrow{k_i}\,\overrightarrow{r}}$ et l'expression de la section efficace obtenue par le carré du module de l'amplitude de diffusion est de la forme :

$$\frac{d\sigma}{d\Omega} = \frac{\mu^2}{4\pi^2\hbar^2} \left| \int e^{-i\left(\overrightarrow{k_d} - \overrightarrow{k_i}\right)\overrightarrow{r'}} V(\overrightarrow{r})\, d^3\overrightarrow{r} \right|^2 \tag{1.5}$$

En supposant que la limite d'action r_o du potentiel nucléaire est connue, l'intégrale de l'équation (1.5) s'effectue avec la condition $|\overrightarrow{r}| \leq r_o$. A faible énergie, nous pouvons faire l'approximation $k|\overrightarrow{r}| \ll 1$[1] donc que $e^{-i\left(\overrightarrow{k_d} - \overrightarrow{k_i}\right)\overrightarrow{r'}} \ll 1$. Dans cette approximation, la section efficace différentielle ne dépend plus de l'énergie ni de l'angle de la diffusion est alors considérée isotrope dans le centre de masse. Enfin, la section efficace de diffusion élastique intégrée sur tout l'espace est indépendante de

[1] *A titre d'exemple, pour $r_o \sim 1\,fm$ et pour une énergie incidente de $100\,keV$ (resp. $10\,keV$), le produit $k\,r_o$ est de l'ordre de 0.07 (resp. 0.02).*

l'énergie.

Une méthode plus rigoureuse, basée sur les déphasages des ondes partielles diffusées à moment cinétique l donné [CT73], permet dans l'approximation $\left(\overrightarrow{k_d} - \overrightarrow{k_i}\right) \overrightarrow{r} \ll 1$, d'exprimer la section efficace de diffusion élastique sur une sphère dure d'une manière simple. Dans ce cas, les diffusions selon les ondes de moments cinétique $l \geq 1$ sont négligeables devant l'onde s ($l = 0$) et la section efficace de diffusion élastique intégrée sur tout l'espace est indépendante de l'énergie :

$$\sigma = 4\pi r_o^2 \tag{1.6}$$

Cette propriété de la section efficace à faible énergie ($E \leq\sim 100\,keV$), appliquée au processus de diffusion élastique de neutrons, se vérifie sur l'ensemble des noyaux légers et constitue une des conditions de base de la faisabilité de nos mesures.

En terme d'interaction des neutrons avec la matière, nous pouvons distinguer les diffusions potentielles (que nous avons décrit jusqu'ici) et les réactions d'absorption du neutron conduisant à des voies de sortie variées. La section efficace totale est définie comme la somme de la section efficace de diffusion élastique et de la section efficace d'absorption. Pour les noyaux étudiés dans ce travail, en considérant des énergies de neutrons inférieure à la centaine de keV (c'est-à-dire en dessous du seuil des résonances), la diffusion élastique, largement favorisée devant les réactions d'absorption, est quasi-confondue avec la section efficace totale.

Cette propriété qui confère aux milieux étudiés l'appellation de "milieux peu absorbants" constitue la deuxième condition de faisabilité des mesures.

1.2.2 Données expérimentales existantes

• LE CARBONE

De nombreuses mesures de la section efficace du carbone sont répertoriées dans la base de données EXFOR [EXF]. Cependant, une grande majorité de mesures concernent des énergies de neutrons supérieures au MeV, au-delà de notre domaine énergétique de mesure. La sélection des mesures répertoriées que nous effectuons ici consiste à conserver uniquement les mesures, postérieures à 1970, entre $1\,eV \leq E \leq 100\,keV$ qui contiennent plus de 10 points en énergie. Cette restriction conserve six expériences dont nous représentons les résultats figure 1.2.

Deux des six mesures représentées couvrent le domaine épithermique. La plus ancienne [Ha74], publiée en 1974, met en évidence un plateau en énergie dont la valeur moyenne est de l'ordre de $4.7\,barn$ avec une erreur moyenne de 10%. Une mesure récente [Al97], qui bénéficie d'incertitudes

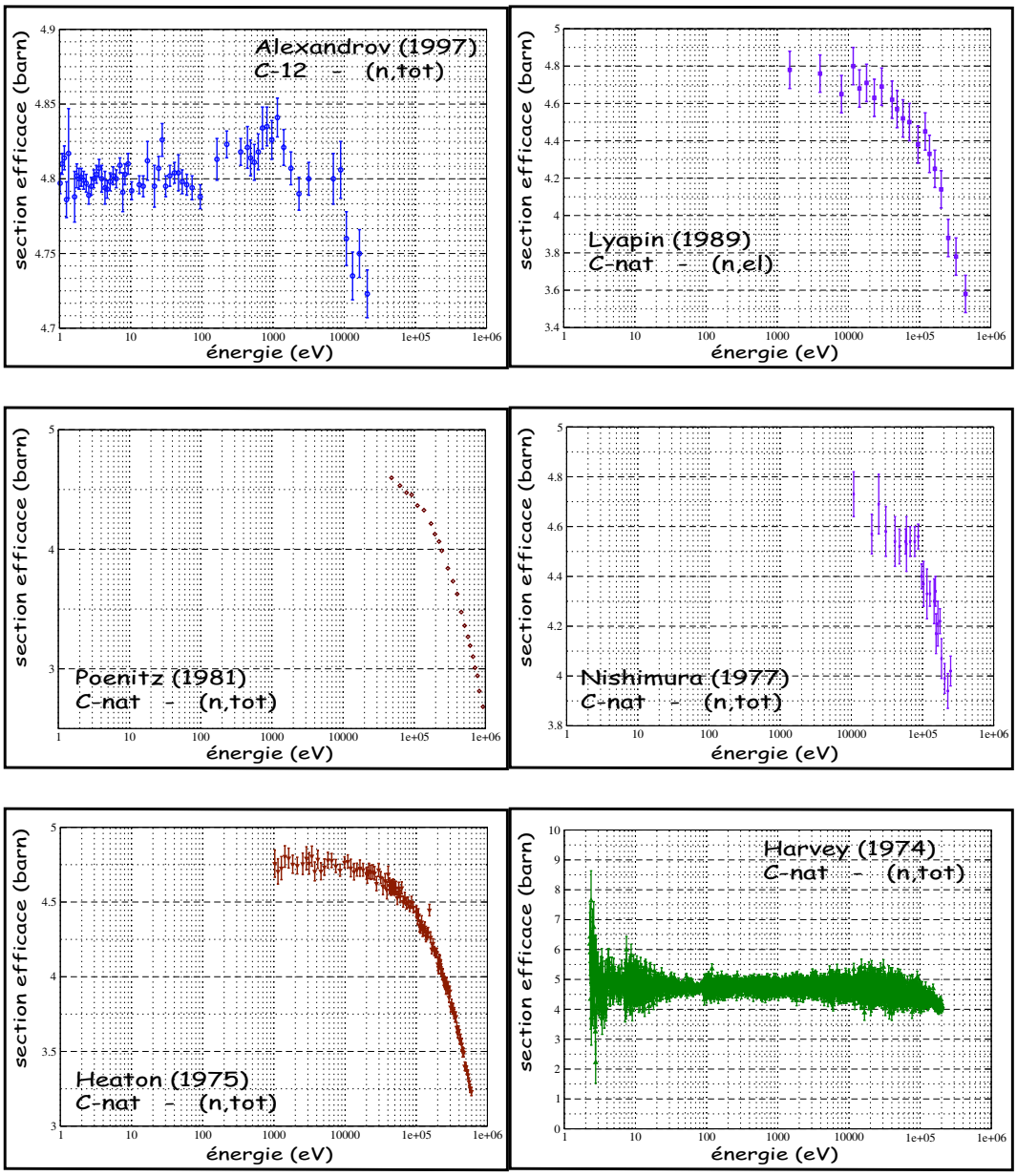


FIG. 1.2 – *Sections efficaces expérimentales totales et de diffusion élastiques du carbone répertoriées dans la base EXFOR.*

statistiques de l'ordre de 0.4%, conduit à une valeur moyenne de $4.8\,barn$ pour le plateau du carbone en dessous de la dizaine de keV.

Les valeurs des sections efficaces proches de la borne énergétique inférieure des quatre mesures restantes permettent de mettre en évidence la valeur mesurée du plateau du carbone tandis que les points à plus hautes énergies s'accordent à montrer une décroissance de la section efficace en fonction de E. Les plateaux du carbone déterminés, de la mesure la plus ancienne à la plus récente, conduisent à $(4.76 \pm 0.08)\,barn$ [He75], $(4.73 \pm 0.09)\,barn$ [Ni77], $(\geq 4.60 \pm 0.05)\,barn$ [Po81] (notons que la borne inférieure de cette mesure n'atteint pas la valeur stable du plateau) et $(4.75 \pm 0.10)\,barn$ [Ly89].

En définitive, nous observons que les valeurs anciennes s'accordent entre elles et s'écartent d'environ 1% de la valeur récente mesurée.

• LE FLUOR

En comparaison avec le carbone, il existe moins de mesures répertoriées pour le Fluor. Les critères précédents sont réutilisées ici et nous obtenons les courbes de la figure 1.3.

Les deux mesures [Si74], [La76] que nous avons extrait de la base EXFOR mettent en avant une série de résonances de la section efficace totale au-delà de la vingtaine de keV. En dessous de cette énergie, le caractère constant de la section efficace apparaît clairement et l'extraction de la valeur moyenne des points en dessous de $10\,keV$ conduit au valeurs mesurées $\sigma = (3.64 \pm 0.03)\,barn$ [La76] et $\sigma = (3.79 \pm 0.06)\,barn$ [Si74] pour le plateau du fluor, soit 4% d'écart entre ces deux mesures.

Une unique mesure, plus récente, fournit une information sur la valeur du plateau du fluor. Un point à une énergie ($E = 1970\,eV$), réalisé en 1990 [Ko90], mesure la section efficace totale à $(3.59 \pm 0.01)\,barn$.

• LE LITHIUM 7.

La mesure de la section efficace du lithium 7 constitue l'intérêt majeur du programme réalisé sur la plate-forme PEREN dans le sens où très peu de mesure sont répertoriées. Les courbes de sections efficaces de la figure 1.4 constituent la totalité des mesures répertoriées contenant des points en énergie en dessous de la centaine de keV.

Trois mesures ([Hi54], [Go56] et [Ha78]) mettent en évidence une résonance dans la section efficace totale vers $250\,keV$. L'ensemble des mesures à plus basses énergies conduisent à un plateau plus ou moins bien défini. En dehors des mesures réalisées en 1953 [Hi53] qui donnent une section efficace moyenne proche de $(0.4 \pm 0.2)\,barn$ dans le domaine épithermique, les autres valeurs sont plus cohérentes entre elles et conduisent à une section efficace mesurée moyenne de l'ordre de $1.1\,barn$.

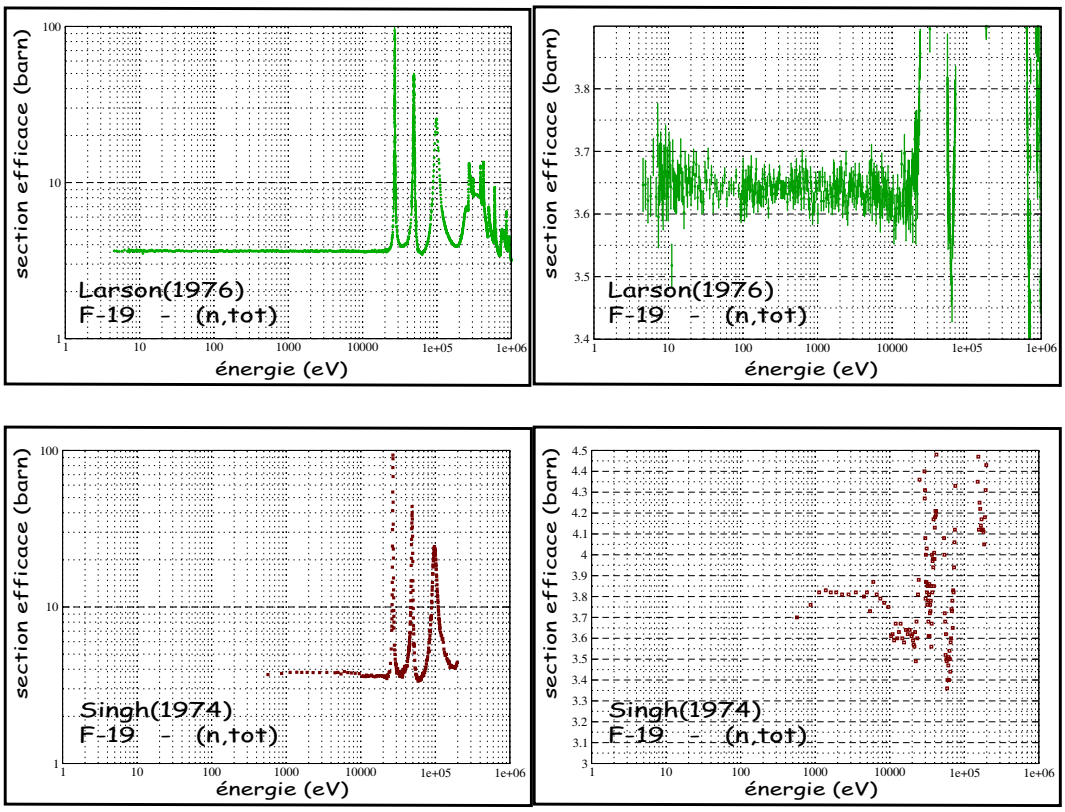


FIG. 1.3 – *Sections efficaces expérimentales totales du fluor répertoriées dans la base EXFOR. Les courbes de gauche sont en échelle logarithmique pour les ordonnées et celle de droite, en linéaire.*

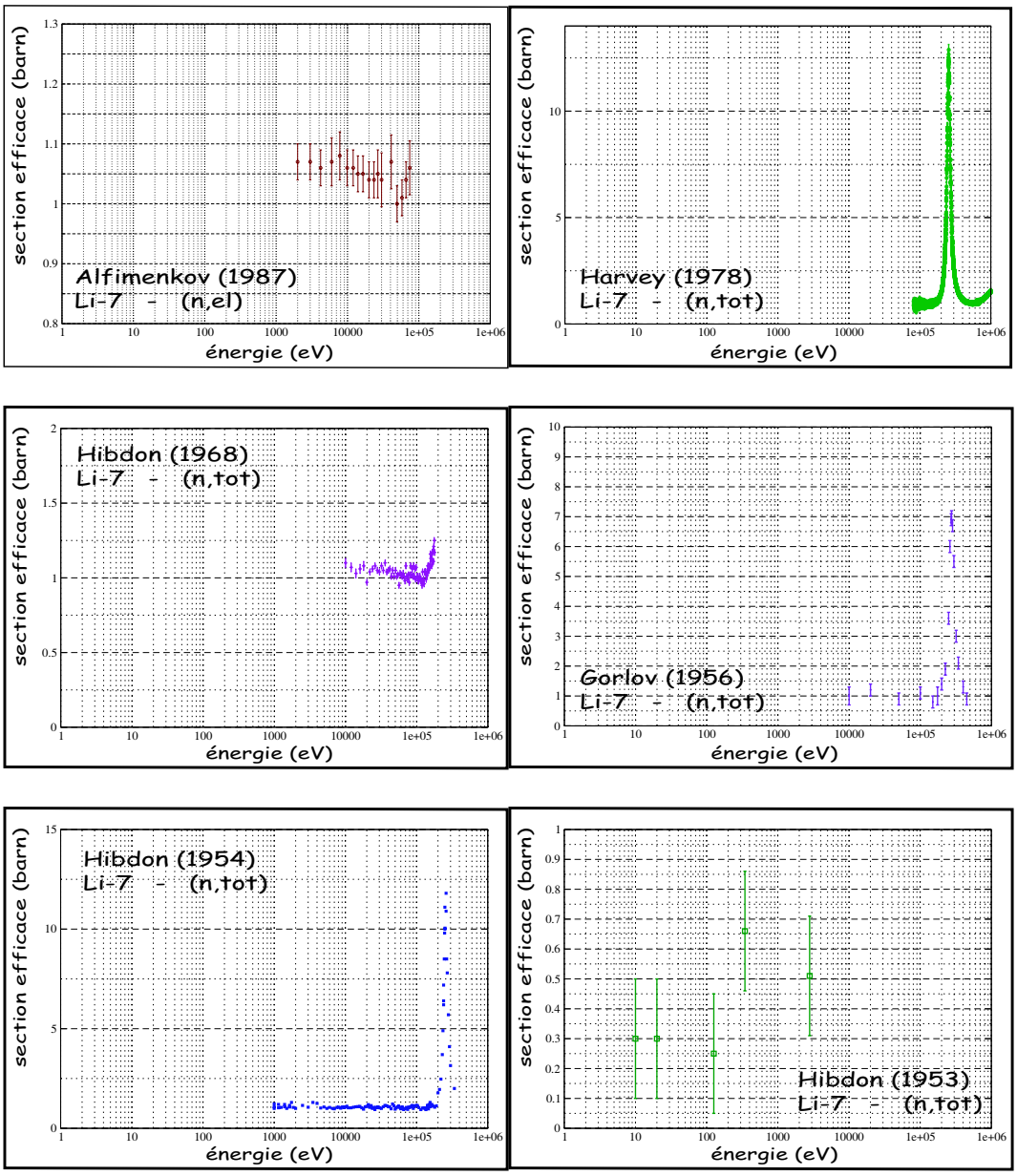


FIG. 1.4 – *Sections efficaces expérimentales totales et de diffusion élastiques du lithium-7 répertoriées dans la base EXFOR.*

Néanmoins, les écarts entre cet ensemble de mesures, au-delà des 10%, justifie le besoin de nouvelles mesures plus précises.

1.2.3 Évaluations

Les tables de données nucléaires évaluées constituent la base des observables physiques utilisées par les codes de simulations numériques. Les plus utilisées sont ENDF/B-VI (américaine), JENDL (japonaise), JEFF (européenne), CENDL (chinoise) et BROND (russe). Les calculs sont basés sur différents modèles d'interaction neutron-noyau éventuellement ré-ajustés en fonction des données expérimentales.

• LE CARBONE

L'ensemble des bases citées contient des évaluations sur la section efficaces du carbone. Entre l'eV et le MeV, les bases sont rigoureusement équivalentes. Dans le domaine épithermique, la section efficace totale s'écarte de la section efficace de diffusion élastique d'environ 0.06%. La figure 1.5 montre la superposition des sections efficaces évaluées pour l'ensemble des bases montrant l'aspect constant de la section efficace dans le domaine énergétique qui nous intéresse. La valeur du plateau du carbone issue des données évaluées est égal à $4.74\,barn$. Si cette évaluations s'accorde parfaitement avec les anciennes mesures présentées au paragraphe 1.2.2, elle s'écarte néanmoins de 1.3% de la mesure la plus récente [Al97].

• LE FLUOR

L'étude des évaluations fournies sur la section efficace du fluor par les bases de données nucléaires montre que la section efficace totale est confondue avec la section efficace de diffusion élastique (l'écart maximal est de 0.02%) en dessous de la centaine de keV. La figure 1.6 met en évidence les similitudes entre les bases et un plateau est effectivement prédit en dessous de la région des résonances ($E \leq 20\,keV$) où la section efficace totale est égale à $3.645\,barn$, en parfait accord avec la mesure réalisée en 1976 [La76]. Cependant, l'unique mesure récente [Ko90] diffère de 1.5% avec l'ensemble des évaluations. Notons qu'entre $1\,keV$ et $20\,keV$, un écart, de 1.7% au plus, apparaît entre la base JEFF et les autres.

• LE LITHIUM 7

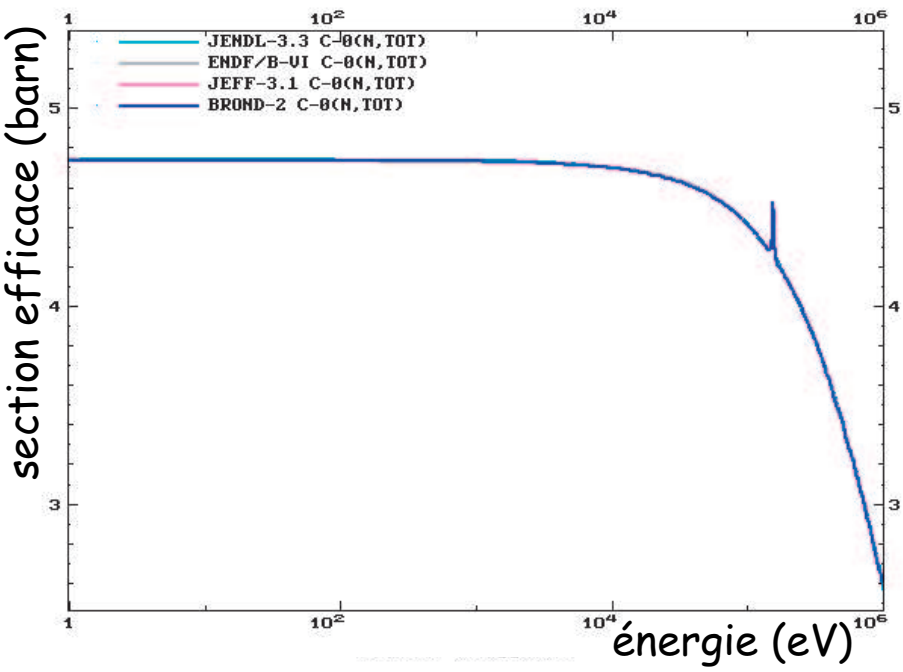


FIG. 1.5 – *Superposition des évaluations de la section efficace totale du carbone.*

Si l'ensemble des évaluations conduit à la quasi-égalité entre les sections efficaces totale et de diffusion élastique du lithium 7, nous observons cette fois (cf. figure 1.7) des différences notables, aux énergies précédant la résonances à $250\,keV$, entre la base JENDL et l'ensemble des autres bases. Cette dernière évalue un plateau pour la section efficace totale qui se situe à $\sigma = 0.97\,barn$, valeur qui s'accorde bien avec la mesure réalisée en 1978 [Ha78] ($\sigma \sim (0.92 \pm 0.10)\,barn$). Les autres évaluations présentent une section efficace totale non constante dans le domaine épithermique et sa valeur, proche de $10\,keV$, donnée par $\sigma = 1.06\,barn$, est en accord avec la mesure la plus récente [Al82] qui a conduit à $\sigma = (1.05 \pm 0.03)\,barn$. L'intérêt de la mesure de la section efficace du fluor est alors conforté ici où 8% d'écart est observé entre JENDL et les autres bases.

1.2.4 Discussion sur les données existantes

L'ensemble des résultats et des évaluations présentés jusqu'ici montre que la section efficace du carbone peut être considérée comme connue au pour-cent près. Cette précision offre la possibilité, dans le cadre de ce travail, de s'appuyer sur la connaissance de σ_c pour valider, et évaluer les limites de notre méthode de mesure.

L'incertitude, de quelques pour-cents, sur la section efficace du fluor pourra être ainsi précisée en

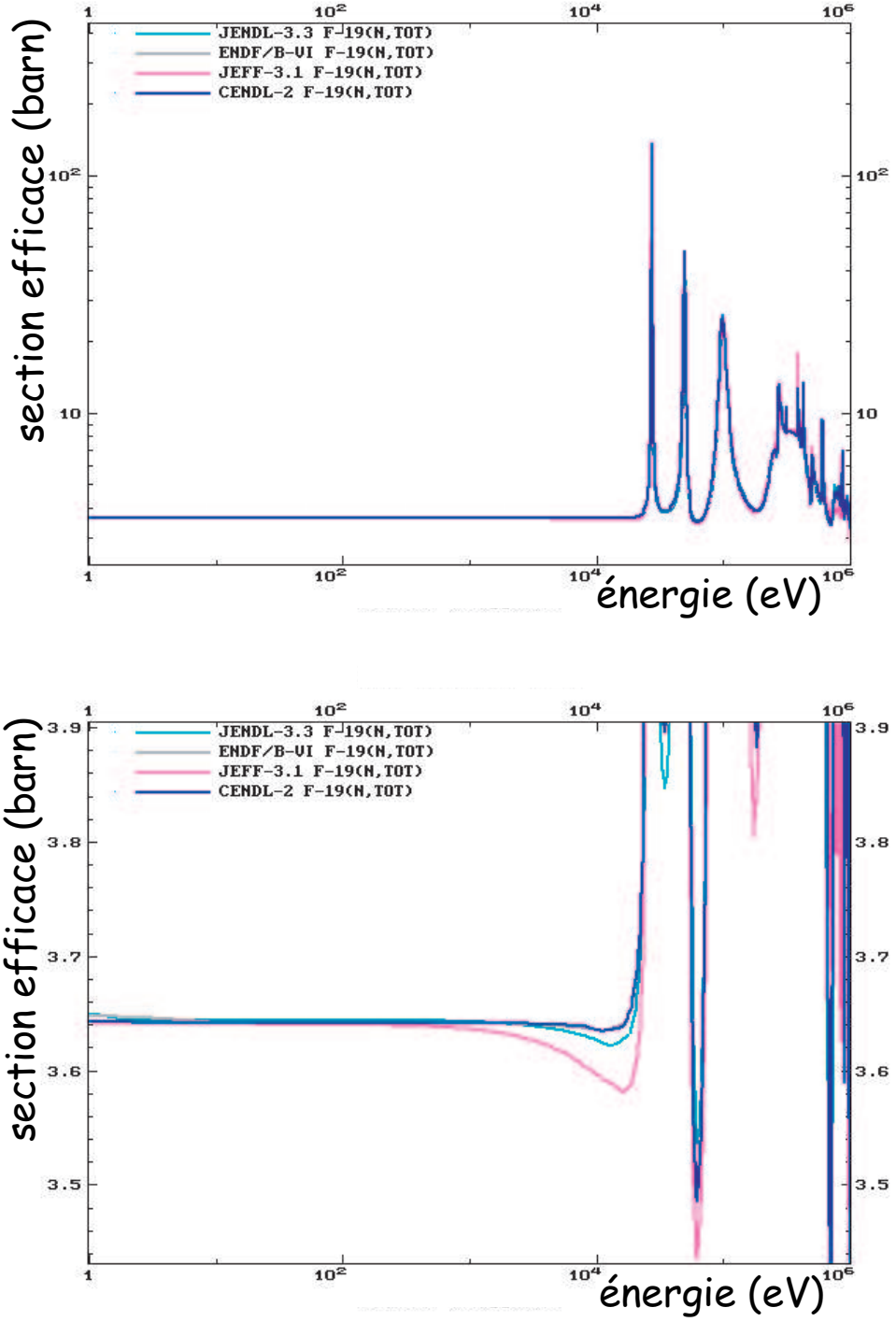


FIG. 1.6 – *Superposition des évaluations de la section efficace totale du fluor.*

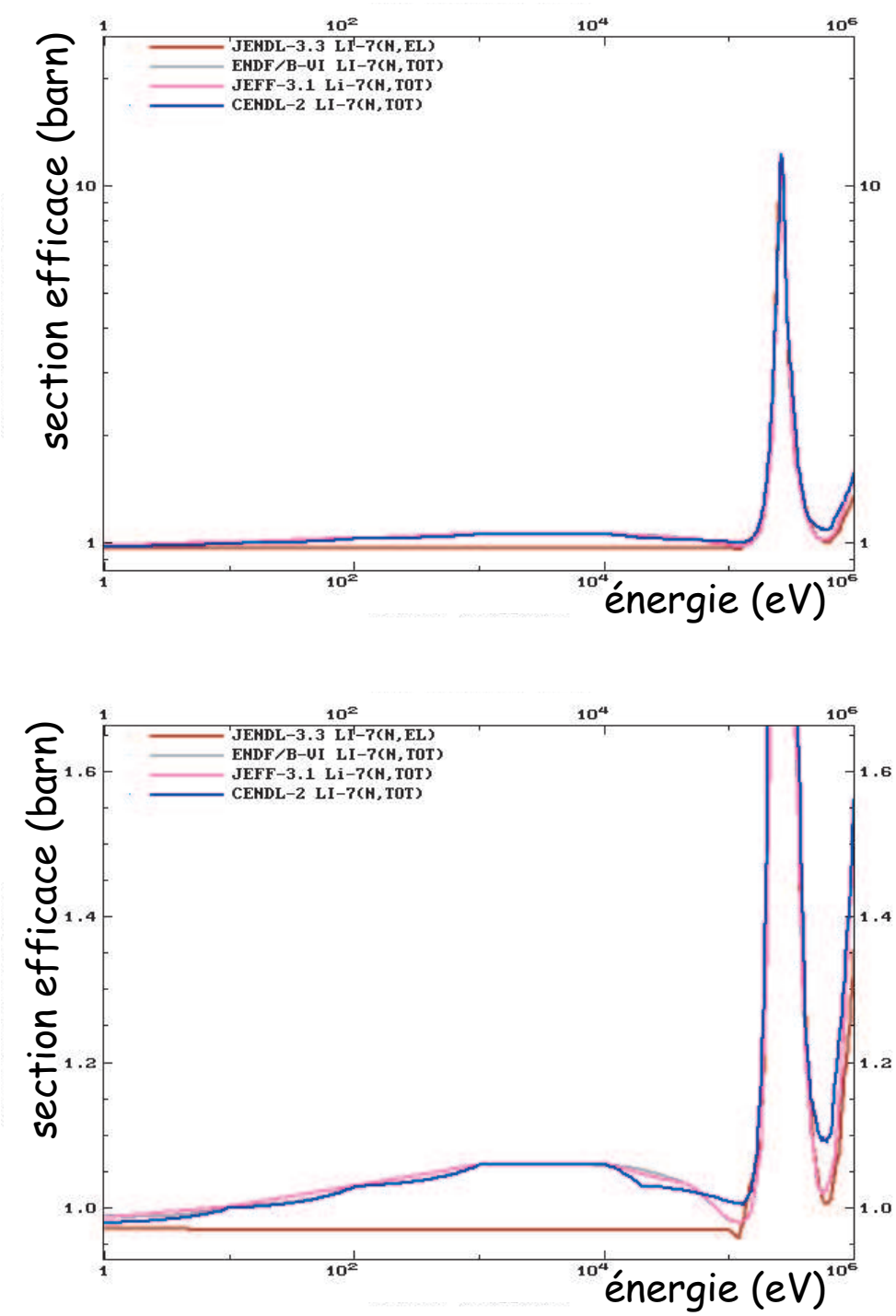


FIG. 1.7 – *Superposition des évaluations de la section efficace totale du lithium 7.*

fonction du degrés de précision des mesures sur la plate-forme PEREN.

Enfin, l'essentiel du programme réside dans la détermination de la section efficace du lithium 7, dont les valeurs mesurées et évaluées sont aujourd'hui peu fiables.

1.3 Principe des mesures de sections efficaces sur PEREN

La mesure des sections efficaces de diffusion élastique est basée sur le ralentissement de neutrons à l'intérieur de différents milieux composés des noyaux décrits précédemment. Ceci impose de connaître l'instant de création d'un neutron, d'où l'utilisation d'un Générateur de Neutrons Pulsée Intense (GENEPI II) qui produit des neutrons de $2.5\,MeV$ au centre de massifs ralentisseurs composés des noyaux à étudier. L'étude du ralentissement des neutrons dans ces milieux conduira à la détermination des sections efficaces de diffusion élastique.

Un modèle théorique (énoncé en détail chapitre 4) montre que le ralentissement des neutrons dans un milieu peu absorbant et de section efficace de diffusion élastique constante et quasi-confondu avec la section efficace totale se fait suivant une loi qui relie l'énergie moyenne des neutrons avec leur temps moyen de diffusion :

$$E \sim \frac{K}{t^2} \tag{1.7}$$

Le paramètre K ne dépend que du milieu diffuseur par l'intermédiaire, entre autre, de sa section efficace de diffusion élastique et gère l'aspect plus ou moins rapide du ralentissement des neutrons. Un système de détection constitué d'un scintillateur et d'un photo-multiplicateur est disposé à l'intérieur du massif. Le scintillateur est couplé à une cible mince d'un noyau dont la particularité est d'avoir une résonance de réaction (n,γ) isolée et intense à une énergie E_r connue avec précision. Les neutrons crées à l'énergie initiale $E_0 \sim 2.5\,MeV$ vont se ralentir selon la loi (1.7) jusqu'à l'énergie de résonance E_r de la cible qui va alors produire au temps correspondant t_r une grande quantité de gammas. La détection de ces photons permet la détermination expérimentale de l'instant de résonance t_r qui contient l'information sur la section efficace du matériaux étudié entre l'énergie de résonance E_r et l'énergie initiale E_0.

Cette méthode mènera à la détermination de la section efficace du carbone puis du fluor par l'intermédiaire du Téflon[2]. L'utilisation d'un bloc de lithium 7 sous forme fluorée (^7LiF) était initialement prévue et devait conduire à la mesure de σ_{Li} mais un retard dans la réalisation du massif a rendu impossible la réalisation de cette mesure dans les délais impartis. Ces mesures seront effectuées prochainement (fin 2005), notons que l'intégralité de la méthodologie, tant au niveau expérimental, numérique et analyse des données, de ce travail pourra être conservée pour la détermination de σ_{Li}.

[2] *Le fait que le fluor n'existe pas a l'état libre justifie l'utilisation du Téflon. En effet, ayant déterminé σ_C préalablement, nous pourrons en déduire σ_F en considérant que le ralentissement des neutrons dans le Téflon est géré par la section efficace du milieu $\sigma_T = \sigma_c + 2\sigma_F$.*

Chapitre 2

Description de la plate-forme PEREN

2.1 Les massifs ralentisseurs

Idéalement, un spectromètre à temps de ralentissement est de taille infinie (cf Chapitre 4). Du point de vue expérimental, il convient de déterminer une dimension et une géométrie optimales pour la faisabilité des mesures avec un coût acceptable.

Nous allons ici décrire puis discuter les caractéristiques des massifs ralentisseurs équipant la plate-forme PEREN.

2.1.1 Le massif de graphite

A l'origine, l'acquisition d'un massif de graphite avait deux objectifs :

- La mesure de la section efficace de diffusion élastique du carbone par la méthode du spectromètre à temps de ralentissement.
- Des études de neutronique dans une maille élémentaire du coeur d'un réacteur à sels fondus, ce qui implique la présence de canaux pouvant contenir ces sels sous forme solide.

Le graphite est produit industriellement sous forme de cylindres. S'est alors imposée une géométrie ortho-cylindrique de manière à obtenir la géométrie la plus compacte possible[1].

En considérant que le massif de graphite constitue un milieu homogène, nous pouvons calculer une approximation de la distribution des neutrons à l'intérieur d'un tel massif. En effet, la théorie de l'âge de Fermi [Be64] conduit, moyennant un milieu où l'absorption est très faible devant la diffusion, à une équation différentielle du type :

$$\frac{\partial q(\vec{r},\tau)}{\partial \tau} = \nabla^2 q(\vec{r},\tau) \tag{2.1}$$

[1] *Pour une source de neutrons isotrope, le massif idéal est de forme sphérique.*

La fonction continue $q(\overrightarrow{r},\tau)$ est appelée “courant de ralentissement” [Re03]. Elle est fonction de la variable espace $\overrightarrow{r}$ et d'une variable τ appelée “âge” qui se définit par :

$$\tau(E) = \int_E^{Eo} \frac{\lambda_s^2(E')}{3\left(1+\frac{\alpha\ln\alpha}{1-\alpha}\right)\left(1-\frac{2}{3A}\right)} \frac{dE'}{E'} \tag{2.2}$$

où la grandeur λ_s est le libre parcours moyen entre deux diffusions élastiques dans le milieu et $\alpha = \frac{(1-A)^2}{(1+A)^2}$ avec A, la masse atomique du noyau constituant le milieu. La borne E_o de l'intégrale est l'énergie initiale de création du neutron (ici, $E_o \sim 2.5\,MeV$) ralenti jusqu'à l'énergie E.

Dans le cas d'un milieu tel que le graphite, nous pouvons faire l'approximation que la section efficace de diffusion élastique est constante en fonction de l'énergie, donc le libre parcours moyen peut s'extraire de l'intégrale (2.2) qui se réduit à :

$$\tau(E) = \frac{\lambda_s^2}{3\left(1+\frac{\alpha\ln\alpha}{1-\alpha}\right)\left(1-\frac{2}{3A}\right)} \ln\frac{E_o}{E} \tag{2.3}$$

Une solution de l'équation (2.1) menant à la distribution spatio-temporelle dans le milieu considéré s'écrit, en considérant une source ponctuelle située à l'origine du référentiel :

$$q(\overrightarrow{r},\tau) = \frac{1}{(4\pi\tau)^{3/2}} \exp\left(-\frac{r^2}{4\tau}\right) \tag{2.4}$$

Pour $\tau(E)$ fixé, $q(\overrightarrow{r})dV$ représente la densité de neutrons d'énergie E comprise entre E et $E+dE$ dans un volume dV en $\overrightarrow{r}$. Considérons alors des neutrons d'énergie initiale $E_o = 2.5\,MeV$ et cherchons à calculer les distributions spatiales pour différentes énergies finales. Il faut au préalable calculer la grandeur $\tau(E)$ pour chacune de ces énergies.

Avec la relation liant le libre parcours moyen $\lambda_s = \frac{A}{\rho N_a \sigma_s}$ à la section efficace de diffusion élastique σ_s, à la densité ρ du milieu, à la masse atomique A et au nombre d'Avogadro N_a, nous déduisons la valeur numérique du libre parcours moyen d'un neutron dans le graphite :

$$\lambda_s = 2.41\,cm \tag{2.5}$$

où la densité a été prise égale à $1.749\,g.cm^{-3}$.

Nous pouvons alors calculer la valeur numérique de l'âge, et ce pour chaque valeur de l'énergie E d'un neutron ralenti. Nous représentons figure 2.1 la fonction $q(\overrightarrow{r})$, probabilité de présence des neutrons à la distance r de la source de neutrons pour différentes valeurs de E.

Cette distribution nous permet de constater que pour des neutrons ralentis jusqu'à l'énergie thermique, le flux devient négligeable vers une distance $r \sim 50\,cm$. La même conclusion s'impose pour des neutrons ralentis jusqu'à $1\,eV$. Notre étude sur le ralentissement des neutrons porte sur un domaine énergétique s'étendant de l'énergie de création des neutrons jusqu'à l'eV. Dans ces conditions, nous pouvons conclure qu'un ortho-cylindre de graphite de rayon $R = 50\,cm$ constitue un spectromètre à

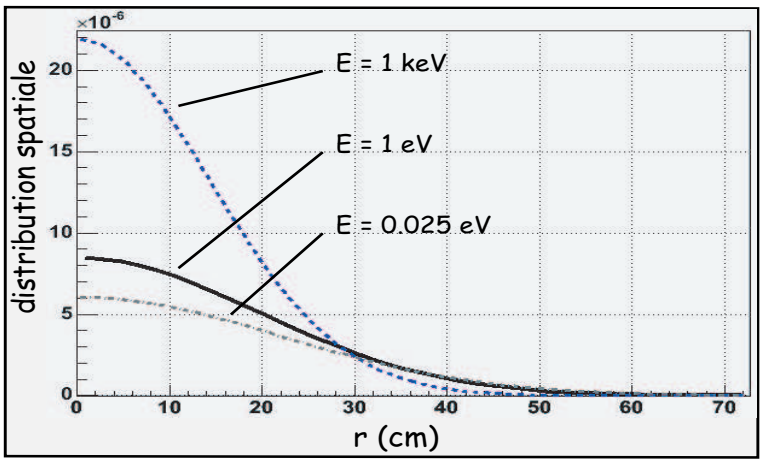


FIG. 2.1 – *Distribution spatiale des neutrons en fonction de la distance r par rapport à la source des neutrons d'énergie initiale* $E_o = 2.5\,MeV$ *ralentis jusqu'à* $E = 1\,keV$, $E = 1\,eV$ *et* $E = 0.025\,eV$.

temps de ralentissement de taille satisfaisante du point de vue de la neutronique.

Le massif de graphite acquis par le groupe physique des réacteurs a été fournit par GrafTech [GT05]. Sa densité moyenne ρ mesurée à partir de différents échantillons à conduit à une valeur de $\rho = (1.749 \pm 0.010)\,g.cm^{-3}$. Il se compose de deux cylindres de $50\,cm$ de rayon et de hauteur $50\,cm$. Chaque cylindre possède un canal central de $10\,cm$ de rayon et six canaux périphériques (de $7.5\,cm$ de rayon) uniformément répartis. Pour les mesures de section efficace, les canaux sont comblés à l'aide de cylindre de graphite, à l'exception d'un demi-canal central permettant d'introduire le système de production de neutrons (cf. figure 2.2).

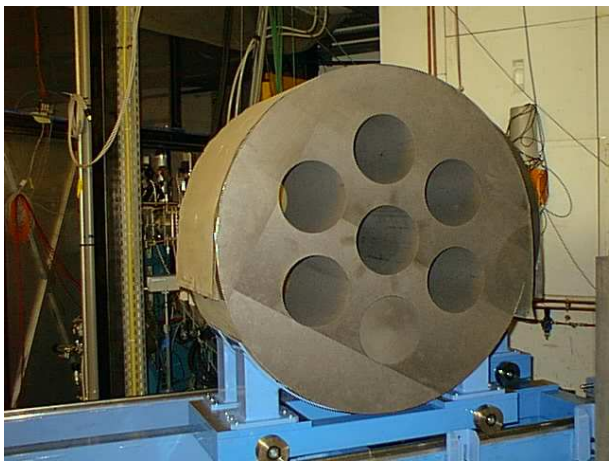


FIG. 2.2 – *Photo d'un des deux cylindres composant le massif de graphite.*

Bien que la qualité du graphite en terme de pureté soit très bonne, il contient de faibles quantités d'impuretés qui peuvent s'avérer gênantes. La détermination de leur nature et de leurs proportions atomiques a été réalisée par analyse par activation neutronique au CEA Saclay [De05] et a conduit à la mise en évidence de nombreuses impuretés (une cinquantaine d'éléments) dans des quantités de l'ordre du *ppm*. L'analyse par simulation numérique devant reproduire l'expérience le plus fidèlement possible, il convient de déterminer précisément l'influence de ces impuretés sur les mesures. Bien qu'il apparaît évident que quelques *ppm* d'impuretés ne vont avoir aucune influence sur le ralentissement des neutrons[2], un effet peut apparaître sur l'absorption des neutrons au cours du ralentissement via des réactions de capture radiative. La grandeur pertinente pour déterminer l'influence d'une impureté est alors $N_i\sigma_i$ où N_i est la concentration atomique de l'élément i de section efficace de réaction (n,γ) égale à σ_i. Ces grandeurs doivent être comparées à la grandeur équivalente pour le carbone. La figure 2.3 montre la superposition en fonction de l'énergie de ces grandeurs où la concentration atomique du carbone a été fixée à 10^6. Les N_i se réduisent alors à la proportion atomique en *ppm* de l'impureté i.

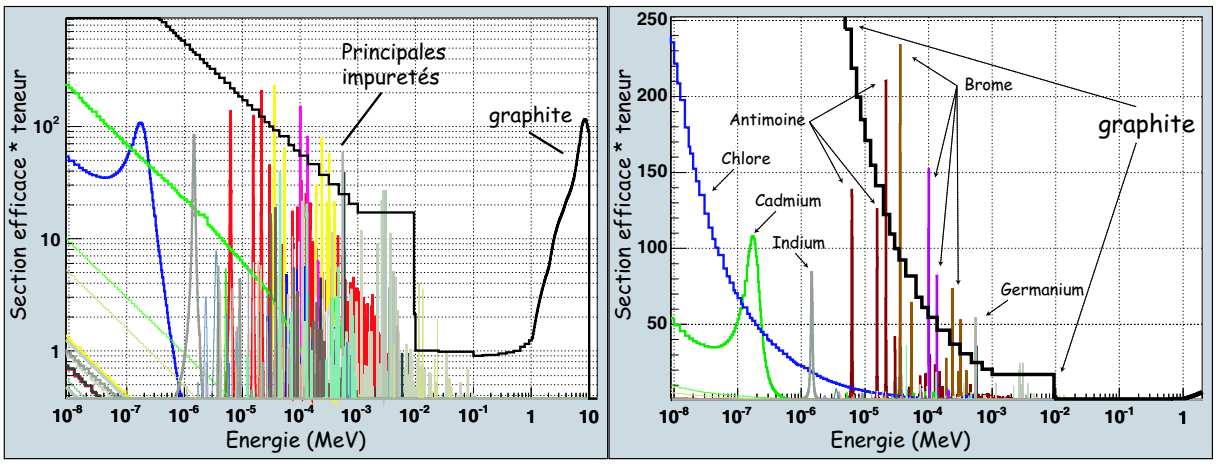


FIG. 2.3 – *Superposition sur un large spectre énergétique de toutes les grandeurs calculées $N_i\sigma_i$ pour la cinquantaine d'impuretés présentes comparées à la grandeur équivalente pour le graphite. Le spectre de gauche est en échelle log et celui de droite, en linéaire.*

Nous fixons arbitrairement un critère de sélection des principales impuretés en considérant que seules les impuretés dont la valeur de $N_i\sigma_i$ au niveau des principales résonances est supérieure à 10% du $N\sigma$ du graphite. Ce critère conduit au tableau 2.1, énonçant les impuretés non-négligeables présentes dans le graphite.

Nous verrons dans le Chapitre 3, qu'une faible proportion de neutrons peut s'échapper du massif de graphite, diffuser sur l'environnement expérimental et revenir diffuser dans le graphite perturber

[2] *L'étude de l'influence des impuretés sur le ralentissement des neutrons dans le graphite a montré qu'une diffusion sur 10000 au plus est réalisée sur une impureté.*

Élément	Fraction(ppm)	Élément	Fraction (ppm)
Brome (79)	0.25	Chlore	4
Brome (81)	0.25	Cadmium	0.015
Antimoine	0.08	Germanium (76)	0.22
Indium	0.003	Césium (133)	0.0002

TAB. 2.1 – *Fractions atomiques en ppm d'atomes de carbone des impuretés pouvant être considérées comme non-négligeables dans le graphite. Les chiffres entre parenthèses représentent l'isotope concerné.*

les mesures. Nous avons cependant protégé le cylindre de graphite par une couverture de $0.5\,mm$ de cadmium afin de réduire l'influence de ces neutrons. En effet, le cadmium est transparent aux neutrons rapides s'échappant du massif mais absorbe efficacement les neutrons thermalisés par l'environnement. L'aspect finalisé du massif de graphite est montré figure 2.4.

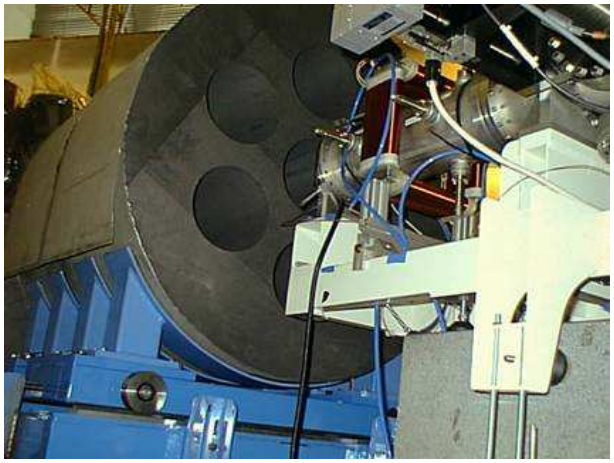


FIG. 2.4 – *Photo du massif de graphite sous sa forme définitive lorsqu'il est couplé au générateur de neutrons.*

Enfin, le cylindre est posé sur un berceau en acier lui-même posé sur un rail permettant sa translation perpendiculairement à l'axe du faisceau. Cela permet de passer aisément d'une configuration "graphite" à une configuration incluant le massif de Téflon.

2.1.2 Le massif de Téflon (CF_2)

Industriellement, le Téflon est produit sous forme de plaques comprimées de densité voisine de $2\,g.cm^{-3}$.

Le libre parcours moyen d'un neutron dans le Téflon pris à cette densité est $\lambda_s \sim 3\,cm$, soit du

même ordre de grandeur que celui dans le graphite. Le Téflon se compose d'un atome de carbone pour deux atomes de Fluor de masse atomique $A = 19$. Le ralentissement des neutrons dans le Téflon et le graphite étant comparable, nous optons pour un cube de Téflon de $1\,m$ d'arête. Il se compose de vingt plaques de $1 \times 1\,m^2$ et de $5\,cm$ d'épaisseur. Un canal central rectangulaire de $10\,cm$ d'arête a été aménagé au centre du massif afin d'insérer la source de neutrons et le système de détection. Pour la même raison que dans le cas du graphite, nous avons protégé le cube de Téflon par $0.5\,mm$ de cadmium. Enfin, la densité moyenne du massif de Téflon a été mesurée à $\rho = (2.167 \pm 0.010) g.cm^{-3}$.

La mise en évidence des impuretés principales présentes dans le massif de Téflon a été effectuée au CEA Saclay [De05] et des calculs similaires au cas du graphite ont mené aux courbes de la figure 2.5.

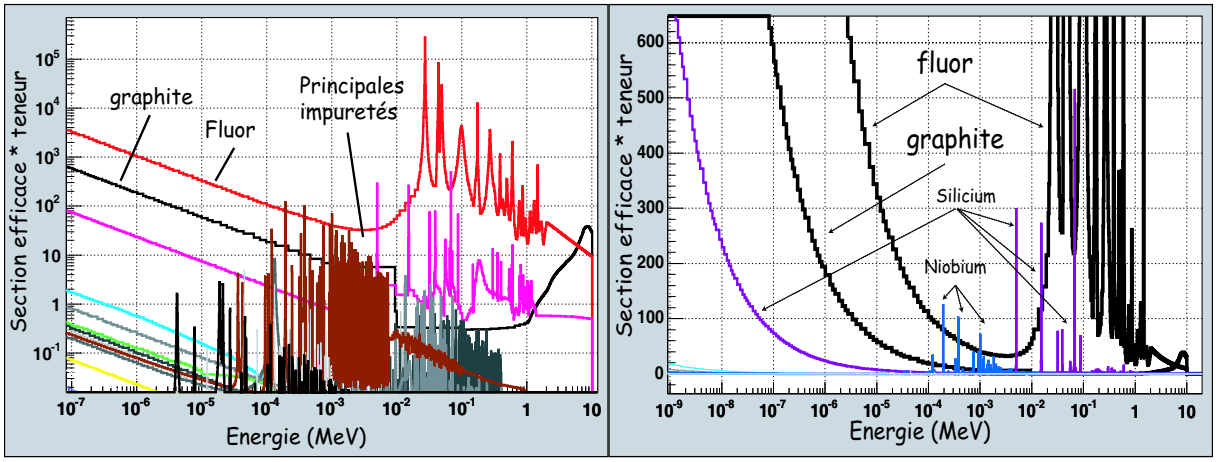


FIG. 2.5 – *Superposition sur un large spectre énergétique de toutes les grandeurs calculées $N_i\sigma_i$ pour la centaine d'impuretés mesurées dans le Téflon comparées aux grandeurs équivalentes pour le graphite et le fluor. Le spectre de gauche est en échelle log et celui de droite, en linéaire.*

Les impuretés principales ont donc été identifiées et sont présentées sur le tableau 2.2.

Élément	Fraction(ppm)
Silicium (79)	500
Niobium (93)	0.5
Cobalt (59)	0.01

TAB. 2.2 – *Fractions atomiques en ppm de molécules de Téflon des impuretés pouvant être considérées comme non-négligeable dans le massif. Les chiffres entre parenthèses représentent l'isotope concerné.*

2.1.3 Le bloc de fluorure de lithium

Nous avons déjà mentionné dans le premier chapitre les problèmes liés au retard dans l'élaboration d'un bloc de fluorure de lithium.

Le conditionnement du fluorure de ^7Li va se faire dans le laboratoire de chimie de la plate-forme PEREN (courant Novembre 2005). Il est convenu que le fluorure de lithium, fourni sous forme de poudre, soit fondu dans un creuset cylindrique en graphite de $25\,cm$ de hauteur pour $20\,cm$ de diamètre et sera introduit dans le canal central du massif de graphite. Le creuset inclura un "puits" par lequel le système de détection pourra être introduit [He05].

2.2 Le GEnérateur de NEutrons Pulsé Intense (GENEPI II)

2.2.1 Description

Le générateur de neutrons GENEPI II a été construit au LPSC par le service accélérateur [Ge03]. Il a été conçu sur les même principes que GENEPI I, également construit au LPSC et utilisé de 1999 à 2001 pour des validations de bases de données de sections efficaces à l'aide d'un spectromètre à temps de ralentissement au plomb [Pe01]. Le générateur GENEPI I fut ensuite transféré au C.E.N. de Cadarache pour être couplé au réacteur MASURCA dans le cadre des expériences *MUSE* [Vo04, MU04]. Le nouveau générateur de neutrons pulsé GENEPI II, de fonctionnement similaire au précédent, fut exploitable dès septembre 2003. Il est montré figure 2.6.

GENEPI produit des neutrons par bombardement d'une cible de noyaux légers (D ou T) par un faisceau d'ions deutérium. Le courant crête d'une impulsion est de l'ordre de $50\,mA$ tandis que la largeur d'une impulsion est inférieure à $600\,ns$. Sa fréquence de répétition d'impulsion est ajustable de quelques Hz jusqu'à $4\,kHz$.

Un plan d'ensemble de PEREN montrant le couplage de GENEPI II avec les différents massifs ralentisseurs est représenté figure 2.7. Les deutons sont générés par une source pulsée de type duoplasmatron située dans une enceinte à haute tension. Ces ions sont extraits de la source à une énergie de $40\,keV$ puis sont électrostatiquement focalisés et guidés dans un tube accélérateur où ils atteignent $250\,keV$ d'énergie cinétique. Pour éliminer les ions parasites, tels que des ions D_2^+ produits dans le duoplasmatron, le faisceau est analysé par un dipôle magnétique à $45°$ qui sélectionne les ions D^+ uniquement. Le faisceau résultant est finalement focalisé puis guidé jusqu'à la cible de noyaux légers (figure 2.6).

Un tube sous vide appelé "doigt de gant" assure l'introduction du faisceau d'ions dans un des massifs ralentisseurs. Il est de longueur ajustable pour s'adapter aux différentes configurations expérimentales.

La cible de noyaux légers produisant les neutrons est située au bout du doigt de gant. Nous avons

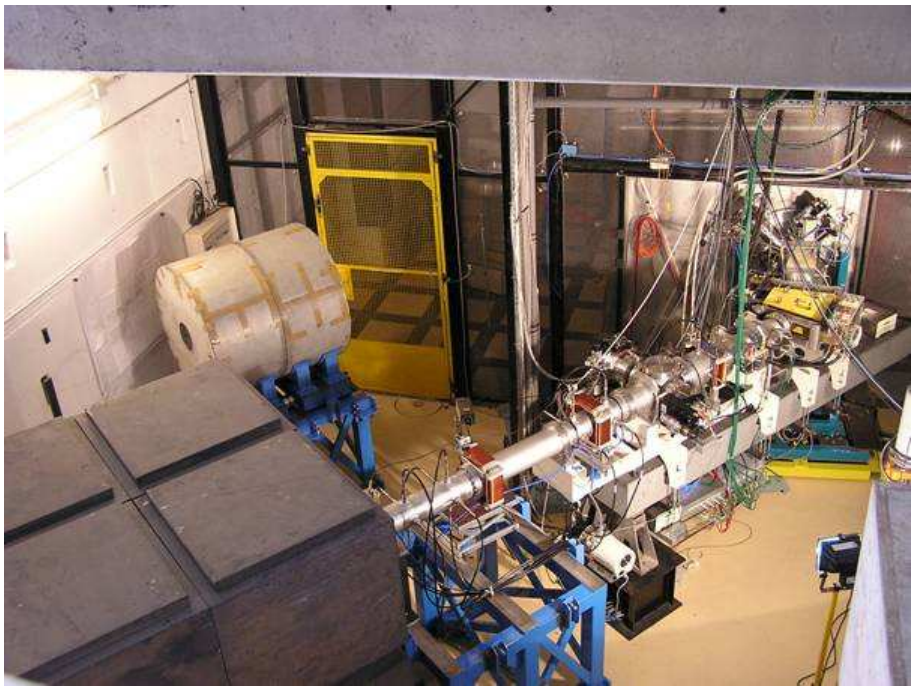


FIG. 2.6 – *Photo d'une partie du générateur de neutrons GENEPI II dans une configuration le couplant au massif de plomb.*

à disposition deux cibles de production de neutrons :

• une cible de tritium :

$$d + T \rightarrow^4 He + n \tag{2.6}$$

Les neutrons ainsi produits sont émis de manière quasi-isotrope et ont une énergie de l'ordre de $14 MeV$.

• une cible de deutérium :

$$d + D \rightarrow^3 He + n \tag{2.7}$$

Cette réaction conduit à une distribution spatiale non-isotrope et les neutrons obtenus ont une énergie moyenne de $2.5 MeV$. Toutes les expériences ont été réalisées avec une cible de deutérium. La réaction $D(d,n)^3He$ produit moins de neutrons que la réaction $T(d,n)^4He$. De plus, la distribution énergétique et angulaire dans ce cas est bien plus complexe que dans le cas d'une cible Tritium. Néanmoins, le nombre de neutrons produits par la réaction $D(d,n)^3He$ est amplement suffisant pour assurer une statistique satisfaisante. Par ailleurs, l'énergie du premier état excité du carbone étant de l'ordre de $4.4 MeV$, l'utilisation de la réaction $d+D$ nous permet de générer des neutrons d'énergie inférieure à ce seuil, contrairement à la réaction $d+T$ qui impliquerait alors une forte production de

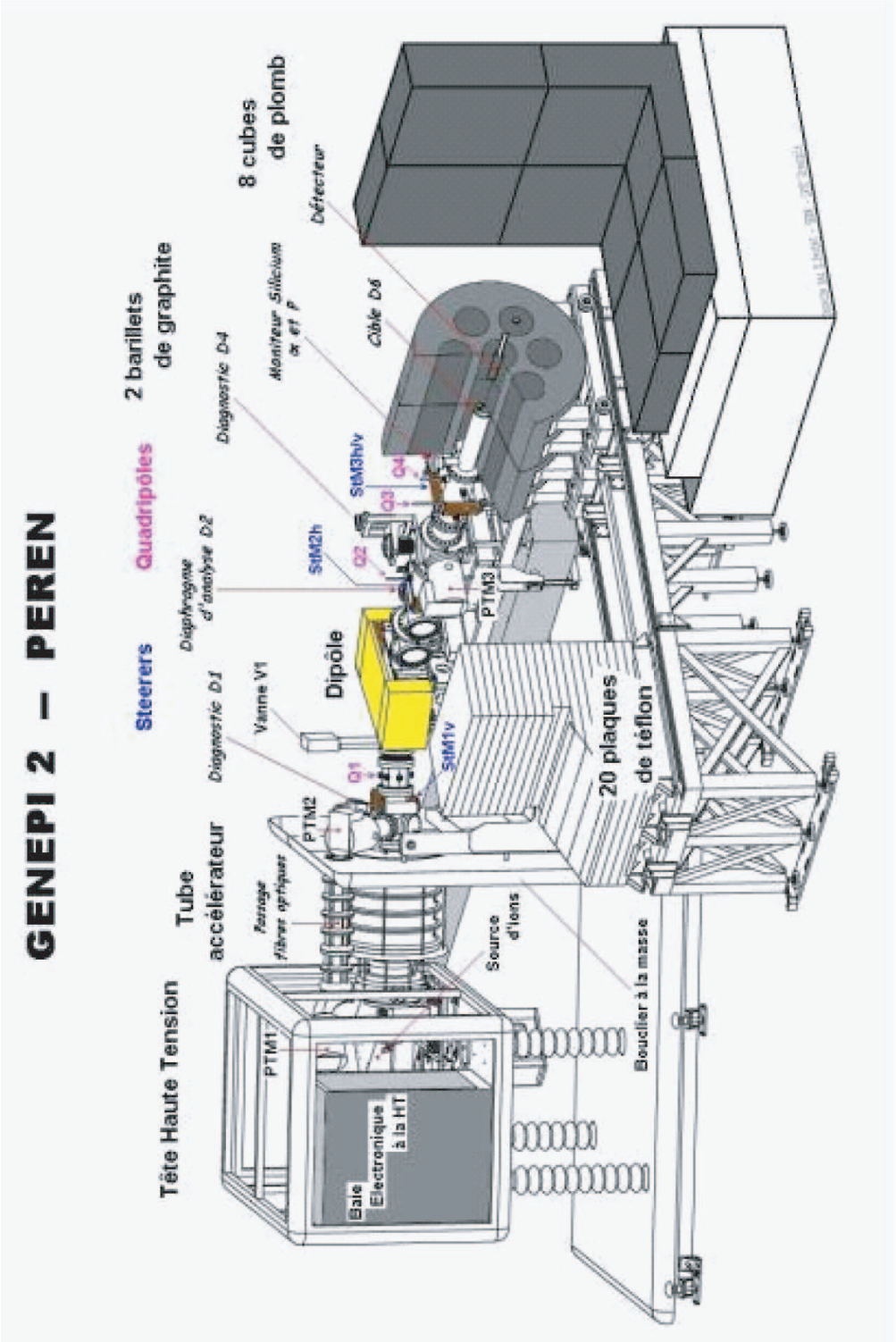


FIG. 2.7 – *Schéma du générateur de neutrons GENEPI II et ses différentes possibilités de couplage.*

gammas de $4.4\,MeV$ très pénétrants. En comparaison, le seuil du premier niveau du ^{19}F se situe vers la centaine de keV et produit des gammas de $200\,keV$ facilement auto-absorbés.

La cible de production de neutrons utilisée est composée de deutérium adsorbé dans une mousse de titane. Le rapport $\tau = \frac{N_D}{N_{Ti}}$ du nombre d'atomes de deutérium sur le nombre d'atomes de titane est tel que $\tau = 1.25 \pm 0.70$ [SO03]. Il est difficile à déterminer précisément, d'où la grande incertitude sur ce rapport. De plus, des deutons s'implantent dans la mousse de titane au cours du fonctionnement et le nombre d'atomes de deutérium peut donc fluctuer au cours du temps.

Un système de monitorage absolu de la source de neutrons est intégré au générateur de neutrons GENEPI. Il se compose d'un détecteur semi-conducteur Silicium installé en amont de la cible dans le doigt de gant à $4\,cm$ au dessus de l'axe du faisceau (cf figure 2.8). Ce détecteur de particules chargées va permettre de déterminer au cours d'une acquisition le nombre de neutrons générés au niveau de la cible de production de neutrons.

Le principe est basé sur la détection de particules dont l'émission est corrélée à celle des neutrons. En effet, la réaction $d + D$ conduit à deux voies de réaction, une voie neutron (cf. équation (2.7)) et une voie proton, quasi-équiprobables. Cette dernière s'écrit :

$$d \; + \; D \; \rightarrow T \; + \; p \tag{2.8}$$

Les protons générés ont une énergie moyenne de $3\,MeV$, plus de 10 fois supérieure à l'énergie initiale du projectile ($250\,keV$). Nous pouvons donc considérer que la totalité des protons émis vers l'arrière, dans la direction du détecteur, peuvent s'échapper de la couche de titane deuterée.

Le schéma de principe du monitorage des neutrons est représenté figure 2.8. L'angle solide de détection étant connu, il est possible de relier le nombre de protons détectés au nombre total de protons générés, ce dernier pouvant s'exprimer en fonction du nombre total de neutrons émis au cours d'une acquisition.

Le détecteur est muni d'un diaphragme de $3.192\,mm$ de diamètre, relativement petit, pour limiter le taux de comptage. En effet, nous devons nous assurer qu'il est faible afin que la probabilité de détecter un unique proton lors d'une impulsion GENEPI soit très supérieure à celle d'en détecter plusieurs.

2.2.2 Évaluation du nombre de neutrons par impulsion

Deux types d'interaction majoritaire vont caractériser le passage du deuton à travers la cible deuterée. D'une part, le ralentissement de celui-ci par interaction avec les atomes du milieu (caractérisé par la grandeur $\frac{dE}{dx}(E_d)$) et d'autre part, sa disparition par interaction avec le deutérium de la cible, via les deux voies de réaction décrites dans le paragraphe précédent dont les sections efficaces, $\sigma_p(E_d)$ et $\sigma_n(E_d)$, sont tabulées [Ha99]. Nous en avons extrait les points puis les avons ajustés ces sections efficaces par deux polynômes d'ordre 3, que nous représentons figure 2.9.

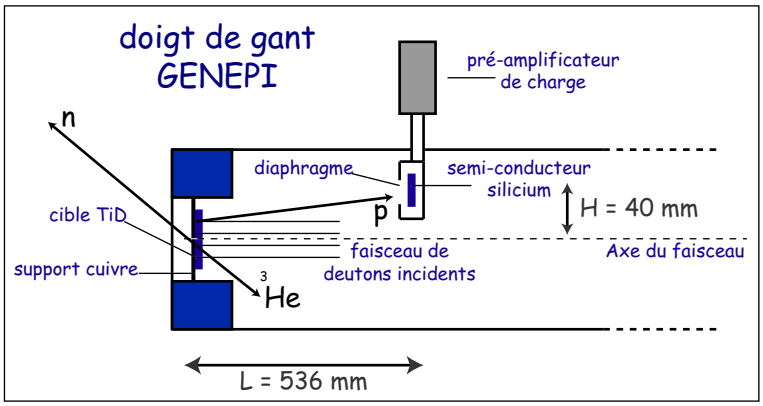


FIG. 2.8 – *Schéma de principe du monitorage de la source de neutrons. Une fraction des protons générés au niveau de la cible TiD est détectée par le semi-conducteur silicium.*

Le nombre de protons créés par impulsion GENEPI s'écrit:

$$n_{p/G} = \int_0^e \sigma_p(E_d(x)) n_d(x) N_D dx \tag{2.9}$$

où $\sigma_p(E_d(x))$ est la section efficace de réaction de la voie proton pour des deutons d'énergie E_d correspondant à la distance x, $n_d(x)$ est le nombre de deutons transmis à la profondeur x dans la cible (avec $n_d(0) = n_{d/G}$, nombre de deutons pénétrant dans la cible pour une impulsion GENEPI), N_D est la densité atomique par unité de volume en deutérium de la cible et e son épaisseur. Nous pouvons faire l'approximation [Le84] que le nombre de deutons transmis à la profondeur x est constant jusqu'à la profondeur R, parcours projeté des deutons dans la cible, puis nulle au-delà (nous avons vérifié que la condition $R < e$ est respectée). Nous négligeons ici la perte de deutons par réactions nucléaires. L'intégrale (2.9) se transforme de la manière suivante:

$$n_{p/G} = n_d(0) N_a \int_0^{E_0} \sigma_p(E_d) \frac{1}{\frac{A_{Ti}}{\tau}\left(\frac{dE_d}{\rho_{Ti} dx}\right)_{Ti} + A_D\left(\frac{dE_d}{\rho_D dx}\right)_D} dE_d \tag{2.10}$$

où A_{Ti} et A_D sont respectivement les masses molaires du titane et du deutérium. ρ_{Ti} et ρ_D symbolisent les densités partielles en titane et deutérium et N_a est le nombre d'Avogadro. La section efficace de la voie proton $\sigma_p(E_d)$ représentée figure 2.9 est connue et les pertes d'énergie sont tabulées [Be05]. Le nombre de deutons envoyés sur la cible par impulsion GENEPI peut être déduit du courant moyen mesuré sur celle-ci lors d'une acquisition. En effet, nous avons $i = \frac{dq}{dt}$, soit $dn_d = \frac{idt}{e}$ où dn_d est le nombre de deutons traversant une section perpendiculaire à la direction de propagation pendant le temps dt et e, la charge élémentaire. Nous avons donc:

$$n_d(0) = \frac{i}{ef} \tag{2.11}$$

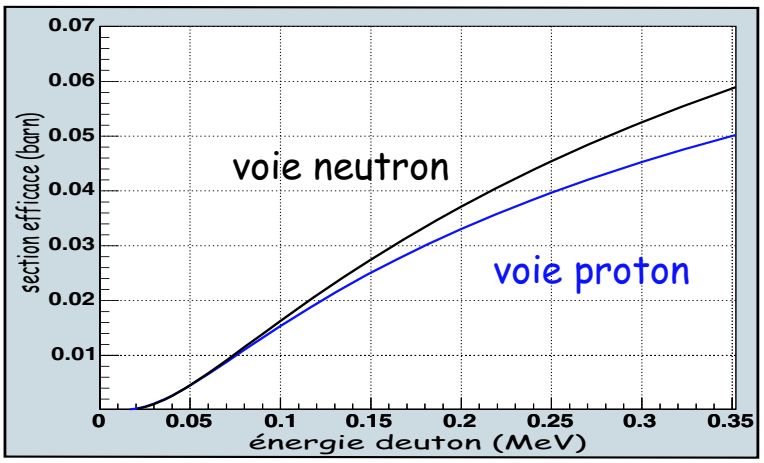


FIG. 2.9 – *Sections efficaces des voies neutron et proton en fonction de l'énergie du deuton dans le référentiel du laboratoire.*

Nous calculons le nombre de protons émis par impulsion GENEPI pour une fréquence $f = 500\,Hz$ et un courant $i = 11\ \mu A$. L'application numérique nous donne un nombre de deutons par impulsion GENEPI $n_{d/G} \sim 140.10^9\,deutons/impulsion$. Nous avons donc le nombre moyen théorique de protons issus d'une impulsion GENEPI, après le calcul de l'équation (2.10):

$$n_{p/G} \sim 25000 \pm 10000 \tag{2.12}$$

L'incertitude associée est fonction de l'incertitude, très élevée, sur τ uniquement. En considérant l'équation (2.10) et en l'appliquant à la voie neutron, nous pouvons obtenir le rapport entre le nombre de protons et de neutrons émis:

$$n_{n/G} = n_{p/G} \frac{\displaystyle\int_0^{E_0} \sigma_n(E) \frac{1}{\frac{dE_d}{dx}} dE_d}{\displaystyle\int_0^{E_0} \sigma_p(E) \frac{1}{\frac{dE_d}{dx}} dE_d} \tag{2.13}$$

L'intégration numérique de cette expression nous conduit au nombre de neutrons par impulsion:

$$n_{n/G} = 1.11\, n_{p/G} \tag{2.14}$$

Notons que l'évaluation du nombre de protons émis par impulsion GENEPI est une grandeur très incertaine du fait de l'incertitude associée au rapport τ du nombre d'atomes de titane sur celui de deutérium. En revanche, le facteur 1.11 entre le nombre de protons émis par rapport aux neutrons est fiable (son erreur est inférieure à 0.03%), l'équation (2.13) étant relativement peu sensible à

l'incertitude sur τ. Nous obtenons finalement le nombre de neutrons émis par impulsion GENEPI:

$$n_{n/G} \sim 27750 \pm 10000 \tag{2.15}$$

2.3 Le système de détection

2.3.1 Le détecteur de gammas

Le détecteur principal utilisé dans nos expériences va fournir l'information relative au temps de détection des neutrons. Il s'agit d'un photo-multiplicateur couplé à un scintillateur qui permet de détecter les gammas associés aux réactions de captures radiatives induites par les neutrons sur des noyaux cibles. Le scintillateur utilisé doit satisfaire plusieurs critères :

- Il doit avoir une section efficace de capture neutronique aussi faible que possible.
- Son temps de réponse doit être court pour permettre des mesures temporelles précises.
- Il doit avoir un rendement lumineux suffisant.

Le scintillateur retenu est un cristal de type $YAP(Ce)$ [SG05], de formule chimique $YAlO_3$, dont les éléments capturent peu. Son temps de réponse est de $30\,ns$. Il bénéficie d'un rendement lumineux acceptable (30% du rendement lumineux d'un NaI). Le YAP est de géométrie cylindrique de rayon $1\,cm$ pour une hauteur de $1\,cm$. Une couche de graisse optique assure une bonne transmission lumineuse entre le YAP et le photo-multiplicateur. Enfin, ce scintillateur émet dans l'UV d'où l'utilisation d'un $PM\ XP1918$ [PH05] muni d'une fenêtre transparente aux UV. On notera que l'embase du PM est en Téflon de façon à éviter la présence de matériaux hydrogénés (plastiques) qui thermalisent très rapidement les neutrons. L'ensemble est maintenu dans un support en Téflon muni de trois bagues de serrages en dural.

La photo de l'ensemble est donnée figure 2.10.

Le détecteur est ainsi placé dans le canal central du massif de graphite ou de Téflon (en face du doigt de gant) de sorte que le scintillateur soit à $26\,cm$ du centre des massifs.

Un spectre d'étalonnage obtenu avec une source gamma de ^{137}Cs mono-énergétique d'énergie $E_\gamma = 661\,keV$ est représenté figure 2.11.

Le pic photo-électrique apparaît clairement ainsi que le front Compton et le pic de rétro-diffusion. Le rapport mesuré du nombre d'événements Compton sur le nombre d'événements dans le pic photo-électrique est de 6.5. La résolution $R = \frac{\Delta E}{E}$ de l'ensemble de détection a été calculé sur le pic photo-électrique et a conduit à la valeur $R = 12\%$.

2.3.2 Le montage électronique

Le montage électronique est représenté figure 2.12.

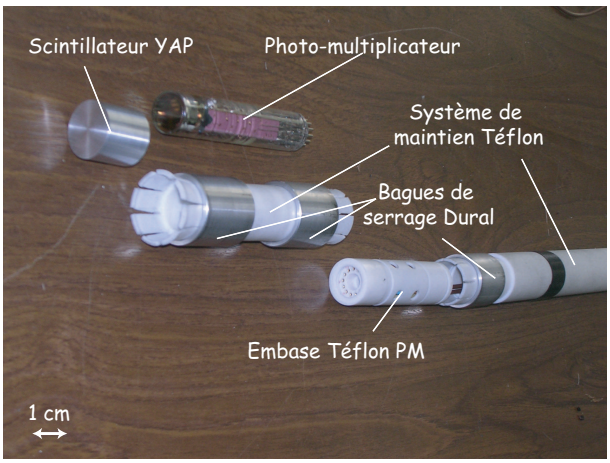


FIG. 2.10 – *Ensemble de détection constitué par le scintillateur YAP, le photo-multiplicateur et le support en Téflon.*

Les trois signaux d'entrée indépendants sont :

- Le signal fourni par la jonction silicium.
- Le signal associé à l'impulsion GENEPI.
- Le signal fourni par le photo-multiplicateur.

La jonction Silicium détecte des particules chargées et fournit un signal proportionnel à l'énergie déposée. Ce signal est alors distribué sur deux voies. L'une de ces voies fournit après traitement un signal logique qui sert à coder l'instant d'arrivée de la particule chargée détectée. L'autre voie contient l'information sur l'énergie déposée dans le détecteur Silicium.

Le signal délivré par le photo-multiplicateur est distribué sur deux voies de la même manière que précédemment. Une voie contient l'information sur l'énergie déposée dans le scintillateur *YAP*. La voie relative au temps de détection des gammas crée un signal logique à partir du signal initial.

A ce niveau, si nous stockons directement les signaux issus du *YAP*, nous avons constaté que l'interaction des deutons avec la cible produit un "flash gamma" de courte durée ($\sim 1\,\mu s$) introduisant un temps mort relativement élevé perturbant la détection des évènements suivants. Pour pallier ce défaut, nous avons exclu les événements provenant de ce flash gamma par un VETO électronique.

2.3.3 L'acquisition

Les signaux obtenus sont envoyés vers un système d'acquisition qui se compose d'une carte *ADCVME* 8 voies et d'un module de stockage des données. Chaque voie de la carte comporte une entrée énergie et une entrée temps. La carte est reliée au module de stockage des données que l'on peut visualiser en cours d'acquisition via le logiciel *OASIS* [Bi03]. Une voie est réservée à l'impulsion GENEPI. Deux voies couplées sont utilisées pour coder le signal du photo-multiplicateur ainsi

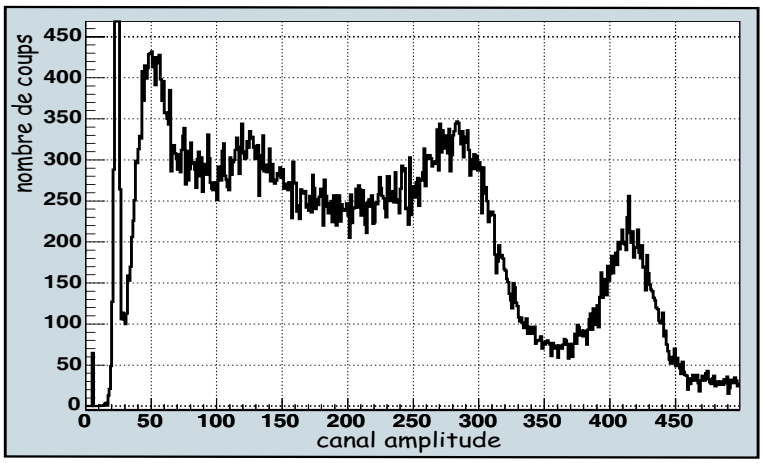


FIG. 2.11 – *Réponse en amplitude du détecteur Photo-multiplicateur couplé à un scintillateur YAP soumis à un faisceau de gamma mono-énergétique.*

que celui du détecteur silicium. Le fait de coupler les voies deux à deux permet de réduire le temps mort dû au codage d'un facteur proche de deux. En effet, lorsqu'une voie traite une donnée et qu'une autre impulsion arrive, cette dernière bascule sur la voie couplée.

Le module de stockage des données reçoit simultanément, pour un signal, une information sur son temps d'arrivée et sur son amplitude. Le temps absolu par rapport au "zéro" de l'horloge interne du système d'acquisition est codée sur $42\,bits$. L'horloge interne est cadencée à $40\,MHz$, ce qui implique des canaux de $25\,ns$. L'amplitude du signal est codée sur $13\,bits$ qui correspondent à une dynamique de $8\,V$.

Un "bit d'empilement" est associé à chaque signal stocké. Ce bit prend la valeur 1 si un signal temps arrive pendant le codage de l'amplitude d'un événement signifiant alors que le signal codé est susceptible d'être déformé par la superposition de deux événements non résolus.

Nous avons alors pour une acquisition, un fichier de sortie qui contient une suite d'événements. Chaque événement contient les informations suivantes :

- Le numéro du codeur de la voie utilisée qui indique si l'événement provient du pulse GENEPI, du photo-multiplicateur ou du silicium.
- L'amplitude du signal détecté, dans le cas du PM ou du silicium, directement proportionelle à l'énergie déposée par les particules détectées.
- Un temps absolu repéré par rapport à l'origine temporelle de la carte *ADCVME*.
- Un bit d'empilement illustrant la perte d'un événement arrivé pendant la détermination de l'amplitude de l'événement courant éventuellement altéré.

Ce fichier est écrit dans un format spécifique à l'acquisition, et nécessite un traitement informatique pour obtenir un format d'écriture lisible par un logiciel d'analyse.

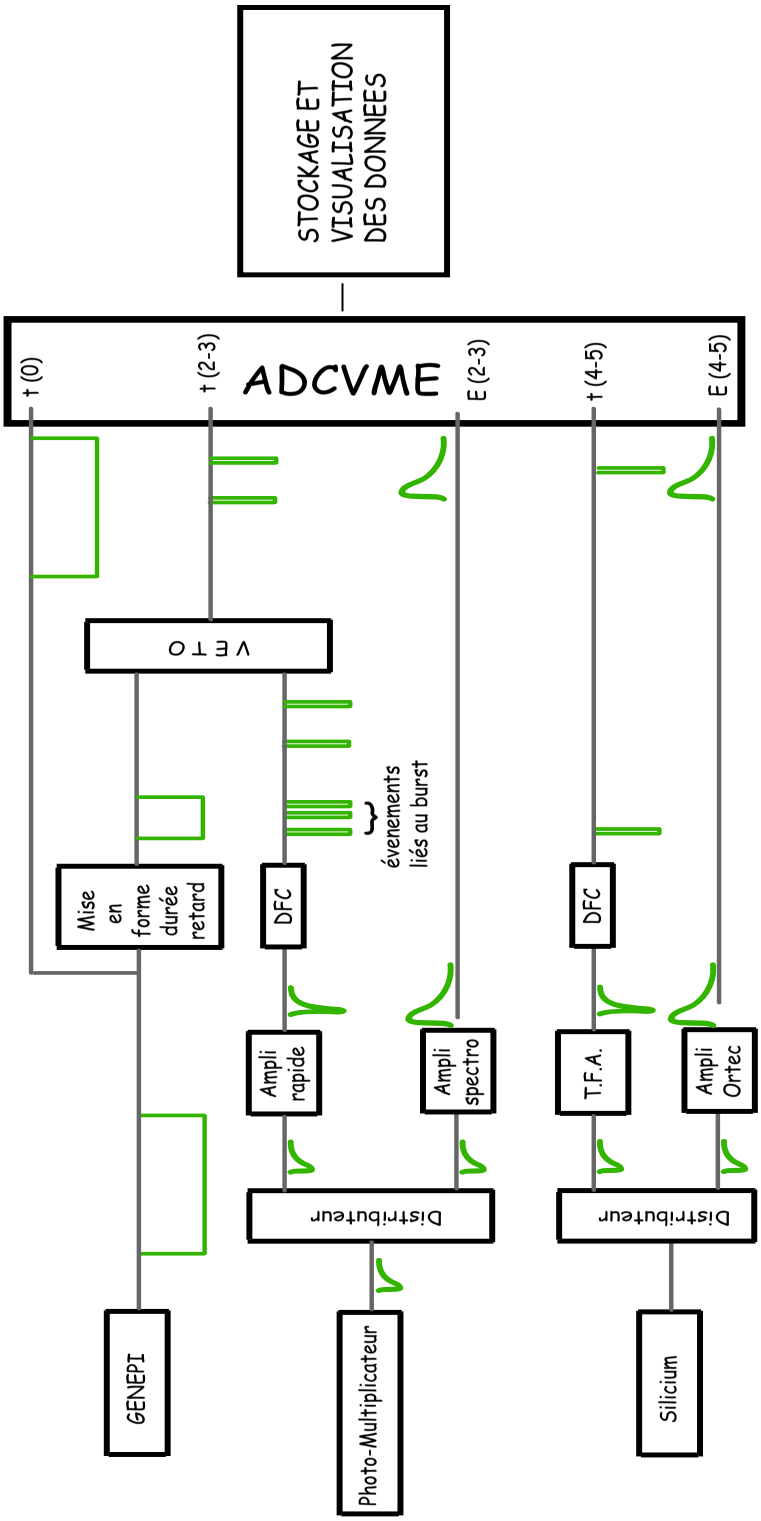


FIG. 2.12 – *Montage électronique de l'expérience.*

2.3.4 Les cibles résonnantes utilisées

L'information sur la section efficace de diffusion élastique du massif ralentisseur est contenue dans la position temporelle de la résonance observée, qui est fonction du ralentissement plus ou moins rapide des neutrons.

Nous avons alors trois critères à imposer à une cible résonnante :

- Elle doit être mince, afin de ne pas trop modifier le ralentissement des neutrons proches du système de détection. Par ailleurs, au niveau d'une résonance, une cible épaisse conduirait à une grande quantité de matière inutile car les absorptions se produiraient au niveau de sa surface. Nous avons alors choisi des épaisseurs de cible du même ordre de grandeur que le libre parcours moyens d'un neutron à l'énergie des résonances principales.
- Elle doit être relativement proche du scintillateur afin d'éviter les pertes de gammas par atténuation dans la matière. Le système de maintien de l'ensemble de détection permet l'insertion et le blocage d'une cible autour du scintillateur de sorte que celle-ci entoure parfaitement le *YAP*. La figure 2.13 illustre ce montage.

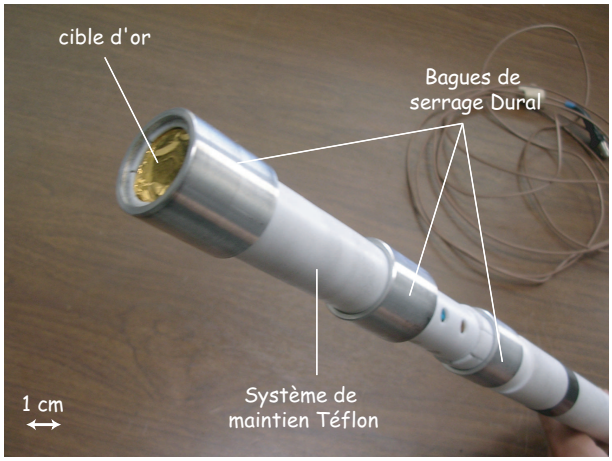


FIG. 2.13 – *Mise en place d'une cible résonante de manière à entourer au mieux le scintillateur.*

- Les résonances de capture radiative doivent être relativement bien résolues et suffisamment intenses pour que les pics en temps attendus soient effectivement observables.

Nous avons sélectionné quatre cibles résonnantes qui correspondent aux critères énoncés. La figure 2.14 montre les section efficaces de réaction (n,γ) de l'or, de l'argent, du molybdène et de l'indium, ainsi que les énergies de leurs principales résonances. Ces caractéristiques proviennent de la base de données nucléaires ENDF-B. Les épaisseurs des cibles sont mentionnées sur cette même figure.

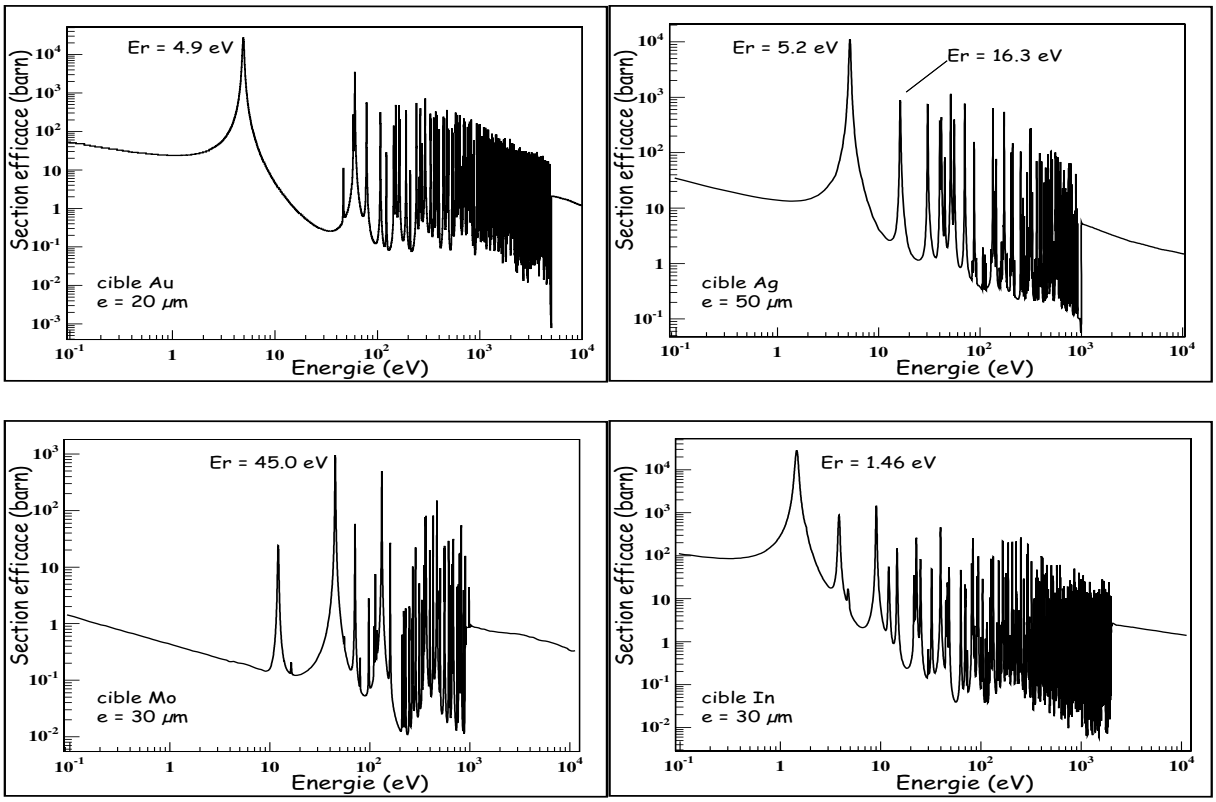


FIG. 2.14 – *Sections efficaces de capture radiative de l'or (en haut à gauche), de l'argent (en haut à droite), du molybdène (en bas à gauche) et de l'indium (en bas à droite). Nous avons inséré sur les graphiques les énergies des résonances que nous allons exploiter et les épaisseurs des cibles utilisées.*

2.4 Les prises de données

Deux séries d'expériences indépendantes ont été réalisées couplant le générateur de neutrons pulsé GENEPI avec le cylindre de graphite et le massif de Téflon. Pour les deux configurations expérimentales (graphite ou Téflon), des acquisitions avec chaque cible ont été réalisées ainsi que des acquisitions sans cible pour les mesures de bruit de fond. Chaque mesure, avec ou sans cible, correspond à une durée d'acquisition de quelques dizaines d'heures. Des acquisitions sans VETO d'un quart d'heure sont effectuées entre chaque mesure avec VETO afin d'obtenir l'information sur le temps initial de création des neutrons. La durée d'une série complète d'expériences exploitables, c'est à dire en cas de bon fonctionnement de l'ensemble expérimental, pour une configuration (graphite ou Téflon) est alors de l'ordre de deux semaines.

Chapitre 3

Description de la simulation numérique

3.1 Le code MCNP

Nous avons utilisé dans ce travail le code de simulation MCNP-4C2, développé au Los-Alamos National Laboratory [Br-97]. C'est un code de simulation Monte-Carlo, c'est à dire qu'il effectue un traitement stochastique pour décrire les phénomènes physiques. Le code est conçu pour le transport des neutrons dans un domaine énergétique qui s'étend de $10^{-5}\,eV$ jusqu'à $20\,MeV$. Il peut aussi traiter le transport des électrons et des photons sous certaines conditions.

Dans le code de calcul MCNP, le transport des particules est géré par leurs probabilités d'interaction avec la matière dans laquelle elles évoluent. Un neutron, par exemple, aura une histoire qui débute à l'instant de sa création t_o. La distance parcourue par ce neutron est générée aléatoirement en fonction du libre parcours moyen qui inclut toutes les voies de réaction possibles. Lorsqu'il y a interaction, un tirage aléatoire qui s'appuie sur les probabilités individuelles des différentes voies de réaction ouvertes (sections efficaces) est réalisé et détermine la réaction entrant en jeu. L'histoire se poursuit ainsi jusqu'à ce que le neutron soit absorbé par un noyau ou qu'il soit transporté en dehors de la zone géométrique définie. Un calcul MCNP se résume donc à une succession d'histoires indépendantes dont le nombre conditionnera la précision du calcul.

Un fichier d'entrée MCNP comprend :

- La définition du milieu correspondant à la structure de l'ensemble à simuler.
- Cette partie inclut la géométrie de l'ensemble créée par la conjugaison de formes géométriques pré-définies dans le logiciel MCNP. Elle inclut de plus la définition des compositions des matériaux présents dans les "cellules" (objets tri-dimensionnels délimités par un ensemble de surfaces). Ces matériaux sont définis par la composition isotopique des différents éléments qui les composent.
- Les sections efficaces des noyaux présents dans les matériaux.

- Les sources de ces sections efficaces sont des évaluations au format ENDF. Des programmes, tels que NJOY [NJ98], convertissent ces évaluations dans un format lisible par MCNP. Différentes bases de données sont accessibles. Les principales, ENDF-B IV (américaine), JENDL-3.3 (japonaise) et JEFF-3.1 (européenne), contiennent la plupart des sections efficaces de nombreuses réactions nucléaires sur un ensemble complet de noyaux. Il existe néanmoins quelques différences dans les évaluations entre les bases sur certains noyaux, d'où l'importance du choix de la base de données pour un noyau.
- Les grandeurs physiques à extraire de la simulation dans le fichier de sortie généré par le calcul MCNP.
- Ces grandeurs correspondent à l'évaluation d'une observable physique, telle qu'un flux, un taux de réaction ou une perte d'énergie, associée à une erreur statistique qui dépend du nombre d'histoires successives réalisées pour la détermination de cette observable. Cette dernière peut être exprimée en fonction de l'énergie et/ou du temps de la particule transportée.

De nombreuses options complémentaires peuvent être ajoutées pour optimiser les résultats. Nous en mentionnerons quelques-unes par la suite lorsqu'elles s'avèreront nécessaires pour comprendre le calcul numérique.

3.2 Construction de la géométrie expérimentale

Une géométrie parfaite serait une description exhaustive et complète de l'ensemble du dispositif expérimental, incluant la totalité des "objets" présents ainsi que des matériaux. Cependant, l'ajout de chaque nouvel objet à la simulation numérique a pour conséquence d'alourdir les tests liés aux calculs donc d'augmenter le temps de calcul pour une statistique identique. Il convient alors de bien repérer les constituants essentiels jouant un rôle principal et éventuellement secondaire dans le ralentissement des neutrons afin d'obtenir un fichier source MCNP optimisé, et de limiter le temps de calcul. Ainsi, l'ensemble du massif ralentisseur incluant le doigt de gant, la protection en cadmium ainsi que le système de détection ont été décrits avec précision. Par contre, des objets d'influence négligeable sur le flux de neutrons à l'intérieur du massif ralentisseur, telle que, par exemple, une vis située dans le guide du faisceau de deutons seront ignorés. Les deux massifs complets, représentés figure 3.1, ont été réalisés avec le logiciel MURE [Me05] développé au sein du groupe Physique des Réacteurs et à l'IPN d'Orsay.

Nous allons détailler maintenant les différentes parties de cette description géométrique.

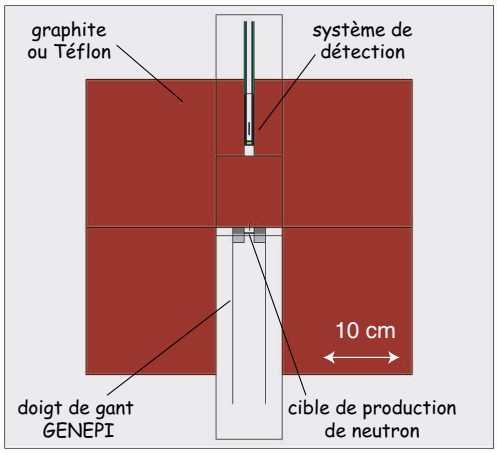


FIG. 3.1 – *Aspect définitif de la géométrie intégrée à la simulation numérique pour le Téflon ou le graphite. La vue représentant une coupe horizontale par rapport au plan Ox (l'axe Oz coïncidant avec l'axe du faisceau incident), les géométries graphite et Téflon se confondent.*

3.2.1 Les massifs

La description du massif de graphite, composé de deux cylindres de $50\,cm$ de hauteur et de diamètre a été reproduite selon les plans du constructeur. Les six canaux périphériques sont définis et remplis de graphite. Cette prise en compte n'est pas utile pour ce travail mais peut permettre ultérieurement de remplir un ou plusieurs canaux par divers matériaux au choix avec facilité pour de futures simulations de la plate-forme PEREN. Le canal central contient de l'air au niveau du cylindre du côté du doigt de gant. Face à ce canal, est placé un cylindre de graphite percé d'un canal plus petit permettant d'introduire le dispositif de détection. Au niveau de la composition du graphite, nous avons respecté les teneurs des impuretés principales du graphite énoncées dans le chapitre précédent.

Le Téflon a été conçu de la même manière en respectant fidèlement les aspects expérimentaux.

Avec cette géométrie ainsi définie, nous pouvons extraire un premier résultat simulé. En effet, nous avons, dans le chapitre précédent, justifié théoriquement la taille des massifs de graphite et de Téflon. Il est possible avec MCNP, d'extraire pour un certains nombre d'histoires générées, la position par rapport à la source de la particule transportée lorsqu'elle atteint une certaine énergie[1]. L'ensemble de ces positions permettent alors de reconstruire la distribution spatiale des neutrons à énergie fixée dans les massifs ralentisseurs. En effet, ces positions finales extraites conduisent à $n_E(r)dr$, nombre de neutrons d'énergie comprise entre E et $E+dE$ se trouvant dans un volume délimité par deux sphères de rayon r et $r+dr$. La distribution spatiale des neutrons que nous appelons $q_E(\overrightarrow{r})\,dV$ est

[1] *Ce calcul se fait par l'intermédiaire de la carte PTRAC [Gu05]. Elle permet de suivre l'évolution d'une histoire et d'extraire de nombreuses observables demandées par l'utilisateur. Dans ce cas, nous avons imposé l'extraction, pour chaque histoire, des coordonnées du neutron lorsqu'il est "tué". Il suffi t de faire varier la coupure en énergie imposée pour changer l'énergie de la distribution spatiale des neutrons.*

proportionnelle au nombre de neutrons d'énergie comprise entre E et $E+dE$ se trouvant dans un volume $dV = r^2 dr\, d\Omega$ repéré par rapport à la source de neutrons par le vecteur $\overrightarrow{r}$. Le nombre total de neutrons d'énergie comprise entre E et $E+dE$ dans la géométrie est une constante et conduit à la proportionnalité des intégrales suivantes :

$$\int_V q_E\left(\overrightarrow{r}\right) dV \propto \int_r n_E(r) dr \tag{3.1}$$

Cette relation conduit naturellement à l'expression de la distribution spatiale des neutrons en fonction de $n_E(r)$:

$$q_E\left(\overrightarrow{r}\right) \propto \frac{n_E(r)}{4\pi r^2} \tag{3.2}$$

Deux simulations numériques, avec des sphères de graphite et de Téflon, ont été réalisées et 50 000 histoires générées ont mené aux distributions spatiales des neutrons à trois énergies différentes (cf. figure 3.2). Nous avons ici simulé le transport des neutrons dans une sphère pouvant être considérée comme infinie, puis extrait les grandeurs recherchées. Le but est d'observer dans un cas idéal la distribution $q_E\left(\overrightarrow{r}\right)$.

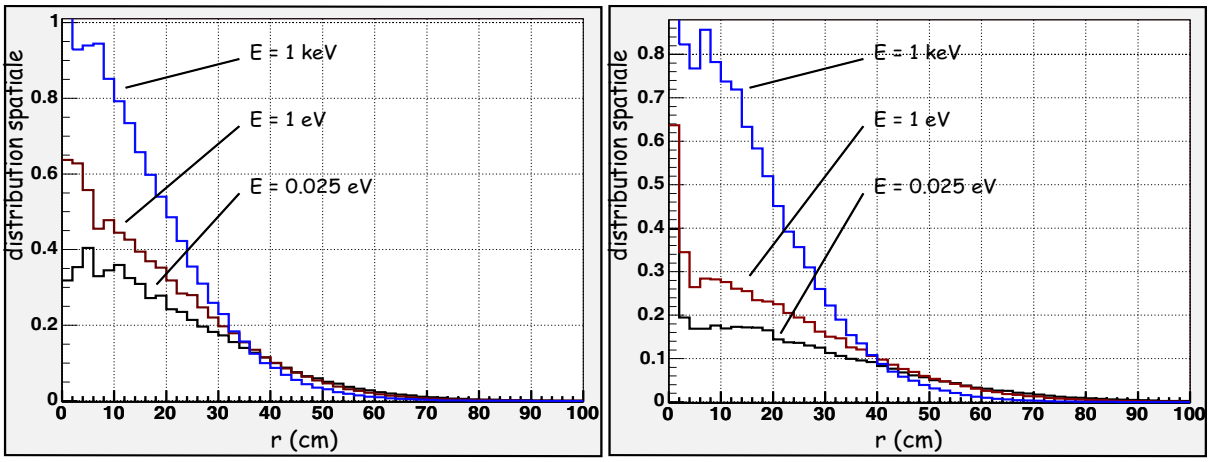


FIG. 3.2 – *Distributions spatiales $q_E\left(\overrightarrow{r}\right)$ dans une sphère infinie de graphite (à gauche) et de Téflon (à droite) à trois énergies de neutrons, $E = 1\,keV$, $E = 1\,eV$ et $E = 0.025\,eV$.*

Les distributions obtenues sont relativement proches des distributions théoriques que nous avons déterminées dans le chapitre précédent. Nous constatons que dans les deux cas, graphite et Téflon, la densité de neutrons par unité de volume à une distance r de la source tend vers 0 aux alentours de $r = 50\,cm$. Nous vérifions ainsi que les tailles des massifs sont alors acceptables physiquement.

Deux autres simulations ont été réalisées avec les massifs tels qu'ils ont été décrits en début de paragraphe. Nous obtenons alors les spectres de la figure 3.3.

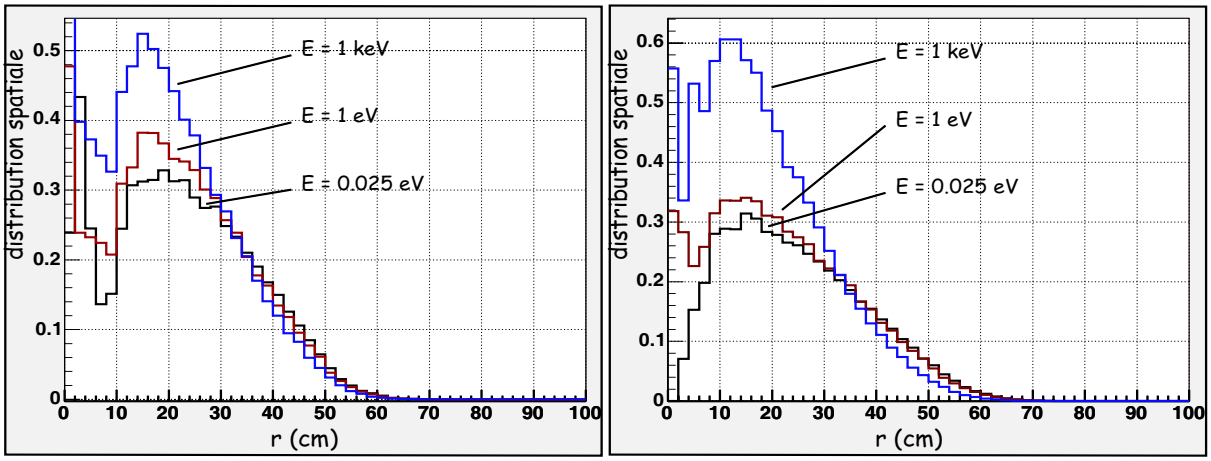


FIG. 3.3 – *Distributions spatiales $q_E(\vec{r})$ dans le cylindre de graphite (à gauche) et le cube de Téflon (à droite) à trois énergies de neutrons, $E = 1\,keV$, $E = 1\,eV$ et $E = 0.025\,eV$.*

Dans le cas de massifs réalistes, les distributions conduisent à la même conclusion, c'est à dire que les $50\,cm$ de rayon pour le graphite et d'arête pour le Téflon sont suffisants. Néanmoins, une différence frappante avec le cas idéal apparaît. En effet, la concentration de neutrons est très faible pour un rayon compris entre 0 et $10\,cm$. Nous expliquons ce phénomène par la présence de vide dans le canal central (de $10\,cm$ de rayon) du coté du doigt de gant GENEPI. Les calculs MCNP réalisés stockent la distance r entre la source et le neutron lorsque celui-ci subit une interaction. Si l'interaction fait passer le neutron d'une énergie E' à une énergie inférieure à E ($E = 1\,keV$, $E = 1\,eV$ ou $E = 0.025\,eV$), la distance r est stockée dans un fichier de sortie. Cette méthode induit donc une chute de la quantité de neutrons dans les zones où peu de diffusions ont lieu. Dans notre cas, le canal central contenant du vide, nous comptons moins de neutrons proches de la cible entre 0 et $10\,cm$, limite du canal central.

3.2.2 Le système de détection

Cet ensemble comprend :

- le scintillateur YAP ($YAlO_3$) ainsi que la graisse optique assurant la bonne transmission de la lumière entre le YAP et le photo-multiplicateur.
- le photo-multiplicateur et ses constituants.
- Le support en Téflon assurant le maintien du détecteur.
- Les bagues de serrage en dural assurant le maintien stable de l'ensemble.

La principale difficulté ici réside dans la modélisation du photo-multiplicateur. Nous avons alors simplifié le problème en cherchant les matériaux à inclure, puis en introduisant la quantité de matière

réelle sans chercher à reproduire la géométrie interne du photo-multiplicateur[2]. Les noyaux principaux présents dans le photo-multiplicateur sont le silicium, l'oxygène (composition du verre) et le cuivre (pour l'ensemble des dynodes).

La modélisation finale du détecteur est représentée et commentée figure 3.4.

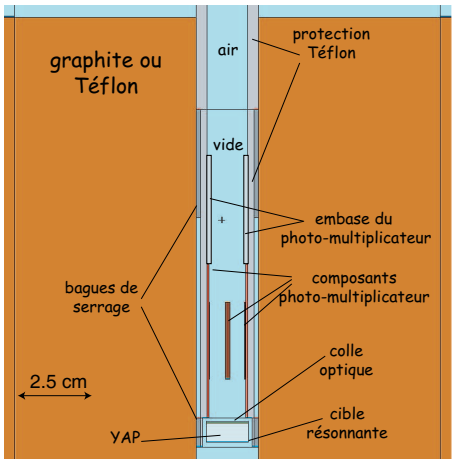


FIG. 3.4 – *Modélisation du système de détection tel qu'il a été introduit dans la simulation numérique. Les spécifications des différentes cellules ont été mises en évidence.*

Enfin, suivant l'expérience que nous cherchons à reproduire, il convient de rajouter au fichier MCNP la cible résonnante correspondante. Ces cibles ont été décrites dans le chapitre précédent. Nous les avons accolées au scintillateur YAP respectant ainsi le protocole expérimental.

3.2.3 Le doigt de gant

Nous nous sommes basés sur les plans fournis par les constructeurs de GENEPI pour décrire le doigt de gant [Ge03]. Nous avons inclus le guide du faisceau, la cible *TiD* de production de neutrons ainsi que son support en cuivre. Le schéma récapitulatif de la modélisation du doigt de gant GENEPI est représenté figure 3.5.

3.2.4 Influence de l'environnement

Il reste maintenant à sélectionner les ensembles externes au massif ralentisseur ayant une influence non négligeable sur le ralentissement des neutrons dans les massifs. Il convient d'intégrer à la simulation numérique l'ensemble des constituants de la salle dont les principaux, en terme de quantité de matière ou de proximité du détecteur sont :

[2] *Le photo-multiplicateur ayant des dimensions de l'ordre de quelques centimètres, du même ordre de grandeur que le libre parcours moyen des neutrons dans le milieu, la défi nition de la quantité exacte de matière est alors beaucoup plus importante que la disposition exacte des matériaux.*

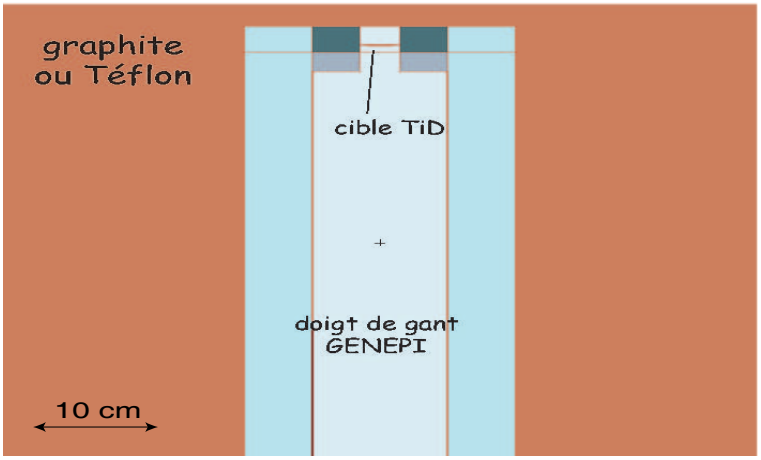


FIG. 3.5 – *Modélisation du doigt de gant GENEPI avec ses constituants.*

- les murs, le sol et le plafond en béton.
- Le support du guide faisceau en granit.
- Le massif de plomb et son socle en plomb et béton.

Il est possible, lors d'un calcul MCNP, de calculer le flux dans une cellule en fonction du temps et/ou de l'énergie et de ne sélectionner que les neutrons qui traversent une cellule ou une surface donnée. La quantité de neutrons qui reviennent dans le massif ralentisseur après avoir diffusé sur l'environnement expérimental se déduit donc facilement par le calcul du flux de neutrons ayant traversé les surfaces délimitant le massif. Le rapport entre ce flux et le flux total exprime alors le "taux de retours". Nous avons extrait ces données pour une cellule de quelques cm^3 située au niveau du scintillateur *YAP* et les résultats sont représentés figure 3.6 pour le cylindre de graphite et le massif de Téflon.

Les courbes en énergie montrant l'importance des retours sont similaires et font apparaître un taux de retours de l'ordre de 0.3% au plus entre 0 et $100\,eV$ dans les cas avec et sans cadmium. Sur les courbes en temps, l'influence du cadmium apparaît clairement au-delà de $400\,\mu s$ tandis qu'elle est moindre en dessous. Le taux de retours dans la plage temporelle d'importance pour nos expériences ($0 \leq t \leq 100\,\mu s$) étant de l'ordre de $0.2\,\%$, nous pouvons alors considérer que l'environnement expérimental n'influera pas sur les simulations numériques des expériences. L'environnement sera donc omis des fichiers MCNP, ce qui implique un gain de temps considérable au niveau du calcul numérique.

3.3 La source de neutrons

Un calcul MCNP génère des particules source dont les caractéristiques sont imposées par l'utilisateur. Les paramètres par défaut ne permettent pas de reproduire l'émission des neutrons issus de la

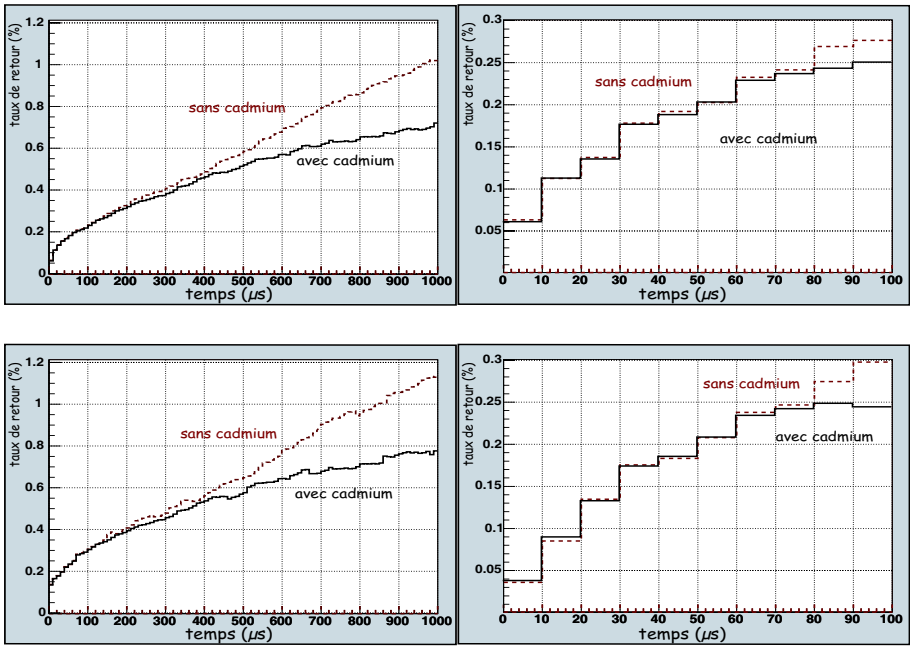


FIG. 3.6 – *Représentation du taux de retour au niveau du détecteur exprimant l'influence sur les taux de comptage de l'environnement expérimental avec ou sans protection cadmium entourant le massif de graphite (courbes du haut) et du Téflon (courbes du bas). Les courbes de gauche s'étendent temporellement jusqu'à* $1\,ms$ *tandis que celles de droite, jusqu'à* $100\,\mu s$.

réaction $D(d,n,)^3He$. Cette réaction est fortement anisotrope dans le centre de masse. D'autre part, la distribution temporelle de l'émission de neutrons est une donnée purement expérimentale. Il est primordial de modéliser fidèlement à la réalité la source de neutrons. La fiabilité des résultats est fortement dépendante de la description de la source de neutrons. Nous allons ici décrire les caractéristiques cinématiques puis temporelles de l'émission de neutrons, afin de les intégrer au calcul numérique.

3.3.1 Description cinématique

Les neutrons sont créés par bombardement de deutons de $250\,keV$ sur une cible de deutérium adsorbé dans une mousse de titane. Comme nous l'avons signalé dans le chapitre précédent, l'interaction entre deux noyaux de deutérium à cette énergie conduit à deux voies de réactions quasiment équiprobables:

- une voie proton qui s'écrit:

$$D + d \rightarrow p + {}^3H \tag{3.3}$$

La chaleur de réaction est $Q = 4.03\,MeV$. Par conservation de l'énergie et de l'impulsion, dans

un référentiel lié au laboratoire où le proton est diffusé à l'angle θ, nous obtenons l'équation suivante liant l'énergie du proton au cosinus de son angle d'émission [Ke87]:

$$E_p = \left[\frac{1}{2}\left(\frac{\sqrt{2}}{2}\sqrt{E_d}\cos\theta + \sqrt{E_d\left(1+\frac{\cos^2\theta}{2}\right)+3Q}\right)\right]^2 \tag{3.4}$$

- une voie neutron qui s'exprime:

$$D + d \rightarrow n + {}^3He \tag{3.5}$$

Les même calculs que précédemment appliqués à la voie neutrons nous donnent (pour des deutons de $250\,keV$) la même relation que l'équation (3.4) où $Q = 3.27\,MeV$.

Les deux distributions associées sont représentées figures 3.7 et 3.8.

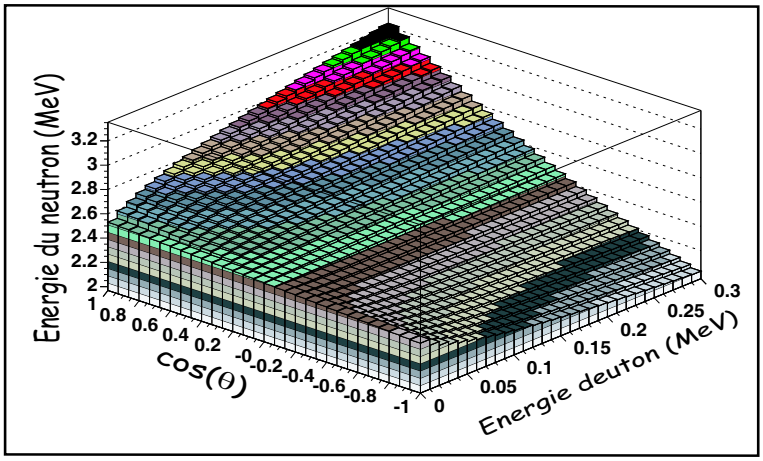


Figure 3.7: *Représentation de l'énergie du neutron émis en fonction du cosinus de son angle d'émission dans le référentiel du laboratoire et de l'énergie du deuton incident.*

La distribution angulaire d'un neutron produit dépend de l'énergie du deuton qui l'a généré. Les tables de données nucléaires [Ha99] contiennent ces distributions que nous représentons figure 3.9. Nous remarquons que les distributions angulaires aux énergies incidentes que nous considérons ne sont pas isotropes et ont une symétrie avant-arrière dans le référentiel du centre de masse.

La distribution angulaire et énergétique de l'émission de neutron a une forme analytique approchée connue [Ha99] et s'exprime comme une somme de polynôme de Legendre. Nous pouvons nous restreindre au premier terme non nul de la somme, l'expression de la distribution normée à l'unité s'exprime alors:

$$P(\mu, E_d) = 0.5 + \frac{5}{4}a_2(E_d)\,(3\mu^2 - 1) \tag{3.6}$$

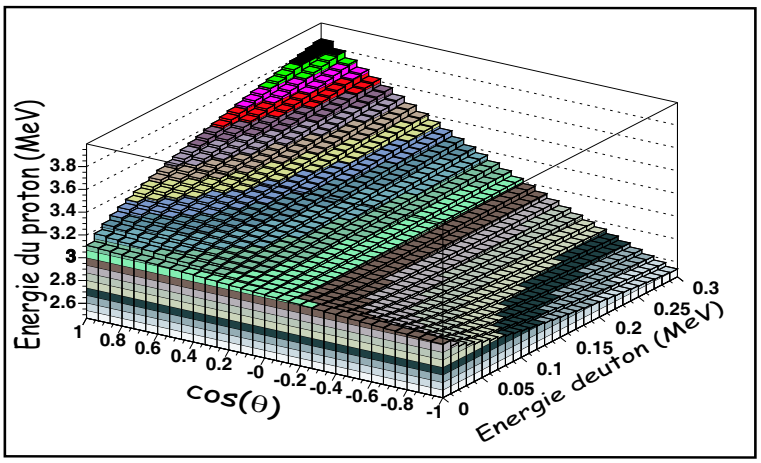


Figure 3.8: *Représentation (équation 3.4) de l'énergie du proton émis en fonction du cosinus de son angle d'émission dans le référentiel du laboratoire et de l'énergie du deuton incident.*

où μ représente le cosinus de l'angle d'émission dans le référentiel du centre de masse et $a_2(E_d)$ est le premier coefficient de Legendre non nul. La même base de données fournit les coefficients de Legendre que nous pouvons alors ajuster par un polynôme d'ordre 3 ($a_2(E_d) = 2.58E_d^3 - 2.02E_d^2 + 7.07.10^{-1}E_d + 3.87.10^{-2}$). Cette dernière expression nous mène alors à l'expression analytique de la distribution angulaire dans le centre de masse en fonction de l'énergie incidente dans le laboratoire. La relation de passage entre les deux référentiels est de la forme :

$$P(\nu, E_d) = p(\mu, E_d)\frac{d\mu}{d\nu} \tag{3.7}$$

où $\nu = \cos\theta$. On peut par ailleurs exprimer le cosinus de l'angle d'émission dans le centre de masse en fonction de celui dans le laboratoire et de l'énergie incidente [Mi64] telle que :

$$\mu = \frac{\nu - K(\nu, E_d)}{\sqrt{1 - 2K(\nu, E_d)\nu + K(\nu, Ep_d)}} \tag{3.8}$$

où la fonction K, rapport entre la vitesse du centre de masse après l'interaction et la vitesse du neutron généré, est définie par :

$$K(\nu, E_d) = \frac{1}{2}C\sqrt{\frac{E_d}{E}} \tag{3.9}$$

La constante $C = \frac{m_d + M_d}{m_n + M_{3_{He}}}$, rapport des masses initiales sur finales est de l'ordre de 1. Ces dernières opérations ont pour but d'obtenir les caractéristiques de l'émission de neutrons dans le référentiel du laboratoire afin de pouvoir intégrer un modèle de source dans les simulations numériques des expérimentations réalisées et décrites dans ce chapitre. Nous pouvons donc maintenant représenter

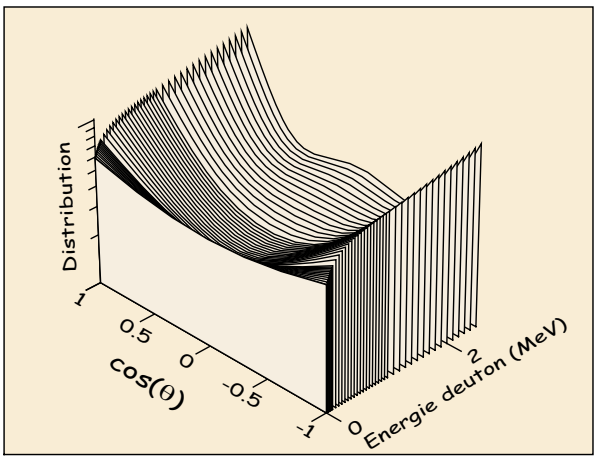


FIG. 3.9 – *Distribution angulaire de l'émission de neutrons. L'angle θ est exprimé dans le centre de masse tandis que l'énergie du deuton incident est exprimée dans le référentiel du laboratoire.*

pour différentes énergies de deutons incidents la distribution angulaire des neutrons générés (cf figure 3.10).

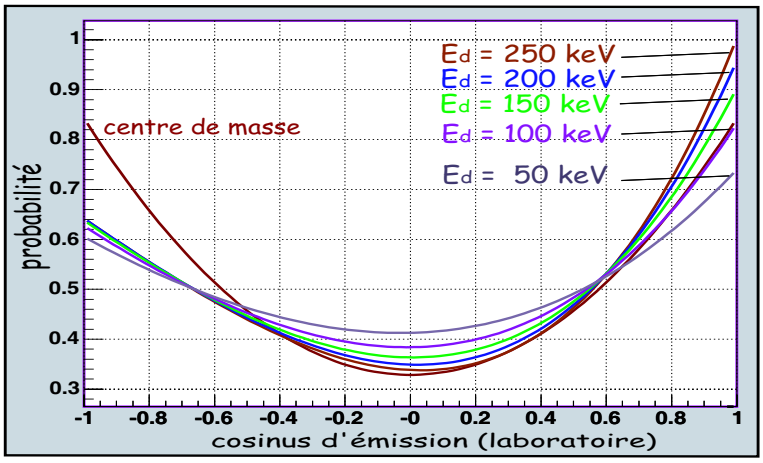


FIG. 3.10 – *Distributions angulaires de l'émission de neutrons dans le référentiel du laboratoire pour différentes énergies de deutons superposées à la distribution dans le centre de masse pour un deuton de 250 keV.*

3.3.2 Description temporelle

La forme temporelle de l'impulsion de neutrons et de protons correspond à la forme temporelle de l'intensité du flux de deutons incidents d'une impulsion de GENEPI. En conséquence, la distribution temporelle de l'émission de neutrons est identique à la distribution temporelle de l'émission de

protons. Cette dernière information est contenue dans la réponse en temps du détecteur silicium décrit dans le chapitre précédent. Nous allons discuter dans le chapitre suivant de la réponse du détecteur Silicium. Nous verrons que nous sommes en mesure d'isoler le signal laissé par les protons dans ce détecteur. La figure 3.11 montre une distribution temporelle typique de l'impulsion de neutrons pour les acquisitions dans le massif de graphite.

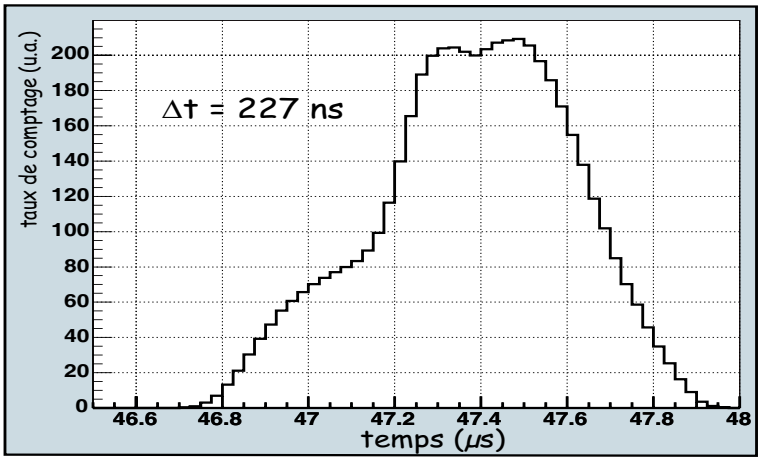


FIG. 3.11 – *Distribution temporelle de la source de protons associée aux acquisitions réalisées dans le massif de graphite. La variance de la distribution est indiquée.*

Les acquisitions dans le bloc de Téflon ayant été réalisées avec plusieurs mois d'intervalle par rapport au graphite, la forme du faisceau, dépendant des réglages de GENEPI et de l'électronique, est de forme différente (cf figure 3.12), mais avec un écart type légèrement différent.

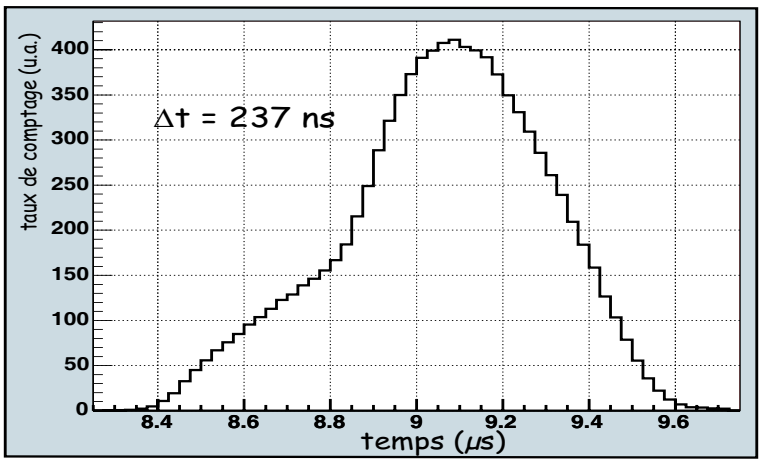


FIG. 3.12 – *Distribution temporelle de la source de protons associé aux acquisitions réalisées dans le massif de Téflon. La forme temporelle de l'émission de neutron est identique. La variance de la distribution par rapport à la valeur moyenne est indiquée.*

3.3.3 Modélisation de la source

Un fichier source MCNP est constitué d'une suite de lignes dont chacune contient les paramètres suivants :

- Les composantes du vecteur position (x_n, y_n, z_n) coordonnées du point de départ du neutron.
- Les composantes du vecteur vitesse initial (v_x, v_y, v_z).
- L'énergie E_n du neutron.
- Le temps t_n d'émission du neutron par rapport au temps 0 de la simulation numérique.

Le point de départ des neutrons a été imposé au centre de la cible *TiD* de production de neutrons. En réalité, il existe une distribution spatiale de l'ordre du cm^2 au niveau de la cible où les neutrons sont produits. Néanmoins, cet étalement est négligeable en terme de flux au niveau du scintillateur.

Le vecteur vitesse initial dépend de la forme de la distribution angulaire de l'émission de neutrons intégralement décrite par les équations (3.6) à (3.9). Sa détermination ainsi que celle de l'énergie du neutron se fait de la manière suivante :

1. Lorsqu'un deuton diffuse dans la cible *TiD*, sa probabilité de créer un neutron à l'énergie E_d s'écrit :

$$P(E_d)dE_d = C\frac{\sigma_n(E_d)}{\left(\frac{dE_d}{dx}\right)}dE_d \tag{3.10}$$

où C est une constante de normalisation. $\sigma_n(E_d)$ et $\left(\frac{dE_d}{dx}\right)$ sont respectivement la section efficace de la voie neutron et la perte d'énergie des deutons d'énergie E_d dans la cible *TiD*. L'énergie du deuton incident qui crée le neutron est déterminée aléatoirement selon cette distribution que

l'on représente figure 3.13.

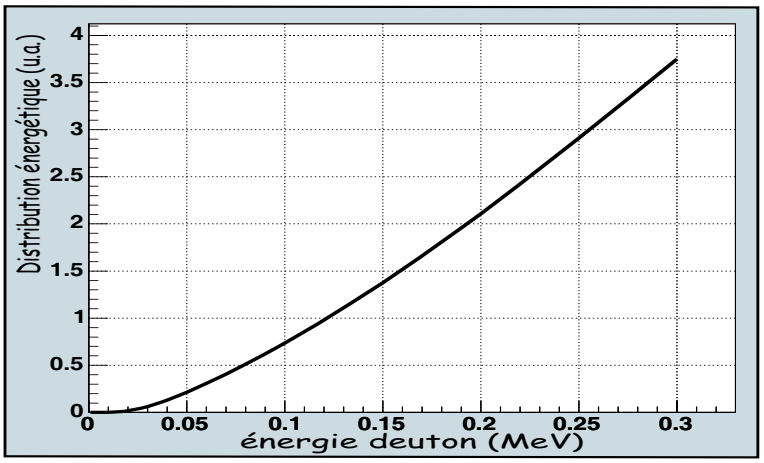


FIG. 3.13 – *Distribution énergétique des deutons qui crées les neutrons dans la cible TiD entre 0 et 300 keV d'énergie cinétique.*

2. La distribution angulaire associée est déterminée par les quatre équations (3.6) à (3.9). L'angle d'émission du neutron par rapport à l'axe du faisceau est généré aléatoirement en suivant cette distribution angulaire.
3. L'énergie du neutron est déduite à l'aide de la formule 3.4 appliquée à la voie neutron.
4. L'instant de création du neutron est déterminée indépendemment par un tirage aléatoire selon la distribution temporelle déterminée expérimentalement (cf figure 3.11 et 3.12).

Ces opérations ont été exécutées deux millions de fois, ce qui finalement correspond à deux millions de conditions initiales différentes pour les neutrons source.

3.4 Les grandeurs extraites

Cette dernière étape de construction d'un fichier MCNP constitue l'étape finale permettant la confrontation directe de l'expérience avec la simulation numérique. Expérimentalement, nous détectons en fonction du temps (mesuré par rapport à une origine temporelle imposée par l'instant de l'impulsion GENEPI) le nombre de gammas détectés par le scintillateur *YAP*. Ceux-ci proviennent des captures radiatives des neutrons sur les noyaux des différents matériaux qui composent le dispositif expérimental. Nous avons identifié les sources principales d'émission gammas qui sont :

- La cible résonnante (Au, In, Ag ou Mo).
- Le scintillateur *YAP*.
- Le massif ralentisseur.

- Le cadmium entourant les massifs.
- La cible de production de neutrons.

Le code de simulation MCNP offre la possibilité de déterminer une grandeur proportionnelle à un taux de réaction choisi par l'utilisateur. Nous avons alors extrait de chaque simulation numérique le taux de réaction (n,γ) dans chacune des parties énoncées plus haut. Il faudrait ensuite transporter les gammas générés pour que ces grandeurs représentent les taux d'événements détectés dans le *YAP* . MCNP n'est pas particulièrement performant en ce qui concerne les spectres énergétiques des gammas induits par capture neutronique, le transport des gammas ainsi que leur interaction avec un milieu. Nous avons contourné cette difficulté en exprimant la proportionnalité entre le taux de réaction (n,γ) dans un matériaux donné et le taux de comptage de gammas issus de ce même matériaux dans le détecteur. La démonstration de cette proportionnalité nécessite quelques approximations :

Le temps de transport d'un gamma créé à une distance r du détecteur est au maximum (pour $r \sim 50\,cm$) d'environ $1.5\,ns$. Les temps caractéristiques t que nous allons observer étant de l'ordre de la dizaine de microseconde, la variation temporelle Δt induite par la prise en compte du temps de transport des gammas est très inférieure à la résolution temporelle qui caractérise nos mesures. Nous pouvons alors considérer qu'un gamma créé génère instantanément un signal s'il est détecté.

Considérons alors un élément de volume dV situé à la distance r du *YAP* contenant un matériau constitué de m noyaux. Le taux de réaction (n,γ) dans cet élément de volume entre les instants t et $t+dt$ s'écrit alors :

$$\tau(t,\overrightarrow{r})\,dtdV = \sum_{i=1}^{i=m} \langle M_i \rangle\, N_i\, \sigma_i(E(t))\, \phi(t,\overrightarrow{r})\,dtdV \tag{3.11}$$

La somme s'effectue sur l'ensemble des noyaux (indicés par i) présents dans le matériau. Le terme $\langle M_i \rangle$ est la multiplicité gamma moyenne associée à une capture sur le noyau i. Le terme $N_i dV$ désigne le nombre de noyaux i dans le volume dV. $\sigma_i(E(t))$ est la section efficace de réaction (n,γ) au temps t où le neutron est à l'énergie E, liée au temps par la relation $E-t$. Enfin $\phi(t,\overrightarrow{r})\,dt$ représente le flux de neutrons entre t et $t+dt$.

Le nombre de gammas $N_\gamma(t,\overrightarrow{r})\,dtdV$ qui interagissent dans le *YAP* issus d'une réaction (n,γ) dans l'élément de volume dV entre t et $t+dt$ s'exprime ainsi :

$$N_\gamma(t,\overrightarrow{r})\,dtdV = \sum_{i=1}^{i=m} \left(\langle M_i \rangle N_i\, \sigma_i(E(t))\, \phi(t,\overrightarrow{r})\,dtdV\right)\, \varepsilon_g(r)\, P_Y(E_{\gamma i},r)\, \varepsilon_d(E_{\gamma i}) \tag{3.12}$$

Cette expression indique que lorsqu'un gamma est émis dans le volume dV, il y a trois conditions pour qu'il interagisse avec le scintillateur :

- Il doit être émis dans la direction du scintillateur. L'efficacité géométrique $\varepsilon_g(r)$ prend cette probabilité en compte et ne dépend que de la distance r entre dV et le *YAP*.
- Il doit traverser la distance r de matière entre dV et le *YAP*, ce que nous prenons en compte par

le terme $P_Y(E_{\gamma i}, r)$, probabilité de diffuser jusqu'au *YAP*. Elle dépend de la distance r à traverser et de l'énergie $E_{\gamma i}$ du gamma créé par le noyau i.

- Il doit interagir avec le scintillateur. Ce phénomène est géré par l'efficacité intrinsèque de détection $\varepsilon_d(E_{\gamma i})$ qui ne dépend que de l'énergie du gamma traversant le scintillateur.

Il est nécessaire maintenant d'éliminer la variable $E_{\gamma i}$ des deux probabilités $P_Y(E_{\gamma i}, r)$ et $\varepsilon_d(E_{\gamma i})$. Il est démontré [Mo76] que la loi de probabilité d'émission des gammas en fonction de leur énergie E_γ peut être considérée de la forme suivante :

$$I_\gamma = E_\gamma^3 \exp\left(\frac{E_o - E_\gamma}{\sqrt{8E_o/A}}\right) \tag{3.13}$$

où A est la masse atomique du noyau considéré. E_o la somme de l'énergie totale de la cascade gamma et de l'énergie du neutron qui a induit la réaction de capture. L'énergie totale d'une cascade de gammas induits par capture radiative est de l'ordre de quelques MeV (typiquement entre $\sim 5MeV$ et $\sim 12MeV$) pour les noyaux qui nous concernent. Or, un neutron ralenti dans un des massif ralentisseurs atteindra une énergie inférieure au keV pour un temps de ralentissement de l'ordre de la μs. Donc, pour une absorption d'un neutron d'énergie cinétique E inférieure au keV, soit pour un temps de ralentissement de l'ordre de la μs, E_o se confond avec l'énergie totale de la cascade gammas produite.

Nous avons tracé cette fonction pour $E_o = 7MeV$ et pour différentes valeurs de A figure 3.14.

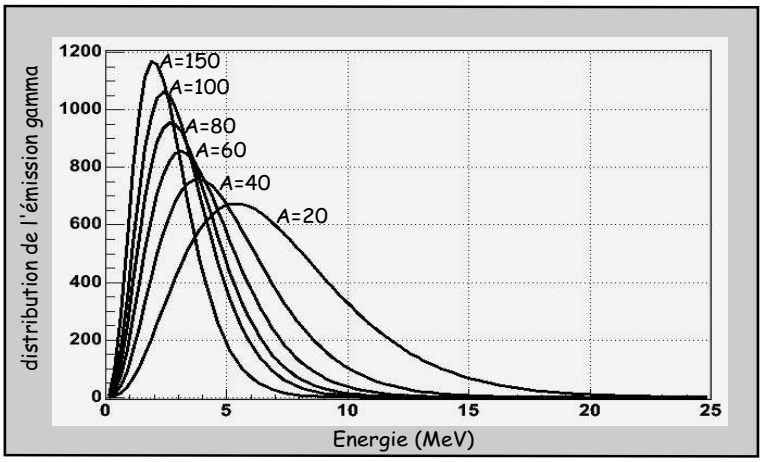


FIG. 3.14 – *Distributions énergétiques de l'émission de gammas induits par une absorption neutronique en fonction de l'énergie pour différentes valeurs du nombre de masse A du noyau cible considéré.*

A la vue de cette figure, l'énergie moyenne des gammas émis lors d'une capture radiative varie entre $E_\gamma \sim 2.5MeV$ et $E_\gamma \sim 7MeV$. Dans cette plage énergétique, l'efficacité de détection du *YAP* passe de 25% à 20% [SG05] et dépend donc peu de l'énergie.

La probabilité de transmission des gammas jusqu'au scintillateur (à l'exception de la cible résonnante et du YAP) est reliée au coefficient d'atténuation linéaire des gammas dans le graphite, car c'est le seul matériau du dispositif expérimental qui induit une atténuation notable des gammas émis. Entre $E_\gamma \sim 2.5\,MeV$ et $E_\gamma \sim 7\,MeV$, la variation du coefficient d'atténuation linéaire est de l'ordre de 25% [Be05]. Cette variation peut donc être considérée comme faible.

Nous pouvons donc considérer que dans tous les matériaux que nous considérons, le produit des trois probabilités $\varepsilon_g(r)\,P_Y(E_{\gamma i},r)\,\varepsilon_d(E_{\gamma i})$ est indépendant de la variable $E_{\gamma i}$. Ce produit peut alors être extrait de la somme dans l'équation (3.12) qui se réduit à :

$$N_\gamma(t,\overrightarrow{r})\,dtdV = \varepsilon_g(r)\,P_Y(r)\,\varepsilon_d \sum_{i=1}^{i=m} (\langle M_i\rangle N_i\,\sigma_i(E(t))\,\phi(t,\overrightarrow{r})\,dtdV) \tag{3.14}$$

En remplaçant alors la somme par son expression donnée par l'équation (3.11), nous avons :

$$N_\gamma(t,\overrightarrow{r})\,dtdV = \varepsilon_g(r)\,P_Y(r)\,\varepsilon_d\,\tau(t,\overrightarrow{r})\,dtdV \tag{3.15}$$

Cette équation exprime la proportionnalité entre le taux de comptage des gammas issus d'un volume dV et le taux de réaction (n,γ) dans ce même volume pour un temps compris entre t et $t+dt$.

Il reste alors une dernière étape qui consiste à factoriser le flux $\phi(t,\overrightarrow{r})dt$ en deux fonctions indépendantes telles que $\phi(t,\overrightarrow{r})dt = \phi(t).\,f(\overrightarrow{r})dt$, ce qui conduit à l'égalité :

$$N_\gamma(t)\,g(\overrightarrow{r})\,dtdV = \varepsilon_g(r)\,P_Y(r)\,\varepsilon_d\,f(\overrightarrow{r})\,\tau(t)\,dtdV \tag{3.16}$$

Cette factorisation est justifiée pour la cible résonnante, la cible T_iD de production de neutrons et le scintillateur car leurs faibles dimensions impliquent que le flux soit indépendant de la distance r entre le scintillateur et un élément de volume dV dans ces matériaux. Le cadmium entourant les massifs, le flux en fonction du temps dans un volume dV situé dans le cadmium sera alors peu dépendant de la position de cet élément de volume. Enfin, la figure 3.15 montre pour le graphite le rapport des flux dans deux petites sphères les plus éloignées possible : une sphère se trouve en périphérie du massif et l'autre, à proximité de la source. Cette figure nous montre que dans le cas le moins favorable, le rapport des flux est sensiblement constant de $5\,\mu s$ jusqu'à $100\,\mu s$. Dans cette plage temporelle, notre approximation, qui a menée à l'équation (3.16), est alors justifiée pour tous les matériaux du dispositif dont nous extrayons le taux de réaction (n,γ) simulé[3].

L'intégration de la relation (3.16) par rapport à l'espace délimitant les matériaux mentionnés conduit alors à la proportionnalité entre le taux de réaction (n,γ) dans un matériau donné et le taux de gammas détectés dans le scintillateur YAP :

[3] *Cette approximation peut paraître abusive en ce qui concerne le graphite. Néanmoins, la contribution du graphite (resp. du Téflon) dans le signal temporel du détecteur est relativement faible, comme nous le verrons dans le chapitre 5.*

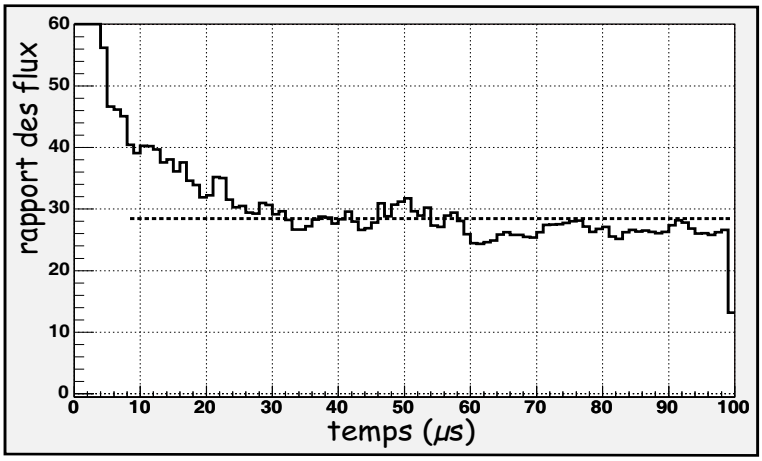


FIG. 3.15 – *Rapport des flux dans deux sphères de 3 cm de diamètres distantes d'une cinquantaine de centimètres situées dans le massif de graphite. Un ajustement linéaire est représenté en pointillé.*

$$N_\gamma(t)dt \propto \tau(t)dt \tag{3.17}$$

Dans ces conditions, l'extraction individuelle directe des taux de réaction (n,γ) dans les différentes parties de la géométrie représenterait à un facteur de normalisation près les taux de réaction expérimentaux individuels induit par toutes les sources gammas de la géométrie. Le problème résultant réside dans la détermination de coefficients de normalisation relatifs entre toutes les contributions individuelles et sera traité dans le chapitre 6.

Chapitre 4

Principe d'un spectromètre à temps de ralentissement

Nous allons dans ce chapitre développer les bases théoriques permettant de comprendre le principe de fonctionnement d'un spectromètre à temps de ralentissement et montrer que la relation obtenue entre l'énergie d'un neutron et son temps de diffusion permet l'observation de résonances temporelles associées aux résonances en énergie des cibles utilisées (Au, Ag, Mo et In).

4.1 Cinématique du choc élastique

En dessous du MeV, la caractérisation de la diffusion élastique d'un neutron sur un noyau de masse atomique A peut être traitée par la mécanique classique [Re03-2]. Il s'agit alors de considérer les deux corps comme deux sphères indéformables (cf figure 4.1) et d'appliquer les lois de conservations usuelles[Bl67].

Nous allons chercher à exprimer l'énergie d'un neutron après un choc en fonction de son énergie initiale et de son angle de diffusion dans le référentiel du centre de masse. Les notations concernant les vitesses sont celles indiquées sur la figure 4.1. Précisons juste que les indices i et f font référence à l'état initial et final respectivement avant et après le choc ; n et N représentent le neutron et le noyau cible. Enfin, les vitesses par rapport au centre de masse sont mises en évidence par le symbole "*".

La vitesse du centre de masse s'exprime par[1] :

$$\overrightarrow{V_{CM}} = \frac{\overrightarrow{V_{ni}} + \omega \overrightarrow{V_{Ni}}}{1+\omega} \tag{4.1}$$

La constante $\omega = \frac{M_N}{M_n}$ exprime le rapport de la masse nucléaire du noyau cible à la masse du

[1] *La cinématique du choc élastique est habituellement traitée sans prise en compte de la vitesse du noyau cible. Les énergies des neutrons dans les massifs s'étendront du MeV jusqu'au domaine thermique où la vitesse du noyau cible n'est alors plus négligeable.*

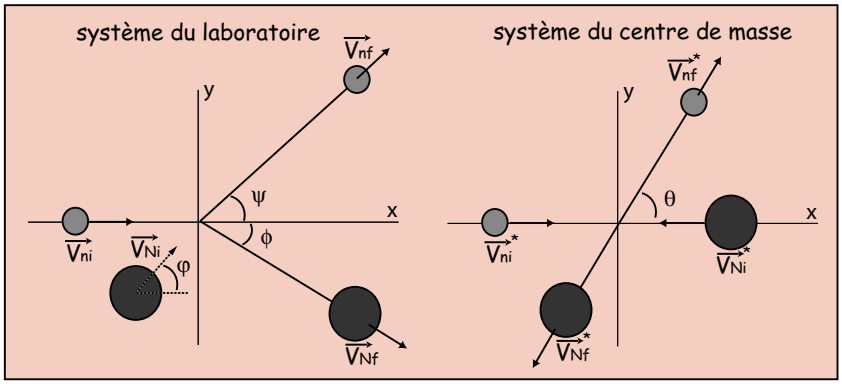


FIG. 4.1 – *Représentation de la cinématique du choc élastique d'un neutron sur un noyau dans le référentiel du laboratoire et du centre de masse. Nous considérons que le noyau cible a une vitesse initiale non nulle, l'interaction entre les deux particules ayant lieu à l'origine du référentiel.*

neutron. Elle ne s'écarte pas de plus de 1% de la masse atomique A du noyau cible pour l'ensemble des noyaux de la table des éléments[2]. La formule de passage liant une vitesse par rapport au référentiel du laboratoire $\overrightarrow{V}$ et par rapport au centre de masse $\overrightarrow{V^*}$est :

$$\overrightarrow{V^*} = \overrightarrow{V} - \overrightarrow{V_{CM}} \tag{4.2}$$

À l'aide de ces deux dernières formules, nous pouvons exprimer la vitesse initiale du neutron dans le centre de masse :

$$\overrightarrow{V_{ni}^*} = \frac{\omega}{1+\omega}\left(\overrightarrow{V_{ni}} - \overrightarrow{V_{Ni}}\right) \tag{4.3}$$

La définition du centre de masse implique que la quantité de mouvement totale $\overrightarrow{P^*} = M_n\overrightarrow{V_n^*} + M_N\overrightarrow{V_N^*}$exprimée dans le centre de masse soit nulle, ce qui est valable avant et après le choc. Nous avons donc les relations :

$$V_{ni}^* = \omega V_{Ni}^* \tag{4.4}$$

$$V_{nf}^* = \omega V_{Nf}^* \tag{4.5}$$

Enfin, nous pouvons exprimer la conservation de l'énergie cinétique dans le référentiel du centre de masse :

[2]On a en fait $\omega \simeq 0.9915.A\left(1+\frac{\Delta}{931.5.A}\right)$ où Δ, l'excès de masse du noyau cible considéré, est borné tel que $-100\,MeV \leq \Delta \leq 50\,MeV$.

$$V_{ni}^{*2} + \omega V_{Ni}^{*2} = V_{nf}^{*2} + \omega V_{Nf}^{*2} \tag{4.6}$$

En remplaçant V_{Ni}^* et V_{Nf}^* dans l'équation (4.6) avec les équations (4.4) et (4.5), nous obtenons l'égalité entre les modules des vitesses finales et initiales du neutron dans le référentiel du centre de masse :

$$V_{ni}^{*2} = V_{nf}^{*2} \tag{4.7}$$

En appliquant la formule de changement de référentiel (4.2) à $\overrightarrow{V_{nf}}$, nous avons :

$$\overrightarrow{V_{nf}} = \overrightarrow{V_{nf}^*} + \overrightarrow{V_{CM}} \tag{4.8}$$

Cette dernière équation élevée au carré puis simplifiée à l'aide des équations (4.7), (4.3) et (4.1) nous donne la relation cherchée en fonction des énergies initiale et finale du neutron, de l'énergie initiale de la particule cible puis de l'angle de diffusion θ du neutron dans le centre de masse.

$$E_{nf} = \frac{1+\omega^2}{(1+\omega)^2} E_{ni} + \frac{2\omega}{(1+\omega)^2} E_{Ni} + \frac{\omega(1-\omega)}{(1+\omega)^2} M_n V_{ni} V_{Ni} \cos\varphi + M_n V_{ni}^* V_{CM} \cos(\theta - \theta_{CM}) \tag{4.9}$$

où φ est l'angle initial de la particule cible, θ_{CM} représente l'angle du vecteur vitesse du centre de masse par rapport à Ox. Cherchons maintenant à déterminer l'énergie moyenne $\langle E_{nf} \rangle = E_f$ d'un neutron après un choc élastique sur un noyau. D'une part nous considérons que la diffusion est isotrope dans le centre de masse [Re03-2] soit $\langle \cos\theta \rangle = 0$. D'autre part, l'angle θ_{CM} a un domaine de variation pouvant s'étendre de π jusqu'à $-\pi$ ou entre $\frac{\pi}{2}$ et $-\frac{\pi}{2}$ suivant l'importance relative des impulsions du neutron et du noyau cible. Dans ces deux cas, la distribution en θ_{CM} est symétrique par rapport à la valeur $\theta_{CM} = 0$, donc nous pouvons conclure que $\langle \sin\theta_{CM} \rangle = 0$. Avec la relation $\cos(\theta - \theta_{CM}) = \cos\theta \cos\theta_{CM} + \sin\theta \sin\theta_{CM}$ et le fait que θ et θ_{CM} sont des variables indépendantes, nous concluons que la valeur moyenne du dernier terme de l'équation (4.9) est nul. De plus, le mouvement de la particule cible avant interaction avec le neutron peut avoir de manière équiprobable toutes les directions possibles [Ng88] ce qui impose que la valeur moyenne de $\cos\varphi$ soit nulle. Nous obtenons finalement l'énergie moyenne d'un neutron après un choc élastique sur un noyau de masse ω (exprimée en masse du neutron) en fonction de son énergie initiale et de l'énergie thermique du milieu

$$\langle E_f \rangle = \frac{1}{\beta^2} \langle E_i \rangle + \gamma \langle E_{Ni} \rangle \tag{4.10}$$

avec les paramètres β et γ donnés par :

$$\beta = \frac{1+\omega}{\sqrt{1+\omega^2}} \; ; \; \gamma = \frac{2\omega}{(1+\omega)^2} \tag{4.11}$$

Afin de commenter rapidement ce résultat, notons que plus ω est grand (noyaux lourds), plus l'énergie moyenne après le choc est proche de l'énergie initiale. Aussi, si l'énergie initiale est égale à l'énergie moyenne du noyau cible, alors la perte moyenne d'énergie est nulle, ce qui s'interprète naturellement par le fait que le neutron diffuse à énergie moyenne constante dans ce cas.

Enfin, la valeur moyenne de l'énergie du noyau cible $\langle E_{Ni} \rangle$ correspond à la valeur moyenne de la distribution énergétique des noyaux à la température ambiante. Cette distribution obéit à la statistique de Maxwell-Boltzmann et s'écrit :

$$N(E_{Ni})dE_{Ni} \propto \sqrt{E_{Ni}} e^{(-\frac{E_{Ni}}{kT})} dE_{Ni} \tag{4.12}$$

Nous pouvons alors extraire de cette distribution la valeur moyenne de l'énergie, égale à $\frac{3}{2}kT$, soit 1.5 fois l'énergie thermique $E_{th} = \frac{1}{40} eV$:

$$\langle E_{Ni} \rangle = \frac{3}{2} E_{th} \tag{4.13}$$

Et l'énergie moyenne finale d'un neutron après un choc élastique sur un noyau cible s'écrit alors :

$$\langle E_f \rangle = \frac{1}{\beta^2} \langle E_i \rangle + \frac{3}{2} \gamma E_{th} \tag{4.14}$$

4.2 La relation $E - t$ dans un spectromètre à temps de ralentissement

La théorie qui va suivre n'est exacte que lorsque certaines conditions sont satisfaites [Ni03]. Tout d'abord,

- le milieu ralentisseur doit pouvoir être considéré comme infini.
  Cela revient physiquement à dire que le parcours projeté d'un neutron depuis son énergie initiale jusqu'à l'énergie d'une résonance de capture d'un noyau cible (de l'ordre de quelques eV) doit être inférieure aux dimensions du massif ralentisseur. Nous avons montré précédemment que cette condition est respectée.

- Le milieu ralentisseur doit être homogène.
  Cette hypothèse n'est pas parfaitement respectée en raison de la présence du système de détection et du doigt de gant.

- La section efficace de diffusion élastique doit être un processus dominant par rapport aux autres. Nous devons donc avoir une quasi-égalité entre la section efficace totale et la section efficace de diffusion élastique, ce qui est le cas, en première approximation, pour le carbone et le fluor.

- La section efficace de diffusion élastique doit être constante sur le spectre énergétique du ralentissement étudié.
  Les sections efficaces des deux noyaux considérés sont sensiblement constantes entre l'eV et une centaine de keV. Au-delà, ça n'est plus le cas.

- L'énergie thermique du milieu est faible devant l'énergie des neutrons.
  Les énergies qui nous intéressent ici seront supérieures à l'eV, soit 40 fois l'énergie thermique.

Les deux massifs de la plate-forme PEREN sont au premier ordre compatibles avec les hypothèses énoncées. Nous pouvons alors développer le modèle du ralentissement dans ces milieux [Pe01, TA99].

4.2.1 Dans un milieu monoatomique

Considérons le massif de graphite, milieu mono-atomique, avant d'étendre cette théorie au cas d'un milieu moléculaire.

L'énergie moyenne E' d'un neutron d'énergie E_o après un choc élastique dans un milieu ralentisseur de ce type à l'énergie thermique E_{th} négligeable devant E_o (cf équation (4.14)) est de la forme:

$$E' = \frac{1}{\beta^2} E_o \tag{4.15}$$

Il est alors aisé d'en déduire l'énergie moyenne $E^{(n)}$ après n chocs successifs:

$$E^{(n)} = \frac{1}{\beta^{2n}} E_o \tag{4.16}$$

L'expression du temps moyen de ralentissement d'un neutron depuis sa création après n chocs dans le massif ralentisseur s'obtient en considérant que l'instant du n^{ime} choc est la somme des temps moyens entre chaque diffusion sur les noyaux du milieu; soit la somme des rapports du libre parcours moyen au i^{me} choc, λ^i, sur la vitesse moyenne:

$$t^{(n)} = \frac{1}{N\sigma}\sqrt{\frac{M_n}{2}} \sum_0^{n-1} \sqrt{\frac{\beta^{2i}}{E_o}} \tag{4.17}$$

Nous avons simplifié l'expression en prenant en compte une de nos hypothèses de départ qui impose la constance de la section efficace de diffusion élastique, donc du libre parcours moyen. En effet, le terme λ^i se réduit alors à $\lambda = \frac{1}{N\sigma}$, où N est le nombre d'atomes par unité de volume et σ

la section efficace de diffusion élastique. La somme effectuée, nous pouvons remplacer les termes en puissance de β à l'aide de la relation (4.16). Nous avons aussi isolé et regroupé tous les termes constants qui ne dépendent pas de E_n dans une unique constante t_o qui a la dimension d'un temps. L'expression obtenue s'écrit, en introduisant un paramètre constant K:

$$t^{(n)} + t_o = \sqrt{K}\left(\frac{1}{\sqrt{E_n}}\right) \tag{4.18}$$

Nous obtenons donc la relation énergie-temps sous son expression usuelle en passant des variables énergie et temps discontinues à ces mêmes variables continues en enlevant l'indice n :

$$E = \frac{K}{(t+t_0)^2} \tag{4.19}$$

Les paramètres caractéristiques du milieu ralentisseur, K et t_0 sont donnés par les Eq (4.20) et Eq (4.21). M_n représente la masse du neutron, c la vitesse de la lumière tandis que A, ρ et N_a représentent respectivement la masse du noyau diffuseur, sa densité et le nombre d'Avogadro. σ est la section efficace microscopique du matériau diffuseur.

$$K = \frac{M_n c^2}{2c^2(\beta-1)^2}\left(\frac{A}{\rho N_a}\right)^2 \frac{1}{\sigma^2} \tag{4.20}$$

$$t_0 = \sqrt{\frac{M_n c^2}{2E_0}}\frac{1}{\beta-1}\frac{A}{\rho N_a c} \tag{4.21}$$

Il est à noter que K ne dépend que des propriétés du matériau diffuseur, alors que t_0 est aussi relié à l'énergie incidente E_0 du neutron. Ce dernier paramètre est une illustration de l'ordre de grandeur du temps nécessaire pour qu'un neutron perde l'information sur ses conditions initiales. En effet, lorsque $t \gg t_0$, le ralentissement des neutrons, obéissant alors à la loi $E = \frac{K}{t^2}$, ne dépend plus de l'énergie initiale du neutron.

Appliqués au massif ralentisseur de graphite utilisé expérimentalement, les deux paramètres du ralentissement K et t_0 ont pour valeur :

$$K_{gr} = 461.12\, eV.\mu s^2 \tag{4.22}$$

$$t_{0gr} = 1.36.10^{-2}\, \mu s \tag{4.23}$$

Nous avons extrait d'une simulation numérique, réalisée avec la source de neutron définie dans le chapitre précédent, les populations neutroniques $n(E,t)d(\log E)d(\log t)$ dans un petit volume cylindrique ($\sim 1\, cm$ de rayon et de hauteur) proche du système de détection (cf figure 4.2). Cette grandeur correspond au nombre de neutrons, en fonction de l'énergie et du temps, dans une cellule d'énergie

E et de temps t de largeur $d(\log E)d(\log t)$. Le fait de prendre une cellule de petite taille et proche du système de détection est important car des simulations nous ont montré que le ralentissement des neutrons est plus rapide (resp. moins rapide) lorsque la cellule de mesure est proche (resp. éloignée) de la source.

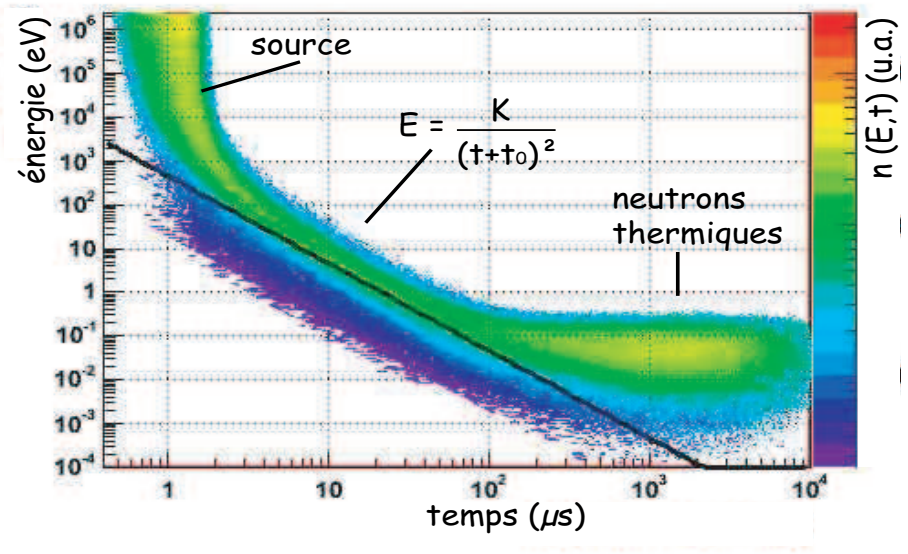


Figure 4.2: *Population neutronique en fonction de l'énergie et du temps superposée à la relation $E-t$ tracée à partir des coefficients K et t_0 calculés pour le massif de graphite dans une petite cellule cylindrique proche du système de détection.*

L'étude de la figure 4.2 nous montre que la fonction $E(t)$, dont les paramètres sont donnés par les équations (4.22) et (4.23), est bien représentative de la valeur moyenne des distributions neutroniques entre $E \sim 1\,eV$ et $E \sim 100\,eV$. En deçà de ce domaine énergétique, les neutrons sont encore dépendants de leurs conditions initiales, liées aux caractéristiques de l'émission de neutrons qui est prise en compte dans le modèle uniquement en translatant le temps t par rapport à la valeur moyenne temporelle de l'impulsion de neutrons. Enfin, le spectre des neutrons s'écarte notablement de la relation $E-t$, pour $t \geq 100\,\mu s$, pour diffuser avec une énergie moyenne constante de l'ordre de $\frac{3}{2}kT$. Cette différence entre le modèle et la simulation numérique s'explique par le fait que MCNP inclut en dessous d'une énergie de l'ordre d'une dizaine d'eV un traitement thermique [Br-97-2] qui tient compte de l'énergie thermique du milieu puis de l'énergie de liaison des atomes dans le solide. Ce traitement thermique induit un ralentissement plus faible des neutrons jusqu'à leur énergie d'équilibre.

4.2.2 Dans un milieu poly-atomique

Nous pouvons étendre la théorie qui précède au cas où le milieu serait moléculaire. Cette extension serait alors applicable au Téflon (CF_2). Nous allons considérer ici un milieu ralentisseur constitué de molécules poly-atomique de type X_pY_q. Le modèle se généralise aisément à tout type de molécules.

Lors d'un choc élastique entre un neutron et une molécule du milieu, le neutron peut interagir soit avec le noyau X, soit avec le noyau Y. Appelons σ_X et σ_Y les sections efficaces de diffusion élastique d'un neutron sur le noyau X et Y. La section efficace microscopique totale peut alors s'exprimer $\sigma_T = p\sigma_X + q\sigma_Y$. La probabilité $P(X)$ qu'a un neutron d'interagir avec le noyau X peut s'exprimer ainsi :

$$P(X) = \frac{p\sigma_X}{\sigma T} \tag{4.24}$$

Nous pouvons écrire l'énergie moyenne d'un neutron après un choc élastique sur la molécule X_pY_q en fonction de la probabilité d'interaction avec les noyaux X et Y.

$$E' = \left(\frac{p\sigma_X}{\sigma_T}\frac{1}{\beta_X^2} + \frac{q\sigma_Y}{\sigma_T}\frac{1}{\beta_Y^2}\right)E_0 \tag{4.25}$$

Dans cette expression, les termes β_X et β_Y sont les constantes du milieu équivalentes à celles introduites dans le cas mono-atomique (cf équation (4.11)). Nous avons alors $\beta_X = \frac{1+w_X}{\sqrt{1+w_X^2}}$ avec w_x, masse nucléaire du noyau X par rapport à la masse d'un neutron. Le paramètre lié au noyau Y s'exprime de la même façon. Nous pouvons alors exprimer l'équation (4.25) d'une manière équivalente à l'équation (4.15) en introduisant le paramètre β_M représentatif de la perte d'énergie moyenne d'un neutron sur une molécule de type X_pY_q :

$$\frac{1}{\beta_M^2} = \frac{p\sigma_X}{\sigma_T}\frac{1}{\beta_X^2} + \frac{q\sigma_Y}{\sigma_T}\frac{1}{\beta_Y^2} \tag{4.26}$$

Et l'énergie moyenne E' d'un neutron d'énergie E_o après un choc élastique sur la molécule s'écrit :

$$E' = \frac{1}{\beta_M^2}E_0 \tag{4.27}$$

Le développement mathématique menant à la relation entre l'énergie d'un neutron et son temps de ralentissement s'effectue de la même manière que dans le cas mono-atomique. Le libre parcours moyen λ d'un neutron dans le milieu moléculaire s'écrivant $\lambda = \frac{A_M}{\rho_M N_a}\frac{1}{(p\sigma_X + q\sigma_Y)}$ (A_M, ρ_M et N_a sont la masse molaire de la molécule, la densité du milieu et le nombre d'Avogadro), nous obtenons la relation $E - t$ dans le milieu moléculaire sous la même forme que l'équation (4.19) et les paramètres du ralentissement K et t_o s'écrivent :

$$K = \frac{M_n c^2}{2c^2 (\beta_M - 1)^2} \left(\frac{A_M}{\rho_M N_a} \right)^2 \frac{1}{(p\sigma_X + q\sigma_Y)^2} \tag{4.28}$$

$$t_0 = \sqrt{\frac{M_n c^2}{2E_0}} \frac{1}{\beta_M - 1} \frac{A_M}{\rho_M N_a c} \tag{4.29}$$

Nous avons ici défini la relation liant l'énergie d'un neutron en fonction de son temps de ralentissement dans un massif constitué de molécules de type $X_p Y_q$.

L'application numérique déterminant les paramètres K et t_o pour le massif de Téflon de la plateforme PEREN conduit à :

$$K = 1339.96\, eV.\mu s^2 \tag{4.30}$$

$$t_0 = 2.32.10^{-2}\, \mu s \tag{4.31}$$

Cette valeur théorique de K est supérieure à celle du graphite, ce qui illustre le fait que le ralentissement des neutrons dans le Téflon est moins rapide. La simulation numérique d'une expérience dans le massif de Téflon de laquelle nous extrayons la population de neutrons dans un petit cylindre identique à celui intégré au massif de graphite simulé conduit au spectre de la figure 4.3.

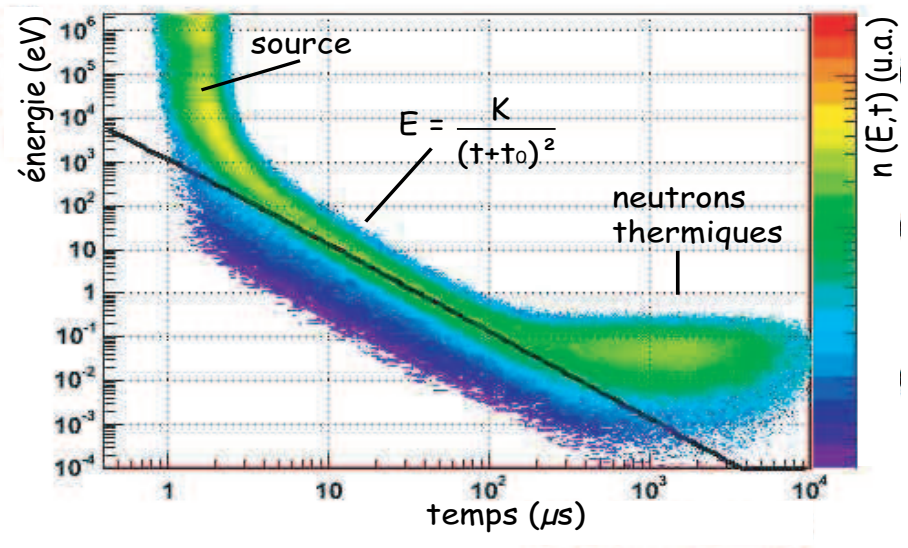


Figure 4.3: *Population neutronique en fonction de l'énergie et du temps superposée à la relation $E - t$ tracée à partir des coefficients K et t_0 calculé pour le massif de Téflon.*

La valeur moyenne des distributions neutroniques entre $E \sim 1\, eV$ et $E \sim 100\, eV$ est en accord avec

la fonction $E(t)$ représentée avec les paramètres K et t_0 théoriques. L'évolution de la population de neutrons en dehors de ce domaine énergétique est comparable aux résultats extraits de la simulation numérique réalisée dans le graphite.

4.3 Extraction du paramètre K par la simulation

4.3.1 Méthode

Nous allons ici décrire une méthode de détermination du paramètre K représentatif du ralentissement des neutrons dans les massifs de la plate-forme PEREN. Nous extrayons de la simulation numérique la population de neutrons $d^2N(E,t)$ dont l'énergie est comprise entre E et $E+d\log E$ pour un temps de ralentissement compris entre t et $t+d\log t$ dans un cylindre proche du système de détection. Nous couvrons énergétiquement et temporellement l'ensemble du ralentissement des neutrons dans le massif de l'énergie initiale jusqu'à l'énergie thermique. Nous avons finalement un histogramme à trois dimensions où chaque cellule de largeur $d\log E\, d\log t$ contient le nombre de neutrons $\frac{d^2N(E,t)}{d\log E\, d\log t} d\log E\, d\log t$ passés par l'énergie comprise entre E et $E+d\log E$ au temps compris entre t et $t+d\log t$ dans le petit cylindre de mesure. Cette représentation de la matrice en fonction de E et de t n'est pas commode pour la détermination du paramètre K. La méthode usuelle [Pe01, TA99] consiste à effectuer le changement de variable $t \to \sqrt{E}\,(t+t_0)$. Cette nouvelle variable, $\sqrt{E}\,(t+t_0) = \sqrt{K}$, est constante selon le modèle menant à la relation énergie-temps. La distribution de la population de neutrons en fonction de E et de $\sqrt{K}$ conduit, pour un canal d'énergie donnée, à la valeur moyenne de $\sqrt{K}$. La population de neutrons en fonction de cette nouvelle variable s'exprime ainsi :

$$\frac{d^2N(E,\sqrt{K})}{d\log E\, d(\sqrt{K})} = \frac{d^2N(E,t)}{d\log E\, d\log t}\frac{1}{t\sqrt{E}} \tag{4.32}$$

La nouvelle matrice de dimension 2 permet de calculer le paramètre K en fonction de l'énergie. La projection sur l'axe des $\sqrt{K}$ pour un canal d'énergie E et de largeur $\Delta(\log E)$ fixées donne la distribution $\frac{dN_E(\sqrt{K})}{d(\sqrt{K})}$ dont la valeur moyenne permet de déterminer la valeur de K pour l'énergie E issue de la simulation numérique. Pour fixer la valeur du paramètre t_0 dans le changement de variables, nous avons la possibilité de l'imposer égale à sa valeur théorique (équation (4.21)) mais cela conduit à une fonction $K(E)$ divergente lorsque $E \to E_0$, énergie initiale des neutrons. Cet écart au modèle s'explique par l'hypothèse de la diffusion isotrope des neutrons dans le centre de masse, qui s'avère être une mauvaise approximation pour le graphite et le fluor au-delà de quelques centaines de keV. Nous avons donc choisi d'ajuster le paramètre t_0 afin d'obtenir la dispersion minimale de K à haute énergie.

4.3.2 Application au massif de graphite

Nous allons illustrer la méthode sur le spectre représenté figure 4.2, où la population neutronique, en fonction de l'énergie et du temps, a été extraite dans le cas du graphite. Les distributions $\frac{d^2N(E,\sqrt{K})}{d\log E\, d(\sqrt{K})}$ transformées par le changement de variables sont représentées figure 4.4. Nous avons été contraints d'imposer à $0\,\mu s$ la valeur du paramètre t_0 afin de minimiser la dispersion à haute énergie.

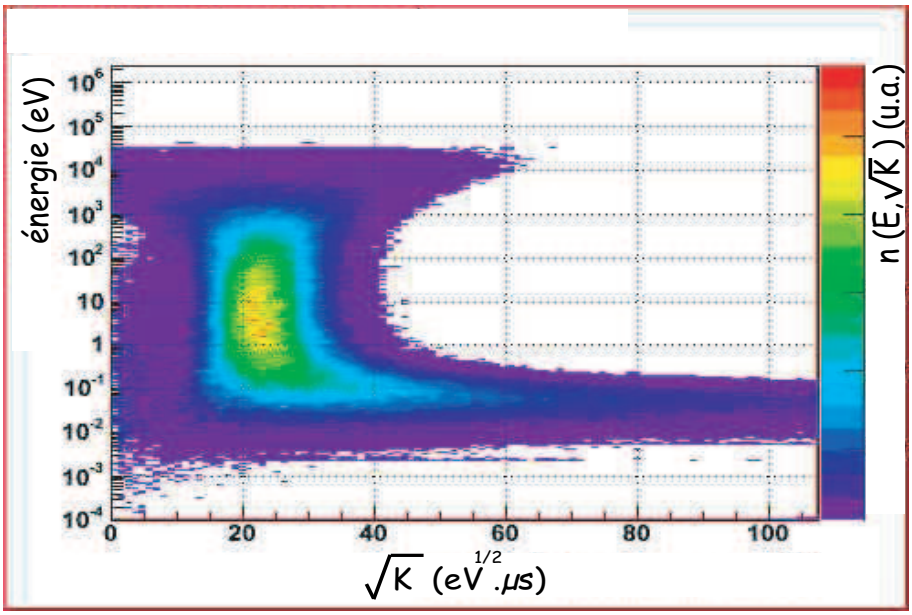


FIG. 4.4 – *Illustration de la relation énergie-temps en fonction de l'énergie et de la variable* $\sqrt{K} = \sqrt{E}\,(t+t_0)$ *dans le cas du massif de graphite.*

Nous observons la portion constante qui correspond au domaine énergétique où la corrélation $E-t$ est droite.

Les projections sur l'axe des $\sqrt{K}$, pour un canal d'énergie E et de largeur $\Delta(\log E)$ de la distribution représentée sont effectuées, nous en représentons quelques unes à différentes énergies figure 4.5.

Enfin, la valeur moyenne de l'ensemble de ces distributions conduit à l'extraction du paramètre K en fonction de l'énergie dans le massif de graphite (cf figure 4.6). Les incertitudes correspondent à la propagation des erreurs statistiques des distributions de la population neutronique en fonction de $\sqrt{K}$ à énergie fixée.

Le calcul du paramètre K en fonction de l'énergie montre qu'il n'est pas constant sur le spectre énergétique des neutrons. En effet, les nombreuses hypothèses justifiant la relation entre E et t ne sont pas rigoureusement respectées ici, d'où l'écart par rapport au modèle. La valeur moyenne de K entre $1\,eV$ et $1000\,eV$ est d'environ $540\,eV.\mu s^2$, soit un écart de 17% par rapport à sa valeur théorique. Néanmoins, l'important est que nous avons mis en évidence le fait que l'énergie des neutrons dans

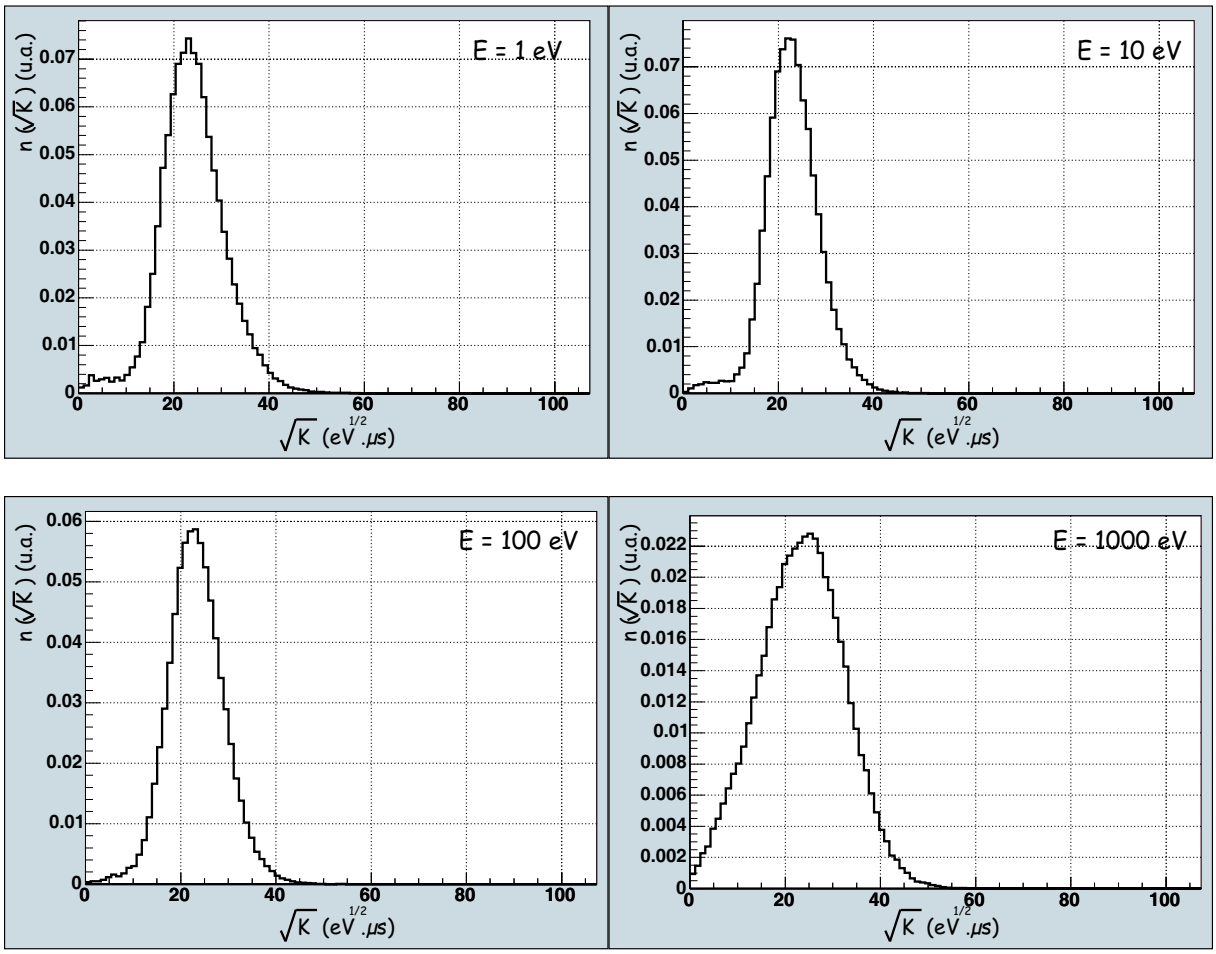


FIG. 4.5 – *Projection sur l'axe $\sqrt{K}$ des coupures en énergie de la population neutronique en fonction de E et de $\sqrt{K}$ dans une cellule du massif de graphite.*

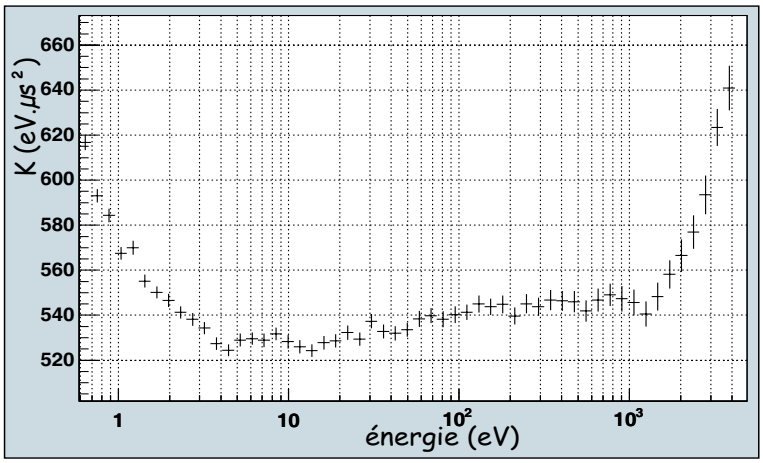


FIG. 4.6 – *Représentation du paramètre K en fonction de l'énergie dans le cas du massif de graphite.*

le massif de graphite est fortement corrélée à leur temps de ralentissement, condition principale de l'applicabilité de la méthode.

Les cibles résonnantes utilisées vont conduire à l'observation de résonances temporelles explicitées tableau 4.1.

graphite	In	Au	Ag	Mo
Énergie de résonance (eV)	1.46	4.9	5.2	45.0
temps de résonance théorique (μs)	17.8	9.7	9.4	3.2
temps de résonance simulé (μs)	19.8	10.4	10.1	3.4

TAB. 4.1 – *Correspondance entre les énergies de résonance des cibles utilisées et les temps de résonance associés théoriques et calculés à partir de la simulation.*

4.3.3 Application au massif de Téflon

Un travail équivalent a été réalisé dans le Téflon et a conduit à la distribution représentée figure 4.7 pour la population neutronique dans une cellule proche du détecteur en fonction de l'énergie et de la variable $\sqrt{K}$ avec $t_0 = 0.07\,\mu s$.

Les projections à différentes énergies sont représentées figure 4.8. Enfin, le paramètre K en fonction de l'énergie, figure 4.9, montre que sa variation en fonction de l'énergie est comparable au $K(E)$ du massif de graphite. L'écart par rapport au modèle est ici de 4%.

Les valeurs théoriques et calculées des résonances temporelles induites par les cibles résonnantes sont données tableau 4.2.

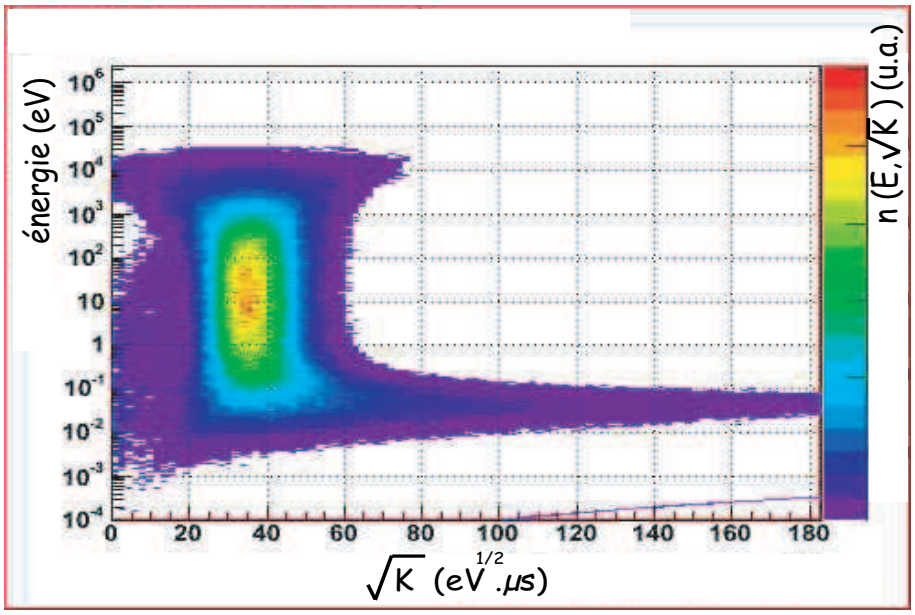


FIG. 4.7 – *Illustration de la relation énergie-temps en fonction de l'énergie et de la variable* $\sqrt{K} = \sqrt{E}\,(t+t_0)$ *dans le cas du massif de Téflon.*

Téflon	In	Au	Ag	Mo
Énergie de résonance (eV)	1.46	4.9	5.2	45.0
temps de résonance théorique (μs)	30.3	16.5	16.1	5.5
temps de résonance simulé (μs)	30.9	16.8	16.3	5.6

TAB. 4.2 – *Correspondance entre les énergies de résonances des cibles utilisées et les temps de résonance associés théoriques et calculés à partir de la simulation.*

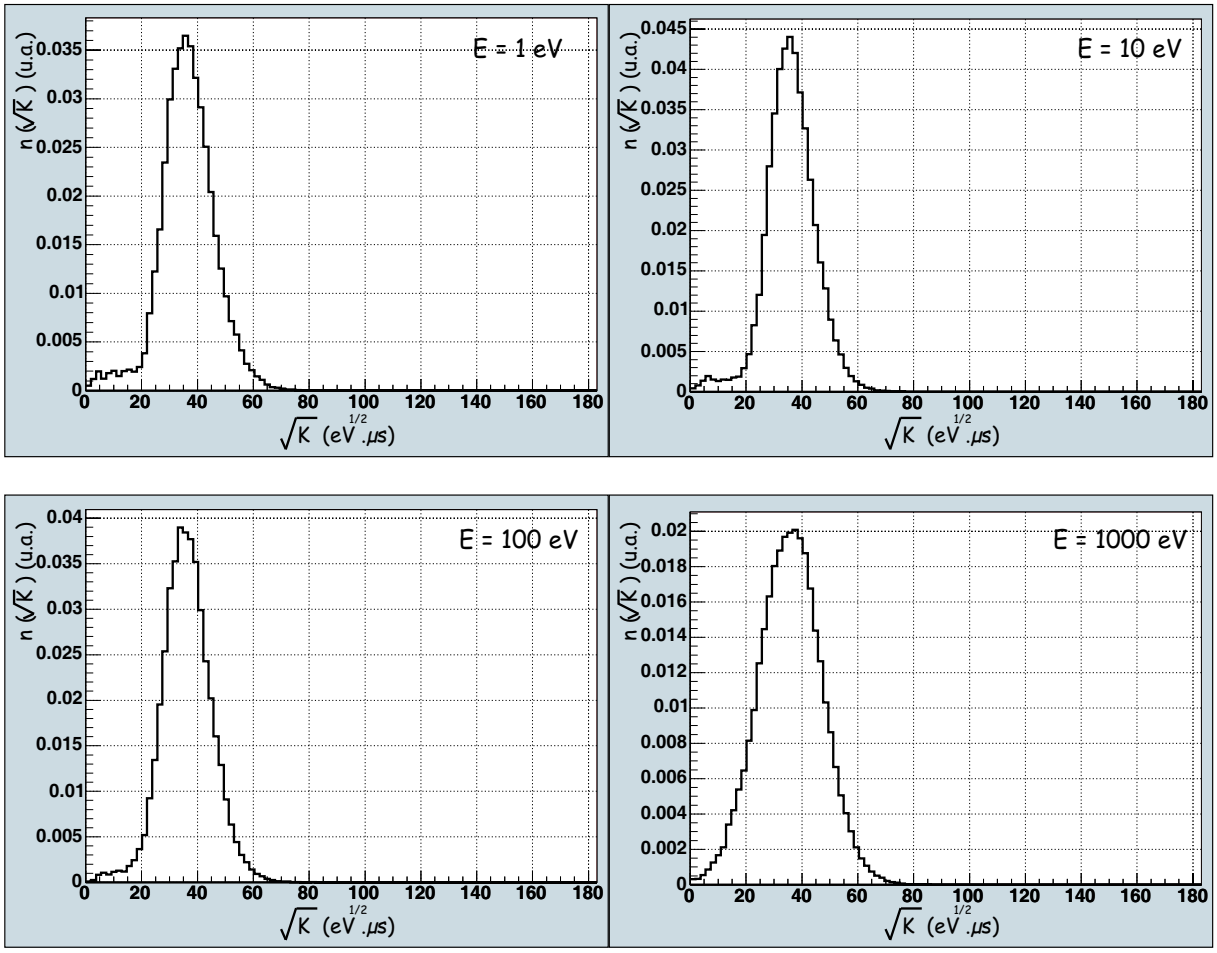


FIG. 4.8 – *Projection sur l'axe $\sqrt{K}$ des coupures en énergie de la population neutronique en fonction de E et de $\sqrt{K}$ dans une cellule du massif de Téflon.*

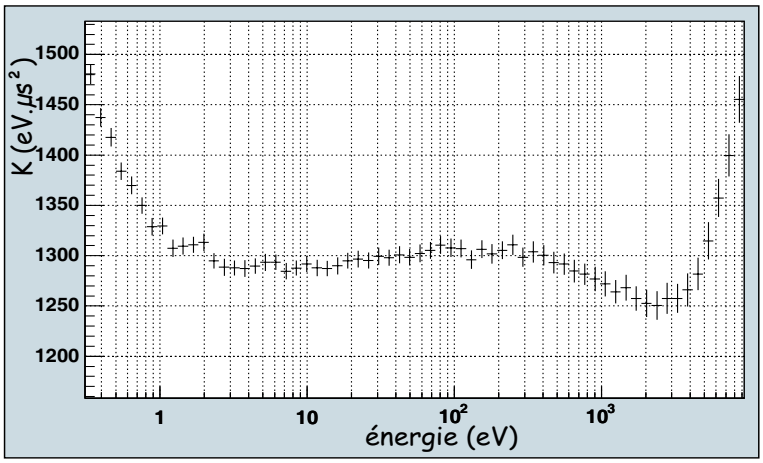


FIG. 4.9 – *Représentation du paramètre K en fonction de l'énergie dans le cas du massif de Téflon.*

Chapitre 5

Traitement des données expérimentales et simulées

Nous allons décrire dans ce chapitre l'ensemble des étapes conduisant aux spectres expérimentaux et simulés exploitables à partir des données brutes obtenues tel que nous l'avons décrit dans les chapitres 2 et 3.

5.1 Les expériences

5.1.1 Méthode de reconstitution des spectres expérimentaux

Trois étapes sont nécessaires pour obtenir des spectres expérimentaux exploitables à partir des fichiers de données expérimentales décrits dans le paragraphe 2.3.3 :

- Transformer le temps absolu t_a en temps relatif t_r repéré par rapport au temps de l'impulsion GENEPI antérieure au signal :
  A chaque impulsion GENEPI est codé l'instant absolu de l'impulsion t_G, les instants absolus t_a des événements sont alors exprimés relativement à l'instant initial GENEPI tel que $t_r = t_a - t_G$. Nous obtenons alors des événements stockés en temps relatif, c'est à dire par rapport à l'impulsion GENEPI qui devient l'origine temporelle des événements.
- Corriger la perte d'événements due aux empilements :
  La correction de la perte d'événements empilés consiste à créer un événement supplémentaire lorsque nous trouvons un événement avec un bit d'empilement égal à 1. Le temps de montée des signaux étant de l'ordre de $100\,ns$, cela signifie que l'événement rejeté a un temps d'arrivée compris entre l'instant t de l'événement courant et l'instant $t + 100\,ns$. L'acquisition stocke les instants des événements sur des canaux de $25\,ns$, le temps de montée correspond alors à

4 canaux. Un tirage aléatoire est effectué entre 0 et 4 et un événement est rajouté à l'instant correspondant au canal temporel $t_i + \Delta t_i$ où Δt_i est l'entier inférieur du nombre généré aléatoirement. L'énergie associée à l'événement rajouté est fixée arbitrairement, ce qui importe peu car nos analyses vont concerner les spectres en temps.

- Corriger la perte d'événements due au temps mort.
  Il s'agit pour cela de déterminer le temps mort associé à l'ensemble du système de détection et d'acquisition. Un moyen consiste à extraire des données les écarts en temps Δt entre un événement et son suivant, méthode que nous appliquons et dont nous représentons les résultats pour différentes acquisitions sur la figure 5.1.

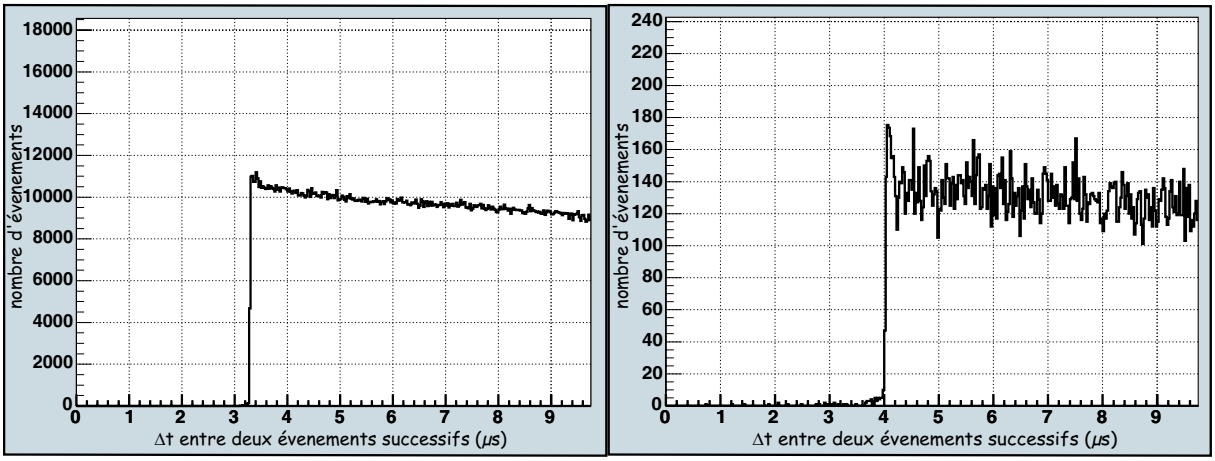


FIG. 5.1 – *Distribution type des différences temporelles des événements successifs pour les acquisitions dans le massif de graphite à gauche, et de Téflon à droite.*

Le temps entre $t = 0$ et l'apparition d'un taux de comptage non nul correspond au temps mort total. Nous trouvons alors à l'aide de ces deux figures un temps mort $\tau_m = (3.31 \pm 0.03)\,\mu s$ pour les acquisitions dans le graphite et $\tau_m = (4.04 \pm 0.03)\,\mu s$ pour les acquisitions dans le Téflon.
La correction de temps mort se déduit de la façon suivante [Kn89, Le84-2] :
Une expérience réalisée avec N_b impulsions GENEPI, a un nombre de coups mesurés dans un canal temporel t de largeur Δt qu'on appelle $N_m(t)$. Le nombre de coups non mesurés à cause du temps mort est $N_\tau(t)$. Alors, le taux de comptage effectif $N_v(t)$ est :

$$N_v(t) = N_m(t) + N_\tau(t) \tag{5.1}$$

Par ailleurs, les probabilités $P_m(t)$ d'enregistrer un coup dans un canal t de largeur Δt et $P_v(t)$

de mesurer un coup si le temps mort est nul s'écrivent :

$$P_m(t) = \frac{N_m(t)}{N_b}\ ,\ P_v(t) = \frac{N_v(t)}{N_b} \tag{5.2}$$

La probabilité d'avoir un événement dans le temps mort, donc non mesuré, $P_\tau(t) = \frac{N_\tau(t)}{N_b}$ correspond alors à la détection d'un événement sachant qu'il y a eu un signal détecté et stocké entre le temps $t - \tau_m$ et t. Elle s'écrit en conséquence :

$$P_\tau(t) = P_v(t)\left(\sum_{t-\tau_m}^{t} P_m(t)\right) \tag{5.3}$$

En combinant les trois dernières équations, nous pouvons alors extraire le taux de comptage corrigé du temps mort :

$$N_v(t) = \frac{N_m(t)}{1 - \sum_{t-\tau_m}^{t} \frac{N_m(t)}{N_b}} \tag{5.4}$$

L'ensemble des corrections énoncées conduisent à des spectres en temps finalisés représentant les taux de réaction en fonction d'un canal temps. Il reste finalement à modifier l'axe des abscisses par la correspondance $1\,canal = 25\,ns$.

5.1.2 Réponse du détecteur silicium

Le semi-conducteur silicium fournit l'information sur le monitorage direct de la source de neutrons. Le signal qu'il fournit est codé de manière à obtenir le nombre de particules détectées en fonction de leur temps d'arrivée et de leur énergie. Nous représentons figure 5.2 un spectre type issus du détecteur Silicium.

L'histogramme en échelle linéaire en z nous montre qu'un pic majoritaire est observable vers le canal d'amplitude 1100 et pour un canal temporel de l'ordre de 1900. Nous observons aussi deux distributions plus faibles à un temps équivalent mais à des amplitudes plus faibles. L'histogramme construit en échelle logarithmique permet d'observer des pics de faibles amplitudes. Nous observons deux pics secondaires vers le canal temporel 1900, d'énergie plus élevée que le pic principal. Enfin, des distributions sont observables au canal d'amplitude 1100, semblant se répéter au cours du temps. Ces dernières distributions ont été interprétées comme un signal "écho" du pic principal, l'écart en temps entre elles étant de l'ordre de grandeur du temps de transmission du signal le long de deux fois la distance des câbles coaxiaux. Nous négligerons par la suite ce bruit d'origine électronique qui représente moins de 0.3% du pic principal.

Il est possible de détecter plusieurs protons simultanément. Si le nombre de protons total généré par impulsion est N_p, alors la probabilité lors d'une impulsion de détecter un et un seul proton est :

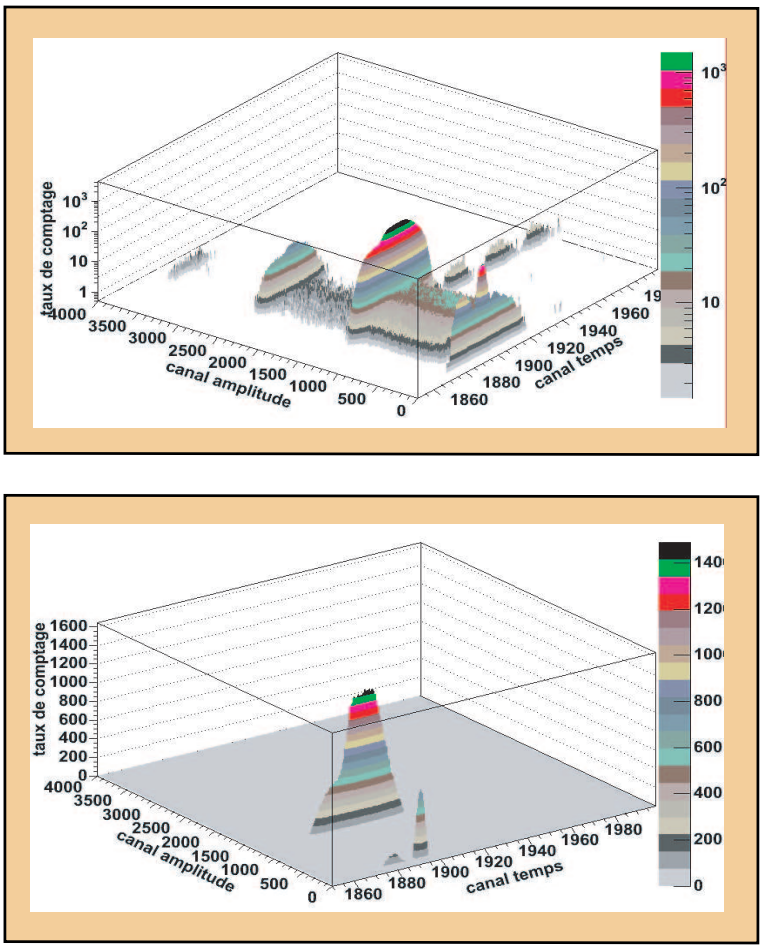


FIG. 5.2 – *Signal du détecteur Silicium pour une acquisition réalisée dans le massif de graphite. La figure du haut est en échelle logarithmique en z afin d'observer toutes les contributions non nulles dans le détecteur, tandis que celle du bas, en échelle linéaire, met en évidence les contributions majoritaire du signal.*

$$P(1) = N_p \varepsilon (1-\varepsilon)^{N_p - 1} \tag{5.5}$$

où le terme ε est l'efficacité de détection, probabilité qu'un proton soit émis dans la direction du diaphragme et détecté. Cette formule se généralise à la détection de i protons :

$$P(i) = C_{N_p}^{i} \varepsilon^{i} (1-\varepsilon)^{N_p - i} \tag{5.6}$$

avec la combinaison $C_{N_p}^{i} = \frac{N_p!}{i!(N_p - i)!}$.

Représentons la projection du graphique représenté figure 5.2 sur l'axe des amplitudes, nous observons alors la figure 5.3. Nous avons pris soin de normaliser le spectre par le nombre d'impulsions GENEPI, afin de pouvoir relier les histogrammes avec la loi de probabilité décrite par l'équation (5.6).

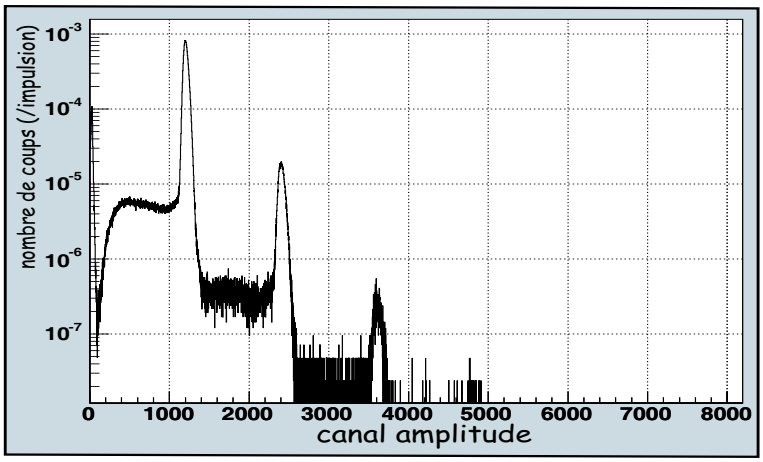


FIG. 5.3 – *Projection sur l'axe des amplitudes du spectre Silicium. Le spectre a été normalisé par le nombre d'impulsion GENEPI de l'acquisition correspondante (de l'ordre de* 40.10^6*dans ce cas).*

Nous observons trois pics distincts dont les maximums extraits par ajustement gaussien sont respectivement 1200.6, 2402.3 et 3602.6. Nous pouvons penser qu'il s'agit d'une simple, d'une double et d'une triple détection de protons, ce que nous pouvons vérifier à l'aide de la loi de probabilité (5.6).

Tout d'abord, il convient de fixer les limites d'intégration des différents pics observés (cf figure 5.3).

Il reste à déterminer la valeur de l'efficacité ε, produit de l'efficacité intrinsèque (égale à 1 pour un détecteur semi-conducteur) par l'efficacité géométrique. Nous avons développé deux méthodes pour déterminer cette dernière.

La première méthode consiste à effectuer un code Monte-Carlo qui génère aléatoirement les protons issus de la source de *TiD* en suivant leurs distributions énergétique et angulaire décrite au paragraphe 3.3.1. Il suffit d'effectuer le rapport entre le nombre de protons qui passent par le diaphragme

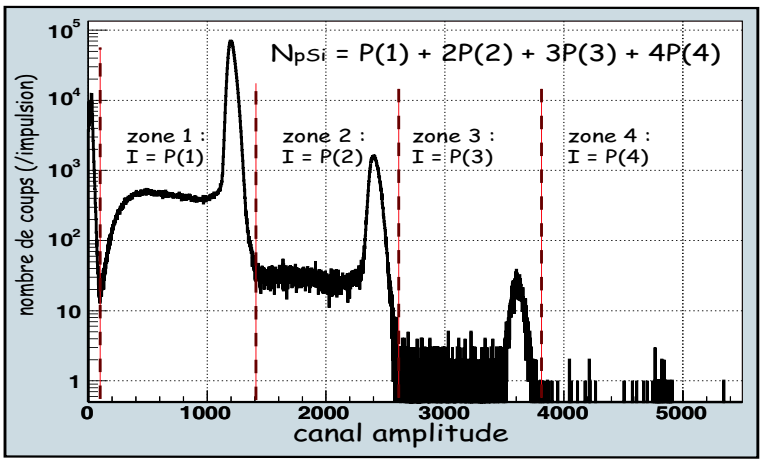


FIG. 5.4 – *Projection sur l'axe des amplitudes du spectre Silicium. Nous avons représenté les zones d'intégration ainsi que l'expression de la somme des événements compris dans cette zone. La zone i correspond à une multiplicité de détection de i protons. N_{pSi} est le nombre total de protons détectés par impulsion GENEPI.*

du moniteur Silicium sur le nombre total de protons générés.

La deuxième méthode consiste à calculer cette efficacité à partir des distributions angulaire et énergétique de l'émission de protons. Le nombre de protons N_{pSi} généré par des deutons d'énergie E_d et émis dans l'angle solide du détecteur (cf figure 5.5) est proportionnel à la section efficace de la réaction $D(d,p)^3H$ (que l'on note $\sigma_p(E_d)$) et inversement proportionnel à la perte d'énergie d'un deuton dans la cible. Il est aussi proportionnel à la probabilité $P(\nu_{Si},E_d)\Delta\Omega$ qu'a un proton créé par un deuton d'énergie E_d d'être émis dans l'angle solide du diaphragme $\Delta\Omega = \frac{S}{D^2}\nu_{Si}$. $S\nu_{Si}$ est la surface apparente du diaphragme vue depuis la source et D est la distance de la source au diaphragme.

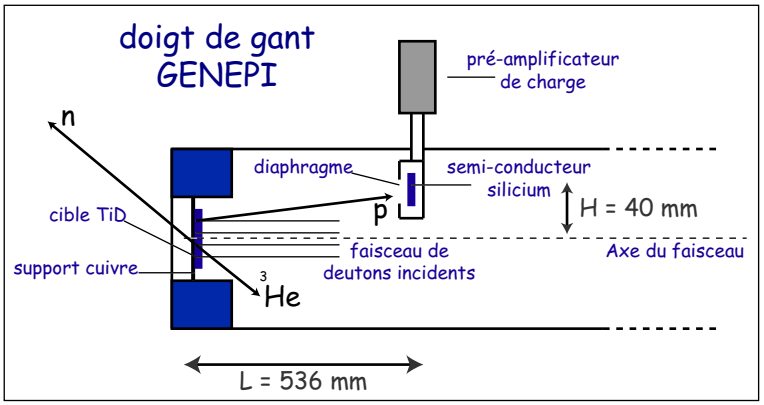


FIG. 5.5 – *Schématisation du moniteur.*

Nous avons ici considéré que l'émission de protons est ponctuelle. Le nombre de protons total N_p créés dans tout l'espace par des deutons d'énergie E_d est quant à lui proportionnel aux mêmes grandeurs et à l'intégrale sur tout l'espace de $P(\nu, E_d)\Delta\Omega$. L'efficacité géométrique s'écrit alors :

$$\varepsilon = \frac{\displaystyle\int_{E_d=0}^{E_d=E_0} \left[\frac{\sigma_p(E_d)}{\left(\frac{dE}{dx}\right)} . P(\nu_{Si}, E_d) \frac{S\nu_{Si}}{D^2} \right] dE_d}{\displaystyle\int_{E_d=0}^{E_d=E_0} \left[\frac{\sigma_p(E_d)}{\left(\frac{dE}{dx}\right)} . \int 2\pi P(\nu, E_d) d\nu \right] dE_d} \tag{5.7}$$

Nous remarquons alors que si nous imposons $P(\nu, E_d)$ constant, nous retrouvons l'expression de l'efficacité géométrique dans l'approximation des petits angles pour une source isotrope. L'application des ces deux méthodes dans la détermination de l'efficacité géométrique a mené à deux valeurs identiques, nous avons alors :

$$\varepsilon = (25.7 \pm 0.1) \, .10^{-7} \tag{5.8}$$

L'écart par rapport à un système géométrique identique avec une source de protons isotrope est de l'ordre de 15%.

Nous avons par ailleurs estimé dans le paragraphe 2.2.2 que le nombre de protons N_p émis par impulsion GENEPI est de l'ordre de 25000. Nous pouvons donc maintenant calculer les probabilités de détecter un, deux ou trois protons dans le détecteur, et les comparer aux valeurs mesurées, obtenues par intégration des pics du spectre expérimental. Le tableau 5.1 indique les résultats obtenus.

	expérimental	calculé
$P(1)$	$5.7.10^{-2}$	$5.8.10^{-2}$
$P(2)$	$1.8.10^{-3}$	$1.8.10^{-3}$
$P(3)$	$3.4.10^{-5}$	$3.7.10^{-5}$

TAB. 5.1 – *Tableau explicitant les probabilités de détection d'un, deux ou trois protons déterminées par le calcul (équation (5.6)) et par la mesure.*

Les probabilités expérimentales étant relativement proches du calcul, nous avons alors clairement vérifié que les trois pics observés sont relatifs à la détection de un proton, de deux protons et enfin, de trois protons, ce qui nous permet de déterminer expérimentalement le nombre de protons émis par impulsion GENEPI par la formule suivante :

$$N_p = (P(1) + 2.P(2) + 3.P(3))\,\varepsilon \tag{5.9}$$

qui conduit à la valeur $N_p = 23500$ protons générés en moyenne lors d'une impulsion GENEPI pour cette acquisition, et à un nombre de neutrons générés (cf. équation (2.14)) :

$$N_{n/G} \sim 26000 \pm 1000 \tag{5.10}$$

Nous pouvons généraliser les remarques précédentes et les appliquer à l'ensemble des acquisitions dans les massifs de graphite et de Téflon, ce qui nous permettra d'observer l'évolution de l'émission de neutrons au cours des acquisitions successives. La figure 5.6 illustre à ce titre le nombre total de neutrons émis par impulsion GENEPI pour les acquisitions graphite et Téflon.

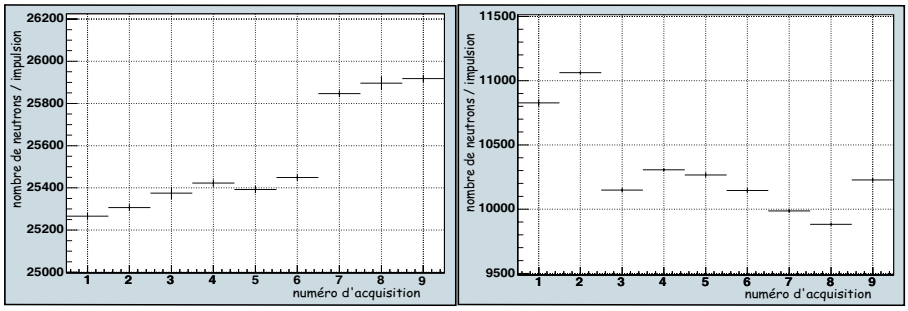


FIG. 5.6 – *Nombre total moyen de neutrons émis par la source de TiD par impulsion GENEPI dans l'ensemble des acquisitions graphite (figure de gauche) et de Téflon (figure de droite). Les erreurs représentées sont uniquement statistiques.*

Ces deux histogrammes montrent que l'intensité de la source n'est pas particulièrement stable d'une acquisition à une autre. Nous observons une brusque augmentation de l'émission de neutrons dans le cas du graphite au niveau de l'acquisition $n°$ 7 qui correspond à une modification des réglages du faisceau visant à une meilleure focalisation. Les acquisitions Téflon montrent une chute d'une dizaine de pour-cent entre les acquisitions $n°$ 2 et $n°$ 3. Ce fait s'explique simplement en précisant qu'il y a eu six jours d'écart entre ces deux acquisitions ; les conditions de faisceau ont pu donc se modifier. Nous observons de plus qu'il existe un facteur de l'ordre de 2.5 entre les nombres totaux de neutrons émis par la source en acquisition Téflon et graphite. En effet, les expérimentions graphite ont été réalisées quelques mois après les acquisitions Téflon et nous avons utilisé une cible *TiD* de meilleure qualité réalisée par le laboratoire de chimie du LPSC. La sélection des événements relatifs aux protons des spectres issus du détecteur silicium permettent aussi de déterminer la distribution temporelle de l'impulsion de neutrons. Celle-ci, étant intégrée à la simulation numérique, doit être déterminée avec précision. Elle se déduit de la projection sur l'axe des temps de la distribution représentée figure 5.2, en prenant soin d'éliminer les événements non relatifs à l'émission de protons. Nous obtenons alors la figure 3.11.

Les acquisitions dans le bloc de Téflon ayant été réalisées avec plusieurs mois d'intervalle par rapport au graphite, la forme du faisceau, dépendant des réglages de GENEPI et de l'électronique, est différente (cf figure 3.12).

Nous justifions ainsi l'introduction de ces deux distributions dans la simulation numérique comme nous l'avons décrit dans le Chapitre 3.

5.1.3 Réponse du P.M.

Le signal fourni par le P.M. contient l'amplitude et le temps associés aux gammas détectés au cours d'une acquisition. L'amplitude est proportionelle à l'énergie des gammas détectés ; il n'est pas nécessaire de détailler cette information. Nous allons donc nous concentrer sur la réponse temporelle du photo-multiplicateur.

Les acquisitions principales sont réalisées avec un VETO sur les événements qui proviennent directement de l'impulsion GENEPI (cf figure 5.7). Des séries de courtes acquisitions sans VETO

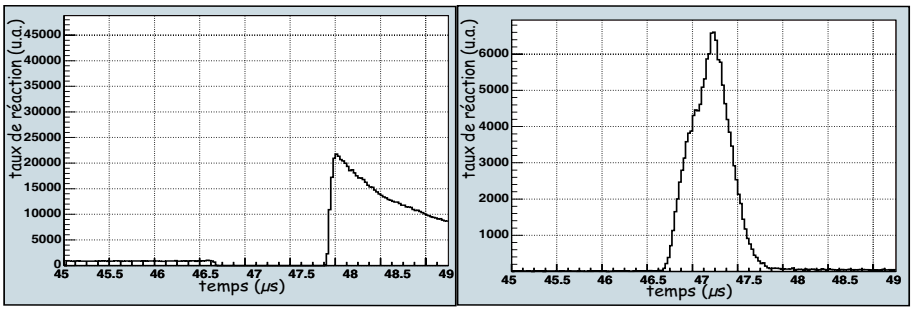


FIG. 5.7 – *Visualisation du VETO (à gauche) et d'une acquisition sans VETO , à droite.*

($\sim 15\,min$) encadrent les acquisitions principales afin de permettre la détermination de l'instant de création des neutrons.

Les acquisitions sans VETO durant l'impulsion GENEPI impliquent un temps mort important. On peut s'en rendre compte en comparant le flash gamma issu du PM avec la distribution temporelle de l'impulsion de neutrons déterminée par le signal du détecteur silicium, peu détériorée par le temps mort (cf figure 5.8).

Nous observons que la correction de temps mort appliquée au flash gamma détecté par le *YAP* conduit à un signal identique à celui fourni par le détecteur Silicium. Par suite, il est tout à fait raisonnable de reconstituer le flash gamma des spectres avec $VETO$ et ce dernier s'interprète comme une image temporelle de l'impulsion de neutrons.

Finalement, tous les spectres sont corrigés par les événements empilés puis corrigés du temps mort. L'impulsion initiale est reconstituée, renormalisée par rapport au nombre de protons N_p détectés dans le silicium, puis superposée aux acquisitions principales elles aussi renormalisées par rapport à N_p.

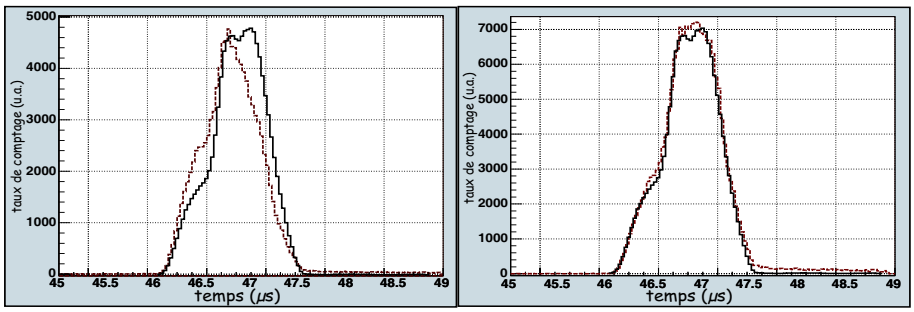


FIG. 5.8 – *Impulsions GENEPI (les deux spectres en trait plein à gauche et à droite) comparée au flash gamma généré à l'instant du pulse GENEPI et détecté par le scintillateur YAP (courbes pointillées à gauche et à droite). La courbe de gauche n'est pas corrigée du temps mort, contrairement à celle de droite.*

• ACQUISITIONS GRAPHITE

Les spectres représentatifs des taux de comptages reconstitués pour les acquisitions graphite et pour toutes les cibles, figure 5.9 , permettent de visualiser l'ensemble des résonances temporelles.

Il importe, avant de commenter ces courbes, d'observer l'importance relative des empilements et du temps mort sur la réponse temporelle du photo-multiplicateur. Nous allons raisonner ici sur des acquisitions réalisées avec une cible d'or dont l'amplitude de la résonance est supérieure à celles des autres cibles utilisées. Les spectres montrant la contribution des événements empilés sont représentés figure 5.10 et montrent qu'au niveau de la résonance de l'or, la proportion de ces événements est de l'ordre de 2%.

La figure 5.11 indique l'importance de la correction de temps mort par l'intermédiaire du facteur de correction, en fonction du temps, rapport entre le spectre corrigé et non corrigé. La correction de temps mort est maximale vers la résonance de l'or et entraîne une augmentation du taux de réaction d'environ 9%.

Enfin, les spectres réponse du photo-multiplicateur montrent que les résonances temporelles observées sont bien résolues. Les instants de ces résonances, pouvant être associés aux maximums des taux de réaction sont en cohérence avec les énergies des résonances des cibles utilisées. L'énergie de résonance la plus haute, pour le molybdène ($E_r = 45\,eV$), correspond au temps de résonance le plus faible, de l'ordre de $4\,\mu s$ par rapport à l'origine de la représentation. De la même manière, l'or ($E_r = 4.9\,eV$) a une résonance observée vers $11\,\mu s$ tout comme l'argent ($E_r = 5.2\,eV$). Enfin, l'indium a l'énergie de résonance la plus basse, à $1.5\,eV$, qui correspond à un instant de résonance de l'ordre de $20\,\mu s$. Les "flashs gammas" qui correspondent à l'impulsion de neutrons GENEPI sont très intenses et d'amplitudes bien supérieures aux résonances observées, ce qui justifie la présence du VETO lors

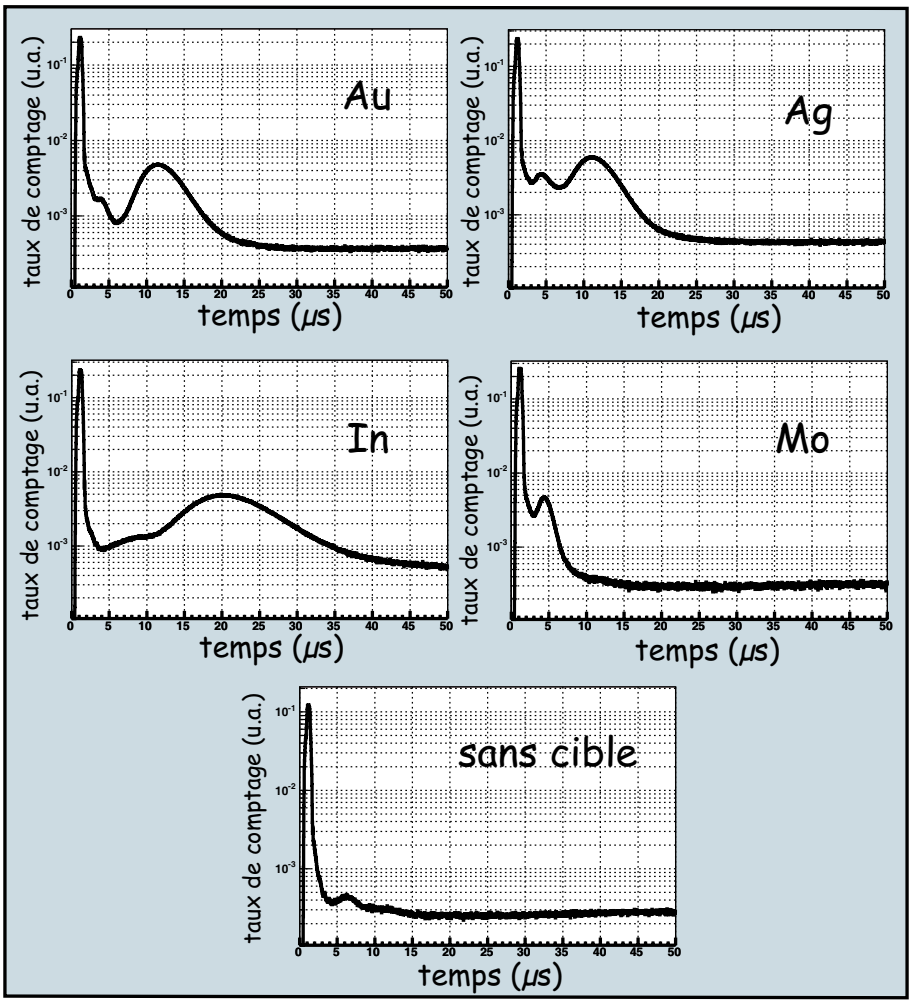


FIG. 5.9 – *Taux de comptages en fonction du temps pour les différentes cibles utilisées dans le massif de graphite. Le spectre du bas montre la somme des acquisitions sans cible, représentatives du bruit de fond au cours d'une acquisition.*

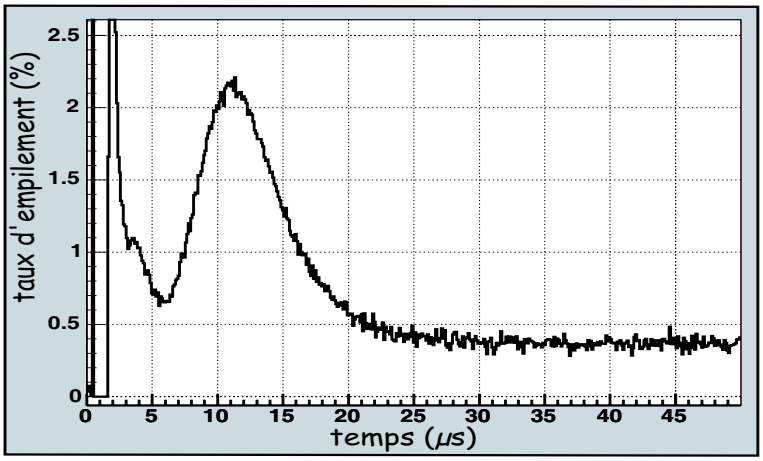


FIG. 5.10 – *Taux d'événements empilés en pour-cent dans le photo-multiplicateur (massif de graphite).*

de ces acquisitions.

Au niveau du spectre de bruit de fond, nous observons une légère remontée du taux de comptage au-delà des 20 μs qui est caractéristique de la remontée de section efficace du cadmium à basse énergie. Nous notons de plus la présence de faibles résonances vers les 6 μs ainsi que vers les 11 μs.

• ACQUISITIONS TÉFLON

D'une manière similaire aux mesures dans le graphite, les spectres totaux représentatifs des taux de réaction (n,γ) sont normalisés par rapport aux nombres de protons détectés dans le silicium. Ils sont aussi reconstitués en superposant le "flash" gamma initial. L'ensemble des acquisitions avec et sans cible sont représentés figure 5.12.

La contribution des empilements dans les spectres expérimentaux est représentée pour l'ensemble des acquisitions avec une cible d'or (figure 5.13). Nous déterminons ainsi la proportion maximale d'événements empilés au niveau de la résonance de l'or, de l'ordre de 0.35%, plus faible que dans le cas du graphite. Les acquisitions dans le graphite et le Téflon ont été réalisées avec plusieurs mois d'intervalle, et le circuit électronique a été reconstitué. Dans le cas du graphite, le seuil du discriminateur était plus bas que dans le cas du Téflon, ce qui induit plus d'événements détectés par impulsion GENEPI. Par suite, la proportion d'événements empilés, directement proportionnelle au taux de comptage par impulsion, est plus faible ici.

En ce qui concerne le temps mort, les remarques précédentes s'appliquent encore et nous trouvons (cf figure 5.14) un facteur de correction de temps mort égal à 1.015 au plus. Cette grandeur

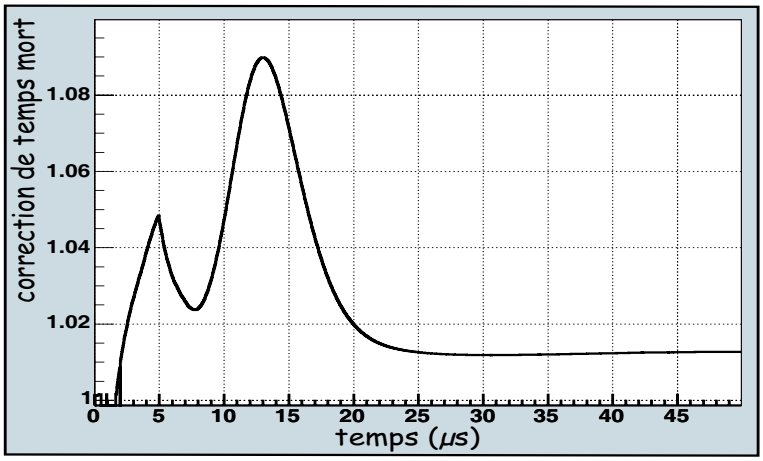


FIG. 5.11 – *Représentation de la fonction de correction de temps mort exprimant le rapport entre le taux de comptage corrigé à celui non corrigé en fonction du temps.*

exprime une correction de temps mort maximale de 1.5%, faible devant les 9% de corrections pour les acquisitions graphite.

Enfin, les mesures réalisées dans le cas du Téflon conduisent à des observations similaires à celles des mesures dans le graphite. Pour le spectre de bruit de fond, nous observons une similitude avec le bruit de fond dans le graphite. En effet, un pic est mis en évidence vers les $9\,\mu s$ et un autre, d'amplitude plus faible, vers les $20\,\mu s$. Ce fait implique une discussion sur le bruit de fond, car aucun des matériaux de l'ensemble expérimental n'explique la présence de ces pics.

• ÉTUDE DU BRUIT DE FOND

Nous avons déterminé les énergies des pics observés à l'aide de la relation $E - t$ dans le graphite (pour $t \sim 6\,\mu s$) et le Téflon (à $t \sim 9\,\mu s$). Il apparaît alors que dans les deux cas, ces pics correspondent à la même énergie $E \sim 19\,eV$. En d'autres termes, un pic commun aux deux spectres de bruit de fond montre une résonance d'un noyau contenu dans les matériaux constituant le dispositif expérimental. De même, la légère remontée qui suit les pics est observée pour une énergie de l'ordre de $4\,eV$ dans les deux massifs. Nous avons alors examiné les sections efficaces de réaction (n,γ) de tous les matériaux tabulés dans la base de données $ENDF$, puis, nous avons sélectionné ceux ayant une résonance isolée entre $17\,eV$ et $21\,eV$ suffisamment intense, soit supérieure à environ $1000\,barns$. Parmi ces derniers, nous n'avons sélectionné que les noyaux dont la résonance vers $19\,eV$ est supérieure à d'éventuelles résonances à plus basse énergie (ce qui aurait généré un autre pic d'intensité comparable à un temps supérieur à $9\,\mu s$). Il subsiste après ces diverses sélections deux candidats :

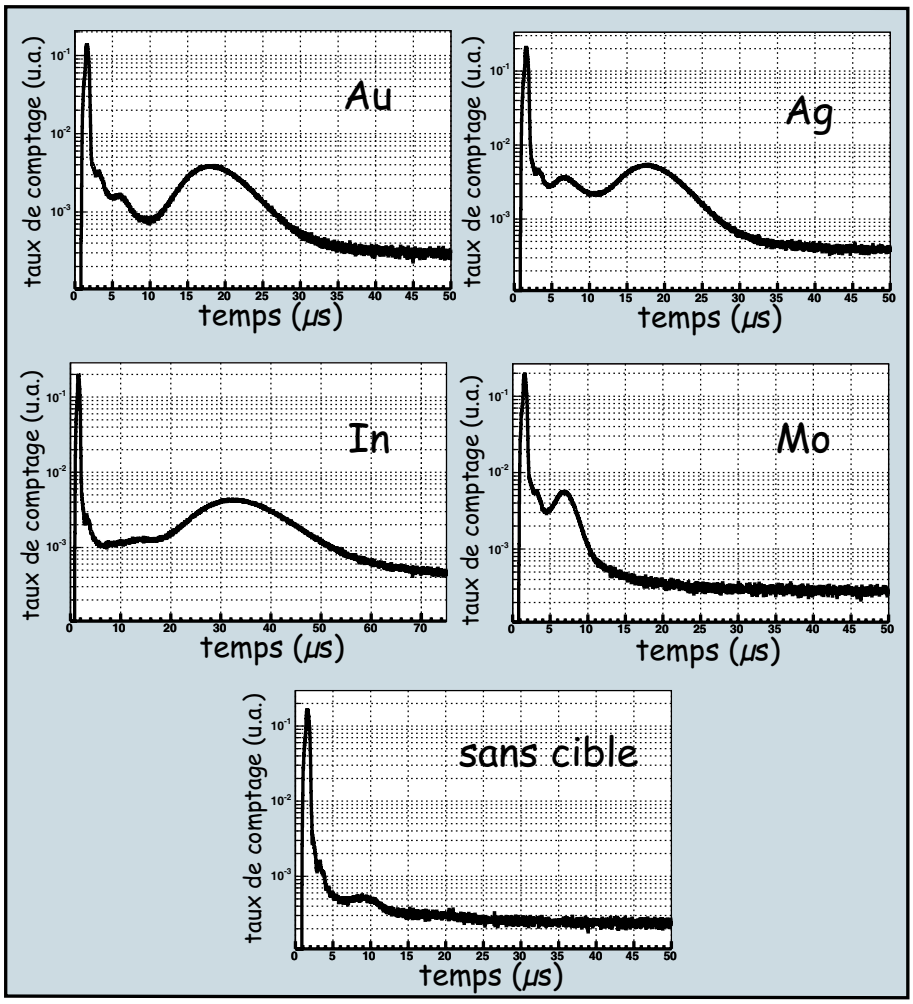


FIG. 5.12 – *Taux de comptages en fonction du temps dans les différentes cibles utilisées pour l'ensemble des acquisitions dans le massif de Téflon. Le spectre du bas montre la somme des acquisitions sans cible, représentative du bruit de fond au cours d'une acquisition.*

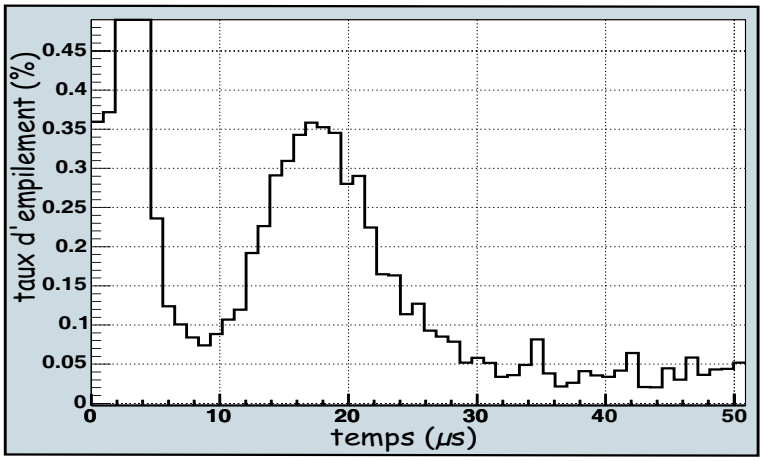


FIG. 5.13 – *Taux d'événements empilés en fonction du temps en pour-cent dans le photomultiplicateur dans le cas du massif de Téflon.*

- le tungstène 186 présent à 30% dans le tungstène naturel.
- le samarium 147 présent à 15% dans le samarium naturel.

dont les sections efficaces d'absorption sont représentées figure 5.15.

Nous pouvons exclure le samarium 147, car ce noyau à l'état naturel se compose à parts quasi-égales des isotopes $A = 147$, $A = 148$, $A = 149$, $A = 150$, $A = 154$ et de l'isotope $A = 152$, qui a une résonance à $E = 8\,eV$ d'intensité $2.10^5\,barns$, soit presque cent fois plus intense que celle que nous avons représentée. Le tungstène naturel est composé des isotopes 182, 183, 184 (qui n'a pas de résonance sur le domaine énergétique observé) et 186. Le tungstène naturel apparaît alors comme le seul candidat potentiel générant les pics observés dans les bruits de fond expérimentaux.

Les alliages utilisés pour le doigt de gant sont connus avec précision et le tungstène n'apparaît pas dans leur composition [MW05]. Il ne peut en conséquent être présent qu'à l'état de trace, or, il est exclu qu'une impureté présente au niveau du doigt de gant puisse générer un pic aussi intense. Nous connaissons les impuretés présentes dans le Téflon utilisé pour le maintien de l'ensemble de détection et le tungstène n'y figure pas. Enfin, les concepteurs du P.M. [PH05-2] excluent le tungstène de sa composition. Il reste alors les bagues de serrage de l'ensemble de détection, usinée dans un dural qui n'a pas fait l'objet d'analyse d'impuretés. Nous allons raisonner en terme d'ordre de grandeur afin de tester la cohérence de cette hypothèse. Cherchons à déterminer la quantité de tungstène nécessaire dans la bague qui entoure le scintillateur pour reproduire le pic observé. Nous pouvons approximer, de part la position de la bague, que l'efficacité géométrique de détection d'un gamma issu de cette bague est du même ordre de grandeur que l'efficacité de détection d'un gamma émis par une des cibles résonnantes lorsqu'elles sont intégrées au système. L'instant d'apparition du pic dans le bruit de fond étant proche du temps de résonance associé à une acquisition avec une cible de molybdène,

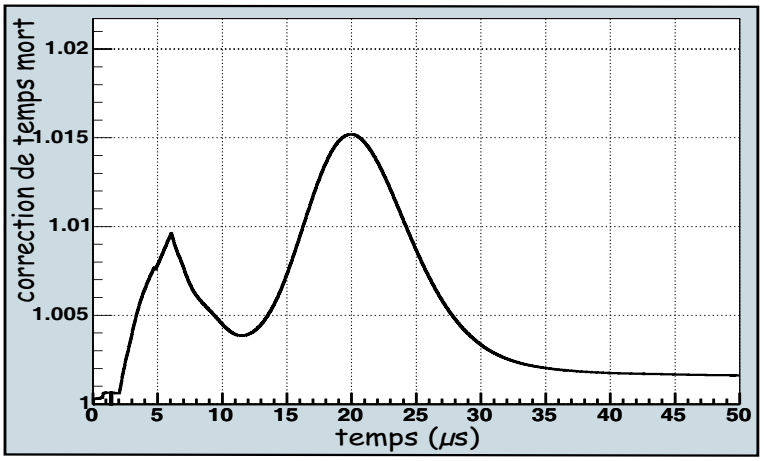


FIG. 5.14 – *Représentation de la fonction de correction de temps mort pour une acquisition avec une cible d'or dans le massif de Téflon exprimant le rapport entre le taux de comptage corrigé sur celui non corrigé en fonction du temps.*

nous pouvons alors estimer la quantité de tungstène nécessaire à la production du pic observé en fonction de la quantité de molybdène dans la cible résonnante. La fraction atomique de tungstène, rapport du nombre d'atomes de tungstène sur le nombre d'atomes n_{Al} composant la bague en dural s'exprime ainsi :

$$\tau_w = \frac{n_{Mo}\sigma_{Mo}}{n_{Al}\sigma_W}\frac{N_W(t_r)}{N_{Mo}(t_r)} \tag{5.11}$$

où les termes σ représentent respectivement les sections efficaces de réaction (n,γ) au niveau de la résonance du molybdène (indicé par Mo), ou du tungstène (W) éventuellement contenu dans la bague en dural (indicée par Al). Les grandeurs n_{Mo} et n_{Al} sont respectivement le nombre d'atomes de molybdène dans la cible et d'aluminium dans la bague de serrage. Enfin, les termes $N(t)$ sont représentatifs des taux de comptage expérimentaux sur des noyaux de molybdène et de tungstène au niveau de leurs résonances respectives[1]. Nous représentons figure 5.16 les taux de réaction comparés du bruit de fond et de la cible de molybdène normalisés par le nombre de protons détectés par le silicium. Le taux de réaction avec la cible de molybdène nous permet d'extraire une approximation du nombre N_{Mo} de gammas détectés à l'énergie de sa résonance ($E_r = 45eV$). Le spectre de bruit de fond nous permet d'encadrer le nombre de gammas détectés issus d'une éventuelle impureté en tungstène contenue dans la bague de serrage du système de détection entre deux limites, données par l'amplitude du pic N_W^+ par rapport au zéro, puis N_W^- par rapport à l'extrapolation du taux de comptage en l'absence du pic (cf figure 5.16).

[1]*Nous approximons dans la relation (5.11) l'égalité des flux à deux temps différents mais néanmoins relativement proches. Cette approximation se justifie car nous cherchons un ordre de grandeur de la quantité de tungstène.*

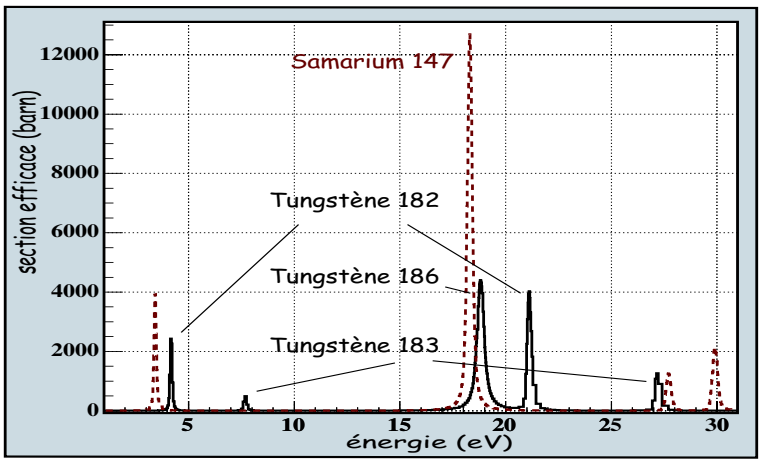


FIG. 5.15 – *Sections efficaces de réaction* (n,γ) *du samarium* 147 *(en pointillé) et du tungstène naturel avec l'origine des résonances dues au tungstène 186, 183 et 182 (trait plein). La résonance principale du tungstène se trouve à* $E = 18.8\,eV$*, celle du samarium à* $E = 18.3\,eV$ *tandis que les secondaires sont respectivement à* $E = 4.2\,eV$ *et* $E = 3.4\,eV$*.*

En déterminant alors les grandeurs de l'équation (5.11), nous obtenons l'encadrement suivant sur la quantité de tungstène nécessaire pour observer le pic du bruit de fond :

$$70\,ppm \leq \tau_W \leq 370\,ppm \tag{5.12}$$

Nous pouvons en conclure que la bague de serrage en dural doit contenir une centaines de ppm de tungstène pour expliquer le pic observé dans les spectres bruit de fond à $E \sim 19\,eV$. De plus, la présence de tungstène est également compatible avec la légère remontée du taux de comptage vers les $4\,eV$. En conclusion, nous avons ajouté une centaine de ppm de tungstène dans la simulation numérique, pour la composition des bagues.

5.1.4 Temps de référence expérimental

L'étude du ralentissement des neutrons dans les massifs que nous considérons implique la connaissance de leur instant de création. Les méthodes de comparaison entre les simulations et les expériences nécessitent une détermination identique de cet instant de référence.

• DÉFINITION DU TEMPS DE RÉFÉRENCE EXPÉRIMENTAL

Nous avons discuté de la forme temporelle du faisceau dans le paragraphe 5.1.2. Nous présentons à titre de rappel l'impulsion GENEPI issue du moniteur de protons figure 5.17 correspondant à la

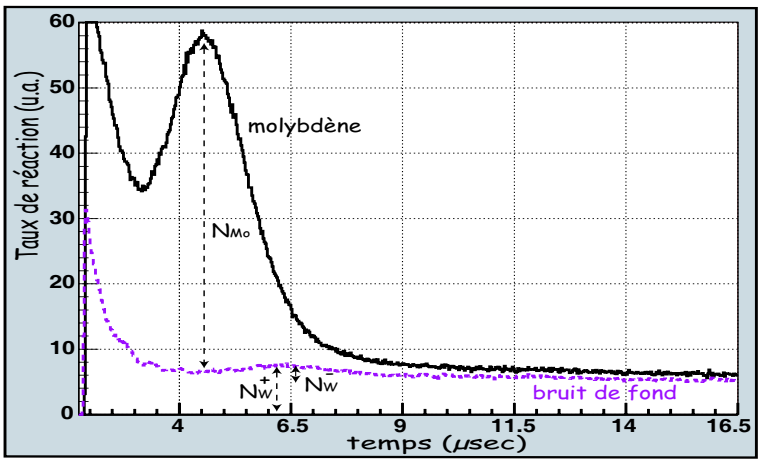


FIG. 5.16 – *Comparaison entre les taux de comptage issus d'une acquisition avec la cible de molybdène avec le spectre bruit de fond.*

forme réelle de l'impulsion de neutrons ainsi que celle issue du PM.

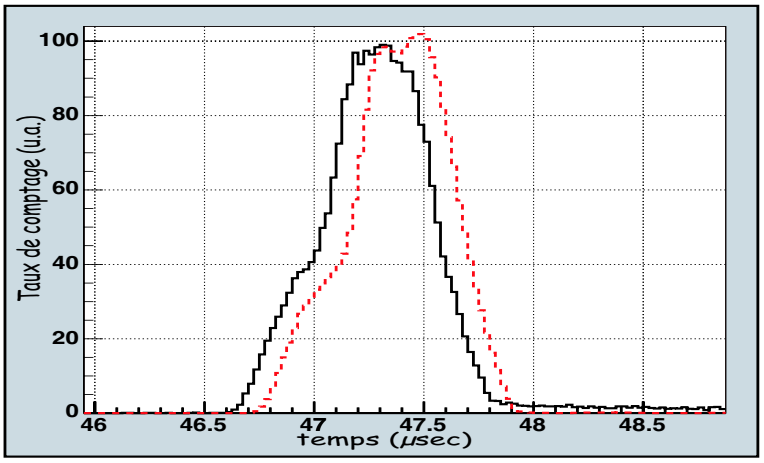


FIG. 5.17 – *Spectre en temps de l'impulsion de protons détectés dans le Silicium, donc de neutrons émis par la cible TiD (courbe pointillé). La courbe noire est l'impulsion détectée par le P.M. lorsque le VETO sur l'impulsion GENEPI n'est pas activé. Les deux voies sont indépendantes d'où le décalage en temps arbitraire entre les deux distributions.*

Le fait que les distributions temporelles issues du détecteur Silicium et du P.M. soient identiques nous permet de choisir l'instant de référence d'un spectre expérimental d'après la distribution $N(t)$ issue du PM sans $VETO$. En effet, nous savons que le "flash" gamma issu du signal du scintillateur correspond à la distribution temporelle de l'impulsion GENEPI. Pour déterminer une valeur expéri-

mentale du temps initial de création des neutrons, notre choix s'est porté sur la valeur moyenne τ_0 de la distribution :

$$\tau_0 = \frac{\sum_i t_i N(t_i)}{\sum_i N(t_i)} \tag{5.13}$$

où la somme s'effectue sur l'impulsion GENEPI uniquement. Appliquée aux courbes de la figure 5.17, nous avons $\tau_0 = 47.27\,\mu s$ avec un écart-type de $0.229\,\mu s$ pour la distribution du scintillateur, et $\tau_0 = 47.38\,\mu s$ avec un écart-type de $0.226\,\mu s$ pour celle du silicium. La différence entre les écart-types des deux distributions est de l'ordre du pour-cent, nous vérifions ainsi que les distributions du Silicium et du P.M. sont équivalentes.

• STABILITÉ DU TEMPS DE RÉFÉRENCE EXPÉRIMENTAL

La notion de temps de référence expérimental n'a de sens que si celui-ci est stable d'une acquisition à l'autre. Le fait que les acquisitions avec cible résonnante incluent un $VETO$ ne permet pas la détermination du temps τ_0 relatif à cette acquisition, c'est pourquoi nous associons à chaque acquisition avec $VETO$, une autre acquisition indépendante sans $VETO$ rendant possible la détermination du temps initial. L'ensemble de ces acquisitions sans $VETO$ doit être stable, c'est à dire que les fluctuations des τ_0 mesurés doivent être faibles par rapport aux incertitudes. Nous allons vérifier ce fait en introduisant l'erreur associée à une valeur de τ_0 mesurée, déduite de la relation (5.13). Les incertitudes proviennent du terme $N(t)$ dont l'erreur est de la forme $\Delta N(t) = \sqrt{N(t)}$. Nous appliquons alors la formule usuelle de propagation des erreurs [Le84-3] en postulant l'indépendance des variables. Nous avons alors :

$$\Delta\tau_0 = \tau_0 \sqrt{\frac{\sum_i t_i^2 N(t_i)}{\left(\sum_i t_i N(t_i)\right)^2} + \frac{1}{N_{tot}}} \tag{5.14}$$

où la somme est réalisée sur l'impulsion GENEPI et où la grandeur N_{tot} est définie par $N_{tot} = \sum_i N(t_i)$. Nous représentons sur le tableau 5.2 l'ensemble des τ_0 ainsi que les erreurs associées pour toutes les acquisitions réalisées sans $VETO$ au sein du massif de graphite et de Téflon. L'ensemble de ces points avec leurs erreurs absolues est tracé figure 5.18.

Nous constatons alors à l'aide du tableau 5.2 et de la figure 5.18 que les valeurs expérimentales des instants initiaux ont un domaine de fluctuation inférieur aux erreurs statistiques associées. Nous

graphite		
τ_0 (μs)	erreur absolue (μs)	erreur relative (%)
47.283	0.095	0.20
47.275	0.160	0.34
47.328	0.108	0.23
47.286	0.108	0.23
47.313	0.128	0.27
47.338	0.118	0.25

Téflon		
τ_0 (μs)	erreur absolue (μs)	erreur relative (%)
8.933	0.020	0.21
8.888	0.040	0.44
8.930	0.035	0.40
8.908	0.030	0.33
8.923	0.025	0.29

TAB. 5.2 – *Détermination expérimentale des temps de référence ainsi que de leurs erreurs absolue et relative pour l'ensemble des mesures réalisées avec les massifs de graphite et de Téflon.*

pouvons alors conclure que notre définition ainsi que notre détermination du temps de référence expérimental sont acceptables.

5.2 Les simulations numériques

L'ensemble des calculs numériques, décrits au chapitre 3, conduit à des fichiers de sortie directement exploitables. Nous pouvons simplement représenter et commenter les résultats obtenus.

5.2.1 Les taux de réaction dans les cibles

• SIMULATION DANS LE MASSIF DE GRAPHITE

Le ralentissement des neutrons dans le graphite conduit aux taux de réaction (n,γ) dans les cibles résonnantes utilisées que l'on représentent figure 5.19.

En plus des résonances principales, on observe pour toutes les cibles, des résonances d'amplitudes plus faibles pour les temps courts, représentatives des résonances résolues d'énergies plus élevées que la principale. Par ailleurs, alors que les sections efficaces d'absorption évoluent en $\frac{1}{V}$ à basse énergie, les taux de réaction tendent vers zéro après les résonances. En fait, comme le montre l'évolution du

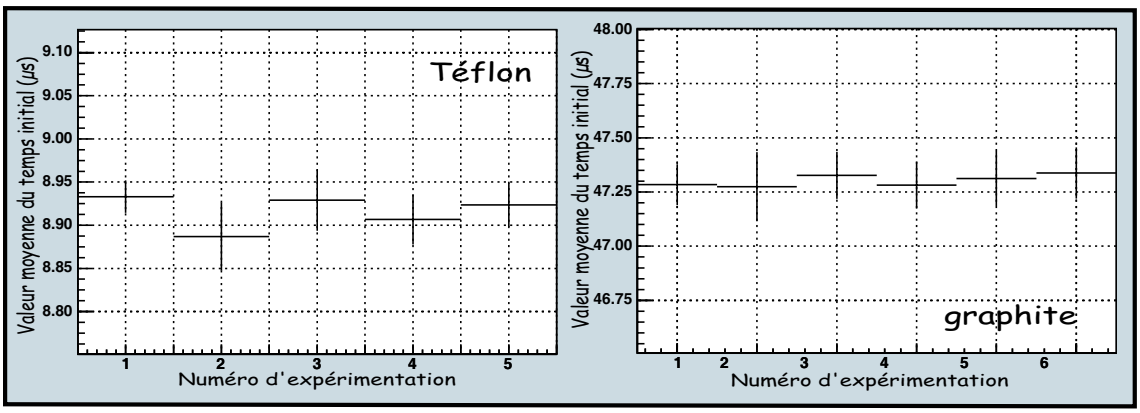


FIG. 5.18 – *Représentation graphique des valeurs expérimentales des temps de référence mesurés avec leurs erreurs absolues lorsque le VETO sur l'impulsion initiale est désactivé. Les acquisitions dans le massif de Téflon sont à gauche, celles dans le graphite à droite.*

flux simulé dans la cible résonnante en fonction du temps (cf figure 5.20), les taux de réaction tendent vers zéro car le flux est fortement décroissant lorsque le temps de ralentissement augmente.

• SIMULATION DANS LE MASSIF DE TÉFLON

Les extraction des taux de réaction (n,γ) des simulations des expériences réalisées dans le massif de Téflon ont conduit aux spectres de la figure 5.21. Les commentaires des taux de réaction mesurés dans le massif de graphite sont alors applicables au cas du Téflon.

5.2.2 Les taux de réaction dans l'environnement expérimental

Nous verrons dans le chapitre suivant que nous pouvons reconstruire le bruit de fond expérimental à partir des taux de réaction simulés dans les différents matériaux qui composent le dispositif expérimental. La figure 5.22 superpose, pour les simulations réalisées dans les massifs de graphite et de Téflon, les taux de réaction dans le massif ralentisseur lui-même, le *YAP*, le cadmium, la bague de serrage du système de détection incluant $100\,ppm$ de tungstène et la cible *TiD* de production de neutrons.

Les spectres de bruit de fond simulés dans le massif de graphite ou de Téflon sont similaires. En effet, la relation $E-t$ dans ces deux massifs entraîne un ralentissement du même ordre de grandeur dans les deux cas.

Les taux de réaction (n,γ) dans le massif ralentisseur (graphite ou Téflon) ainsi que dans le scintillateur *YAP* sont peu dépendants du temps entre quelques microsecondes et quelques dizaines de

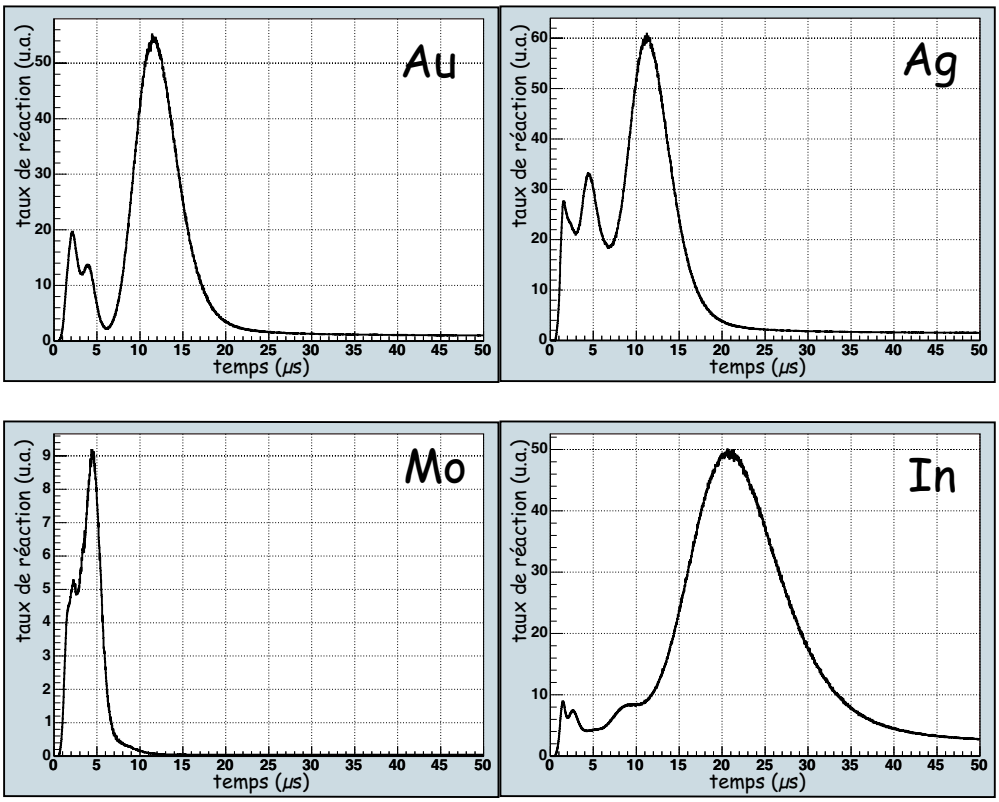


FIG. 5.19 – *Taux de réaction dans les différentes cibles utilisées simulés dans le massif de graphite.*

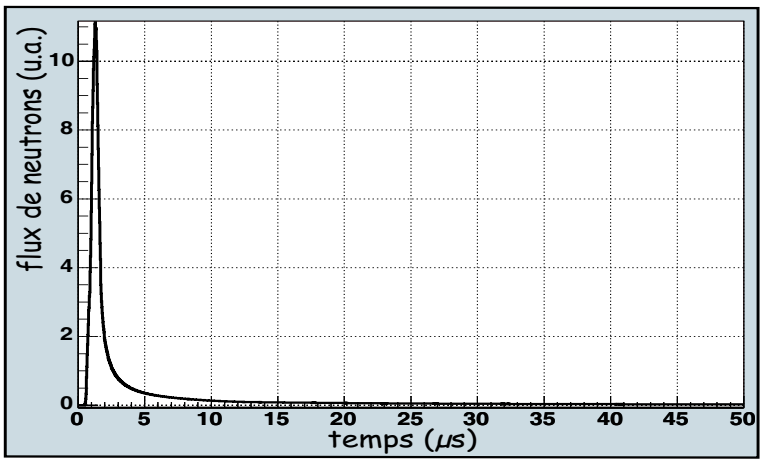


FIG. 5.20 – *Flux de neutrons dans une cible résonnante en fonction du temps de ralentissement.*

microsecondes. La cible de production de neutrons évolue de la même façon à partir d'une dizaine de microsecondes. Cette constance en taux de réaction s'explique par le fait que pour tous les matériaux mentionnés, la loi typique en $1/V$ de la section efficace d'absorption [By94] apparaît à relativement haute énergie (en dessous de $2\,keV$, tous les matériaux cités suivent cette loi), donc à faible temps de ralentissement. L'évolution en $1/V$ de la section efficace d'absorption compense la chute de flux en fonction du temps, ce qui explique les faibles variations des taux d'absorption.

Les taux de réaction dans la bague de maintien de l'ensemble de détection montrent un pic aux instants $t = 6\,\mu s$ et $t = 9\,\mu s$ respectivement pour les simulations dans le graphite et le Téflon. Au-delà de ces pics, on observe dans les deux cas une légère remontée. Ce fait est intéressant car l'étude des spectres de bruit de fond expérimentaux (cf figure 5.9 et 5.12) met en évidence une évolution similaire.

Enfin, les spectres de capture radiative relatifs au cadmium sont marqués par deux grandes remontées d'origine identique vers $t = 11\,\mu s$ pour les simulations dans le graphite et vers $t = 15\,\mu s$ dans le Téflon. Cette évolution était prévisible car la section efficace d'absorption du cadmium est faible au-delà de $0.2\,eV$ puis augmente considérablement en dessous de cette énergie, rendant le cadmium "opaque" aux neutrons.

5.2.3 Temps de référence de la simulation

Il est maintenant nécessaire de définir un temps de référence des temps de ralentissement simulés. La définition du temps de référence expérimental τ_0 a déjà été réalisée. Celle du temps de référence simulé doit alors nécessairement s'appuyer sur cette définition afin de pouvoir les comparer directement.

A l'aide des taux de réaction (n,γ) extraits de la simulation, nous avons pu mettre en évidence

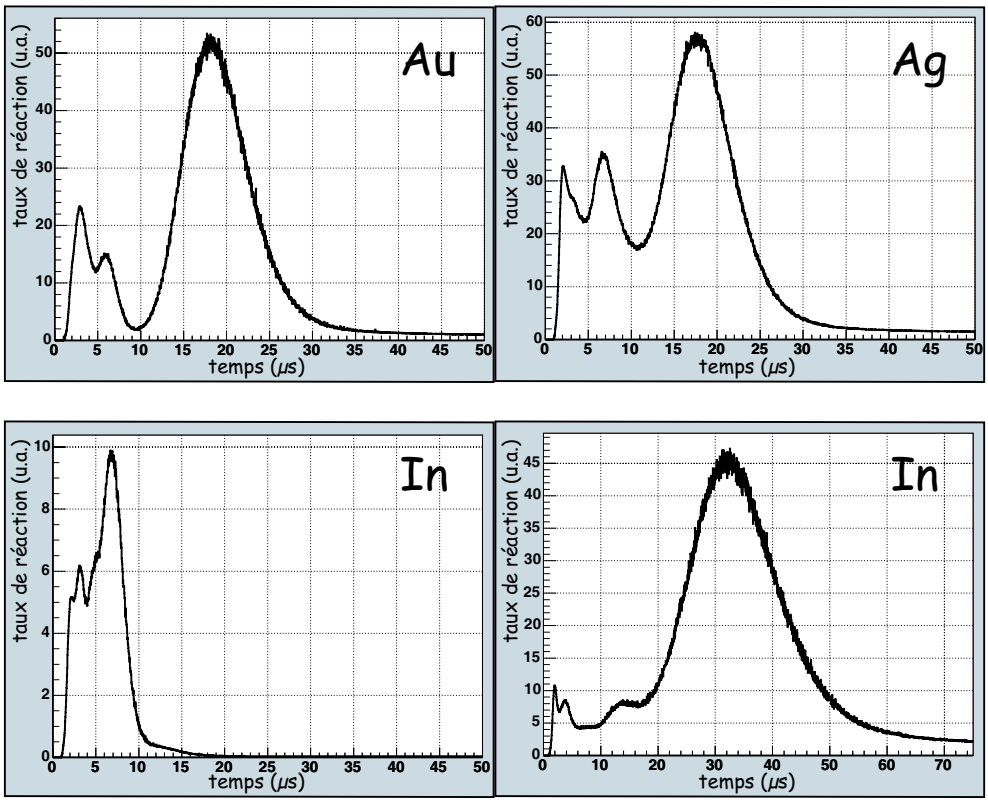


FIG. 5.21 – *Taux de réaction des différentes cibles simulés dans le massif de Téflon.*

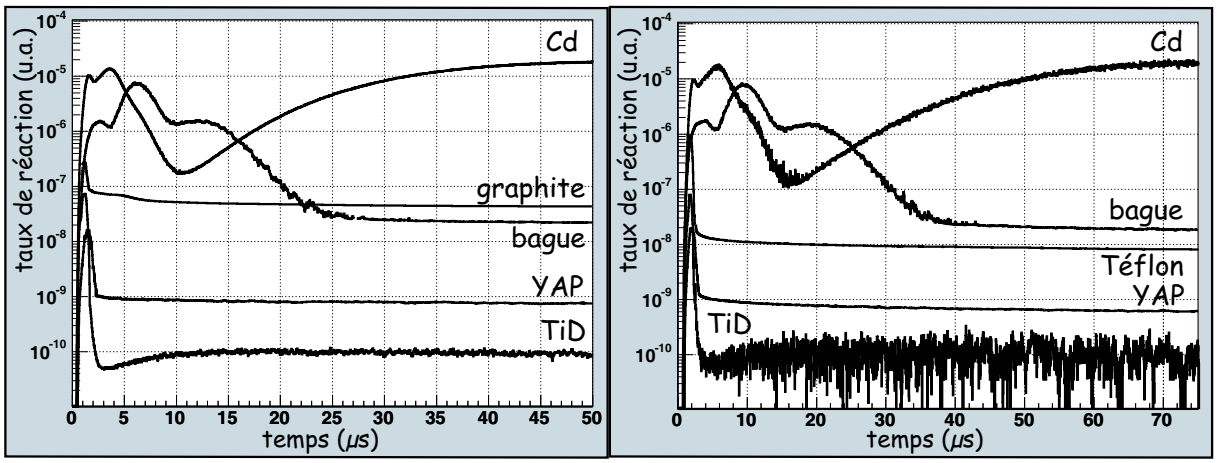


FIG. 5.22 – *Taux de réaction simulés des principaux matériaux pour le cas des massif de graphite (à gauche) et de Téflon (à droite).*

un taux de réaction qui se superpose parfaitement au “flash” gamma observé expérimentalement. En effet, le taux de capture à l’intérieur même de la cible de *TiD* a des caractéristiques identiques à l’impulsion de neutrons expérimentale. Nous pouvons vérifier ce fait en observant la figure 5.23 qui représente les taux de réaction (n,γ) simulés dans les différents matériaux qui entrent dans la simulation numérique réalisée dans le massif de graphite. La distribution en temps expérimentale de la source de neutrons y est superposée.

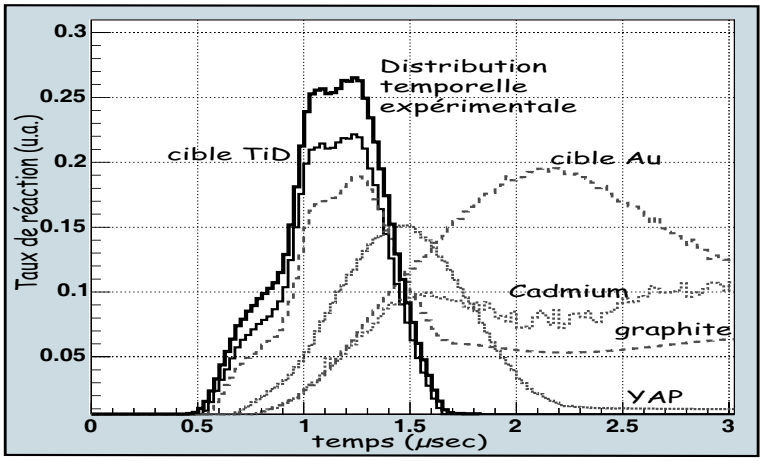


FIG. 5.23 – *Contributions renormalisées issues de la simulation numérique dont sont extraites les principales sources de gammas superposées à la courbe en traits gras qui représente le spectre temporel de l’impulsion GENEPI tel qu’il a été introduit dans le calcul numérique.*

Nous observons clairement sur cette figure que la seule contribution extraite du calcul MCNP

qui semble correspondre à l'impulsion GENEPI est le taux de réaction (n,γ) dans la cible TiD. Les caractéristiques de cette distribution (valeur moyenne et écart-type) sont données par :

$$\langle t \rangle = 1.132\,\mu s\,;\;\; \sigma_{\langle t \rangle} = 0.228\,\mu s \tag{5.15}$$

tandis que ces mêmes grandeurs associées à l'impulsion GENEPI sont :

$$\langle t \rangle = 1.129\,\mu s\,;\;\; \sigma_{\langle t \rangle} = 0.226\,\mu s \tag{5.16}$$

L'écart sur la valeur moyenne étant de l'ordre de 0.3% tandis que celui sur l'écart-type est de 0.9%. Nous pouvons conclure que le flash gamma expérimental observé lors d'une acquisition sans $VETO$ est parfaitement bien reproduit par le taux de capture (n,γ) dans la cible TiD de production de neutrons. En fait, ce résultat était prévisible car la distribution temporelle de la source de neutron dans la simulation est définie par rapport à la distribution expérimentale. La source de neutron se trouvant dans la cible TiD de production de neutrons et celle-ci absorbant peu, le taux de réaction dans la cible est non négligeable lorsque le flux y est très important, c'est-à-dire pendant l'impulsion.

Nous avons maintenant la possibilité d'extraire un temps initial τ_0 expérimental et simulé qui sera notre référence temporelle pour le calcul des temps de ralentissement. A titre d'exemple, nous montrons figure 5.24 la superposition des "flashs" gamma expérimental et simulé que nous avons fait coïncider par rapport à la valeur moyenne des distributions.

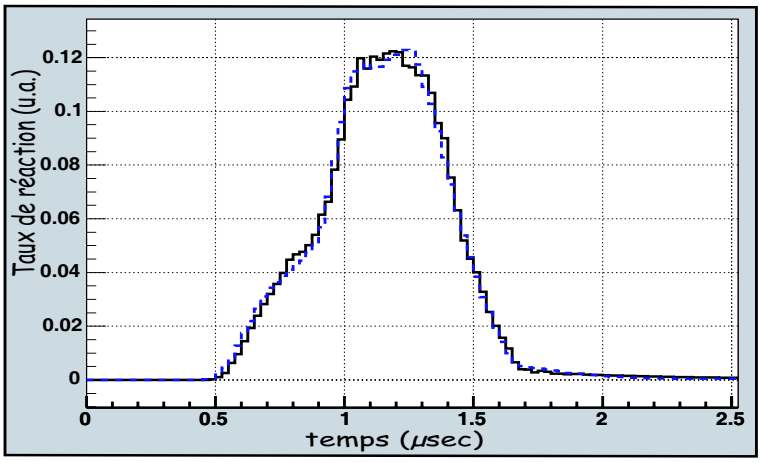


FIG. 5.24 – *Superposition de l'impulsion GENEPI expérimentale (trait plein) avec le taux de réaction simulé (n,γ) dans la cible TID (histogramme en pointillé).*

La question de la stabilité du temps de référence simulé ne se pose pas car le même fichier source, c'est à dire la même distribution temporelle de l'impulsion de neutrons, est utilisé pour toutes les simulations dans un massif. Le temps de référence simulé sera donc identique d'une simulation nu-

mérique à une autre.

Chapitre 6

Extraction des sections efficaces

6.1 Reconstitution des spectres expérimentaux par simulations

6.1.1 Méthode

Nous allons ici décrire notre méthode visant à reconstituer les spectres expérimentaux à partir des taux de réaction (n,γ) simulés et extraits des différents matériaux. Nous avons démontré au chapitre 3 la proportionnalité entre le taux de réaction (n,γ) dans un matériau et le taux de gammas détecté par le scintillateur *YAP* pour des temps supérieurs à quelques μs. Ceci étant posé, le taux de comptage expérimental $\tau_e(t_i)$ est une combinaison linéaire des taux de réaction (n,γ) dans les différents matériaux pris en compte dans les simulations numériques. Nous appelons ces derniers $\tau_s^m(t_i)$ où l'indice m est relatif au matériau considéré. m est compris entre 1 et M, nombre de matériaux utilisés dans la simulation numérique pour reconstruire un spectre expérimental.

Nous pouvons alors exprimer analytiquement la combinaison linéaire, exprimant le taux de comptage expérimental mesuré $\tau_e(t_i)$ à l'instant t_i en fonction des contributions individuelles :

$$\tau_e(t_i) = \sum_{m=1}^{M} [\alpha_m \tau_s^m(t_i)] \tag{6.1}$$

Les constantes de proportionnalité α_m sont indépendantes du temps car elles représentent les efficacités individuelles de détection relatives à un matériau numéro m. Les termes de la somme doivent être positifs et inférieurs au terme $\tau_e(t_i)$.

Nous pouvons alors construire une fonction $f(\{\alpha_m\})$ de type χ^2 qui dépend uniquement des coefficients et qui représente l'écart absolu entre l'expérience et la simulation numérique :

$$f(\{\alpha_m\}) = \sum_{t_i} \left(\tau_e(t_i) - \sum_{m=1}^{M} [\alpha_m \tau_s^m(t_i)] \right)^2 \tag{6.2}$$

Le critère de minimisation de la fonction f s'énonce de la manière suivante :

$$\frac{\partial f}{\partial \alpha_m} = 0 \; pour\, tout\, m \leq M \tag{6.3}$$

Il conduit aux solutions induisant l'écart minimum entre l'expérience et la simulation numérique. En d'autres termes, la résolution de ce système fournira la réponse en temps du détecteur issue du traitement numérique. Nous allons maintenant imposer une convention d'écriture qui s'énonce de la manière suivante :

- soit $\tau_e(t_i)$ et $\tau_s^m(t_i)$ le taux de réaction expérimental et simulé parmi les M matériaux de la simulation numérique. Nous appelons alors $\left[\tau_e \tau_s^j\right] = \sum_{t_i} \left(\tau_e(t_i).\tau_s^j(t_i)\right)$ et $\left[\tau_s^k \tau_s^j\right] = \sum_{t_i} \left(\tau_s^k(t_i).\tau_s^j(t_i)\right)$.

Avec cette convention, le développement du critère de minimisation de la fonction $f(\{\alpha_m\})$ conduit à un système matriciel linéaire de dimension $M \times M$:

$$\begin{pmatrix} \left[\tau_s^0 \tau_s^0\right] & \left[\tau_s^1 \tau_s^0\right] & . & . & . & . \\ \left[\tau_s^0 \tau_s^1\right] & \left[\tau_s^1 \tau_s^1\right] & . & . & . & . \\ . & . & . & . & . & . \\ . & . & . & . & . & . \\ . & . & . & . & \left[\tau_s^{M-1} \tau_s^{M-1}\right] & \left[\tau_s^M \tau_s^{M-1}\right] \\ . & . & . & . & \left[\tau_s^{M-1} \tau_s^M\right] & \left[\tau_s^M \tau_s^M\right] \end{pmatrix} \begin{pmatrix} \alpha_0 \\ \alpha_1 \\ . \\ . \\ \alpha_{M-1} \\ \alpha_M \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} \left[\tau_e \tau_s^0\right] \\ \left[\tau_e \tau_s^1\right] \\ . \\ . \\ \left[\tau_e \tau_s^{M-1}\right] \\ \left[\tau_e \tau_s^M\right] \end{pmatrix} \tag{6.4}$$

que nous pouvons symboliser par l'équation matricielle :

$$T\,X = Y \tag{6.5}$$

La matrice T est connue et se déduit d'un traitement informatique sur les spectres simulés. Le vecteur Y se déduit de la même manière incluant de plus le taux de réaction expérimental. L'inconnue est donc le vecteur X qui contient les coefficients de normalisation des contributions individuelles simulées. Ce vecteur solution s'exprime à l'aide de la matrice inverse de T :

$$X = T^{-1} Y \tag{6.6}$$

Ce type d'équation peut se résoudre avec un logiciel de traitement matriciel [Br97]. Notons par ailleurs que nous avons la possibilité de définir nous-mêmes les régions temporelles des spectres que nous cherchons à faire coïncider en jouant sur les bornes temporelles de la somme dans l'équation (6.2).

6.1.2 Application au bruit de fond

Afin de tester l'efficacité de cette méthode, nous l'avons appliquée au bruit de fond. C'est-à-dire que le système matriciel a été résolu en considérant un spectre expérimental sans cible résonnante et l'ensemble des taux de réaction simulés :

- Le scintillateur *YAP*.
- Le graphite ou le Téflon.
- La protection Cadmium entourant le massif de graphite ou de Téflon.
- La bague en dural contenant 100 *ppm* de tungstène.

La cible *TiD* de production de neutrons a une contribution négligeable sur le bruit de fond, elle n'est prise en compte que pour la détermination de l'instant initial de création des neutrons.

L'application du programme de minimisation, avec une matrice de dimension 4, est réalisée à partir de $t = 4\,\mu s$ pour les mesures dans le massif de graphite et $t = 6\,\mu s$ pour le massif de Téflon. Par rapport à la fin de l'impulsion de neutrons, ces temps correspondent respectivement à $t = 2.3\,\mu s$ et à $t = 3.8\,\mu s$. Ces temps nous assurent qu'aucun neutron d'énergie supérieure au *keV* n'intervient dans le traitement.

Les reconstitutions des spectres bruit de fond dans le massif de graphite puis de Téflon sont représentées figure 6.1.

Nous observons un très bon accord entre les expériences et les reconstitutions simulées, ce qui tend à montrer que la méthode de minimisation est efficace. Les coefficients associés aux contributions individuelles simulées sont par ailleurs cohérents. Il apparaît que la contribution principale au bruit de fond est le scintillateur *YAP*, ce qui semble logique car l'efficacité géométrique de détection des gammas est dans ce cas égale à un. Le taux de réaction dans la bague de serrage en dural induit une contribution dans le spectre bruit de fond au niveau des résonances du tungstène et reproduit parfaitement les deux pics en temps expérimentaux, dans le graphite et le Téflon. L'importance du cadmium apparaît alors au niveau des remontées des taux de réaction expérimentaux vers les temps longs. Enfin, l'importance des massifs ralentisseurs dans le bruit de fond expérimental diffère dans les deux reconstitutions. En effet, si l'importance observée du graphite est faible, celle du Téflon n'apparaît pas. Nous avons remarqué que les spectres simulés des taux de réaction (n,γ) dans le *YAP* et le Téflon se superposent parfaitement. Dans ces conditions, le programme de minimisation, qui n'est qu'un traitement mathématique, est inapte à dissocier l'un et l'autre et sa sensibilité à une faible variation d'un de ces deux taux de réaction est très élevée. C'est pourquoi le programme de minimisation a conduit, dans le cas du Téflon, à un coefficient relatif au taux de réaction dans le massif négatif. Nous l'avons donc imposé à zéro et ré-exécuté le programme avec les trois composantes restantes. Cependant, la grande similitude entre les contributions du *YAP* et du Téflon implique une reconstitution du bruit de fond expérimental identique, quels que soient les coefficients relatifs de ces deux contributions.

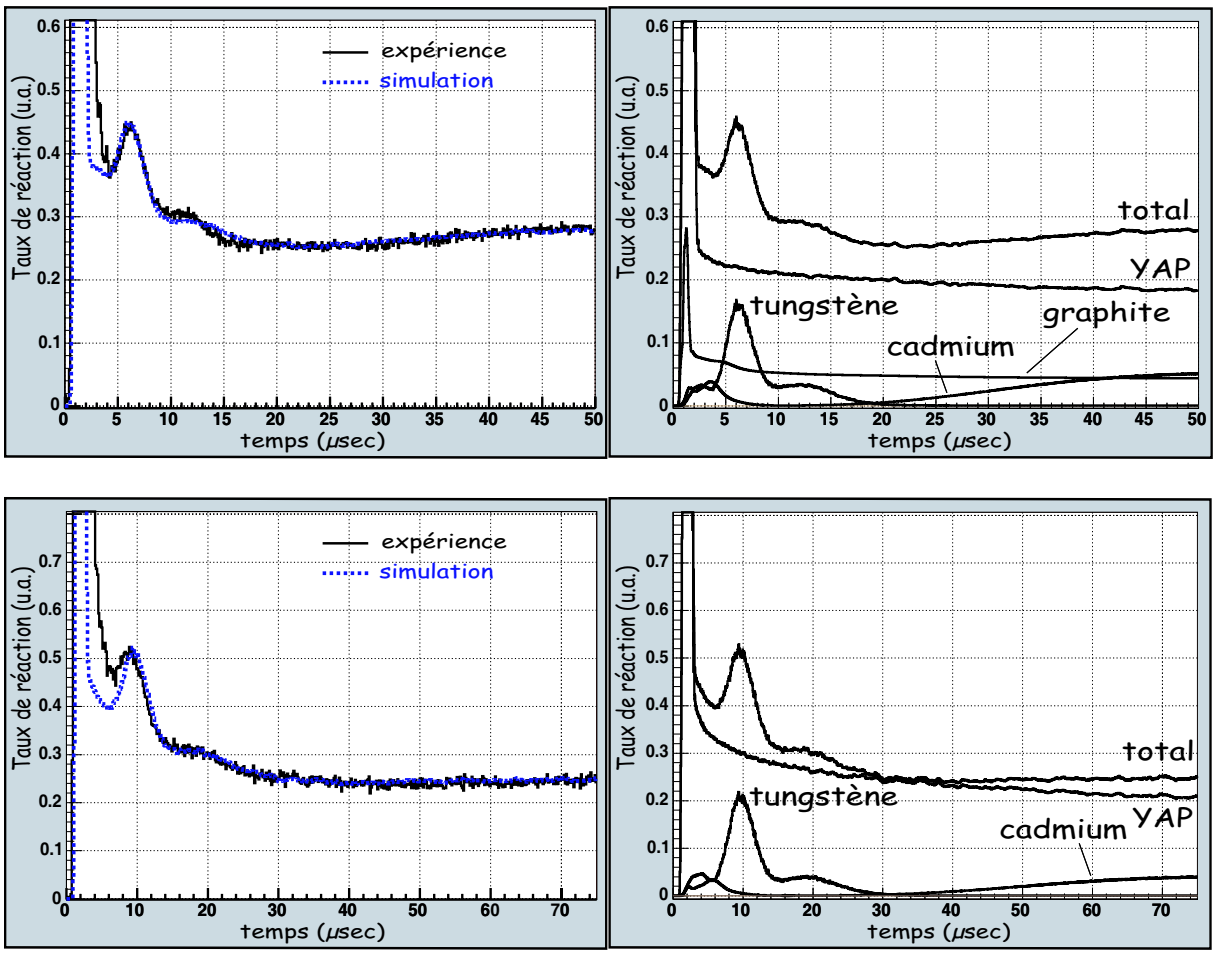


FIG. 6.1 – *Taux de comptage de bruit de fond expérimentaux dans le massif de graphite (en haut à gauche) et de Téflon (en bas à gauche) avec les reconstitutions simulées. Les contributions individuelles à la simulation numérique sont représentées à droite.*

6.1.3 Application aux spectres avec cible : méthode 1

Une méthode pour reconstituer les spectres avec cibles résonnantes consiste à nous appuyer sur le paragraphe précédent et à conserver les coefficients individuels des contributions du bruit de fond. L'argument justificatif est basé sur le fait que les coefficients calculés représentent les efficacités totales de détection pour les matériaux concernés. Les émissions gamma d'un matériau sont les mêmes avec ou sans cible, donc l'efficacité se conserve. Il est important de noter que les taux de réaction dans l'environnement simulés doivent être pris pour des simulations numériques incluant la présence de la cible résonnante. En effet, les spectres temporels d'un matériau dépendent du flux dans ce matériau. Or, celui-ci peut être différent selon la présence ou non de la cible. Autour de la résonance en temps d'une cible, de nombreux neutrons sont absorbés induisant une chute de flux à proximité de la cible résonnante. Si pour des matériaux lointains, tel que le cadmium, l'influence de la cible est nulle, pour des matériaux situés à proximité de la cible, tel que le scintillateur, cette dépression du flux est

importante. En ce qui concerne le massif ralentisseur, une précaution s'impose. En effet, les taux de réaction (n,γ) dans le graphite sont extraits d'une grande quantité de matière. Or, toute cette matière ne sera pas sensible de la même manière à cette dépression du flux, ce qui introduit un biais pour la contribution du graphite au bruit de fond.

Pour tenter d'évaluer ce biais, il convient de déterminer un ordre de grandeur de la distance d par rapport à la cible au delà de laquelle cet effet est négligeable. Deux simulations numériques dans le massif de graphite avec une cible d'or puis sans cible ont été réalisées pour des petites sphères de graphite à des distances croissantes par rapport à la position de la cible d'or (cf. figure 6.2). Les flux $\Phi(t)$ dans ces sphères ont été extraits et nous avons calculé la grandeur $1-\frac{\Phi_a(t)}{\Phi_s(t)}$ (l'indice a (resp. s) indique la présence de la cible (resp. l'absence)) représentée figure 6.3 en fonction du temps pour les différentes sphères. Le flux, pour ces deux simulations, dans le cylindre de graphite entourant le système de détection a aussi été extrait et l'écart relatif entre le flux avec et sans cible a été calculé de la même façon.

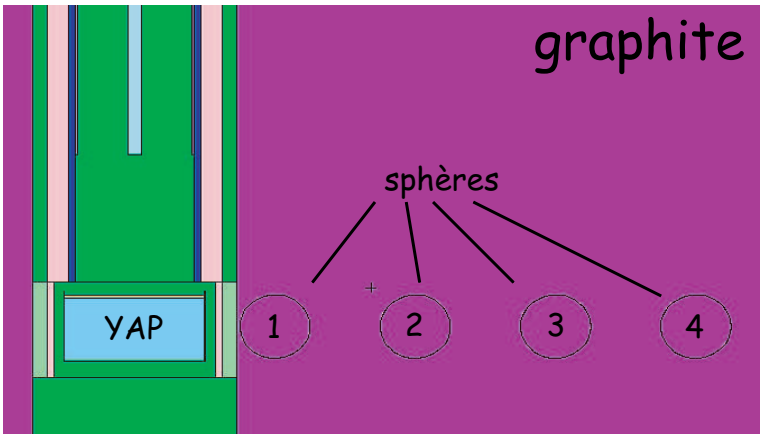


FIG. 6.2 – *Géométrie de la simulation MCNP contenant des sphères utilisées pour la mise en évidence de l'auto-absorption. La sphère n°1 est à 2 cm du centre du YAP et les sphères voisines sont également distantes de 2 cm.*

L'étude de ces écarts relatifs montre que dans le cylindre, la présence de la cible induit une variation du flux de 0.2% au maximum pour un temps de ralentissement de $20\,\mu s$. Les écart relatifs dans les petites sphères ont des fluctuations statistiques plus élevées en raison de leur faible volume. Néanmoins, pour la sphère $n°1$, qui est la plus proche de la cible résonnante, un ajustement par une constante entre $15\,\mu s$ et $30\,\mu s$ conduit à un écart moyen de $(0.4\pm0.6)\%$. Cet écart moyen calculé de la même manière sur les différentes sphères est égal à $(1.1\pm0.6)\%$ pour la sphère $n°2$. La troisième sphère conduit à $(0.3\pm0.6)\%$ et la quatrième donne $(0.1\pm0.7)\%$. L'ensemble de ces grandeurs montre d'une part que la dépression du flux est peu dépendante de la distance par rapport à la cible résonnante et d'autre part, que c'est un phénomène complètement négligeable pour le massif ralentisseur. En conclusion, les reconstitutions des spectres expérimentaux par la simulation numérique

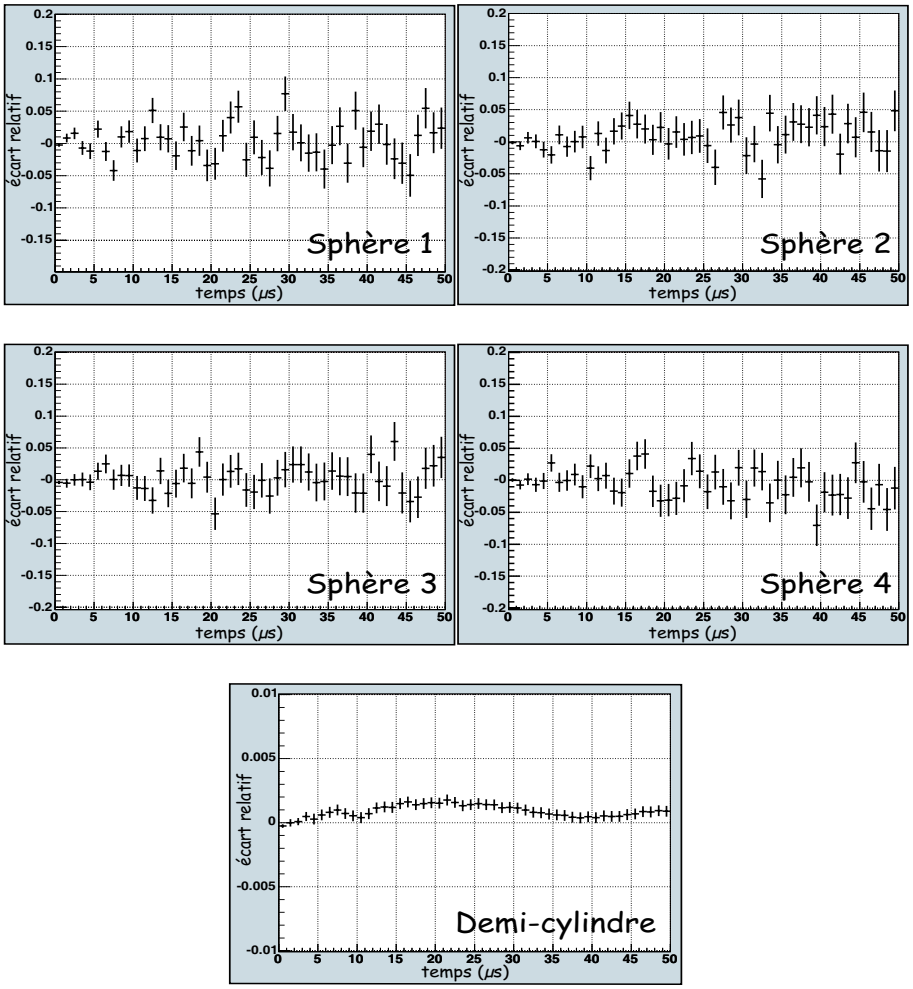


FIG. 6.3 – *Écarts relatifs en fonction du temps entre les flux avec et sans cible d'or dans les différentes petites sphères utilisées dans le cylindre entourant le système de détection.*

prennent en compte le phénomène de dépression du flux dû à la cible résonnante par l'intermédiaire du scintillateur uniquement.

La reconstitution des spectre expérimentaux en conservant les bruits de fond simulés déterminés dans le paragraphe précédent sont présentés figure 6.4 pour le graphite et figure 6.5 pour les mesures dans le massif de Téflon.

Les spectres obtenus dans le graphite et le Téflon sont relativement bien reproduits dans la plage temporelle utilisée dans le traitement informatique de minimisation. Ceci dit, un très faible écart entre les taux de réaction aux temps courts précédant les résonances est mis en évidence pour les reconstructions relatives aux cibles d'argent, d'or et d'indium. L'origine de cet écart n'a pas été identifié. On observe par ailleurs un décalage entre les instants de résonance simulé et expérimental de l'indium pour les mesures dans le massif de graphite. Ce décalage n'apparaît pas sur les autres spectres. Il est alors nécessaire d'étudier l'impact de ce décalage sur la section efficace mesurée du carbone, nous discuterons de ce fait par la suite.

6.1.4 Application aux spectres avec cible : méthode 2

La deuxième méthode consiste à considérer que les coefficients du bruit de fond calculés ne sont pas forcément identiques avec ou sans cible. Le programme de minimisation recalcule alors ces coefficients par la résolution du système matriciel de dimension 5.

Les nouvelles reconstitutions sont explicitées figure 6.6 pour les expériences dans le massif de graphite et figure 6.7 pour celui de Téflon.

Avec cette méthode, les taux de réaction simulés et expérimentaux pour les cibles d'or, d'argent et de molybdène se superposent parfaitement bien et l'écart aux temps courts entre la simulation et l'expérience n'apparaît plus. Néanmoins, le décalage des instants de résonance de la simulation numérique et de l'expérience pour les mesures dans le massif de graphite avec une cible d'indium est toujours présent.

6.2 Reconstitution des résonances simulées à partir des spectres expérimentaux

6.2.1 Méthode

Nous allons ici chercher à reproduire les taux de réaction simulés dans les cibles résonnantes uniquement à l'aide des spectres expérimentaux par soustraction de bruit de fond.

La méthode classique pour construire le spectre expérimental relatif au taux de réaction (n,γ) dans la cible résonnante consiste à soustraire le bruit de fond expérimental d'une acquisition sans cible au

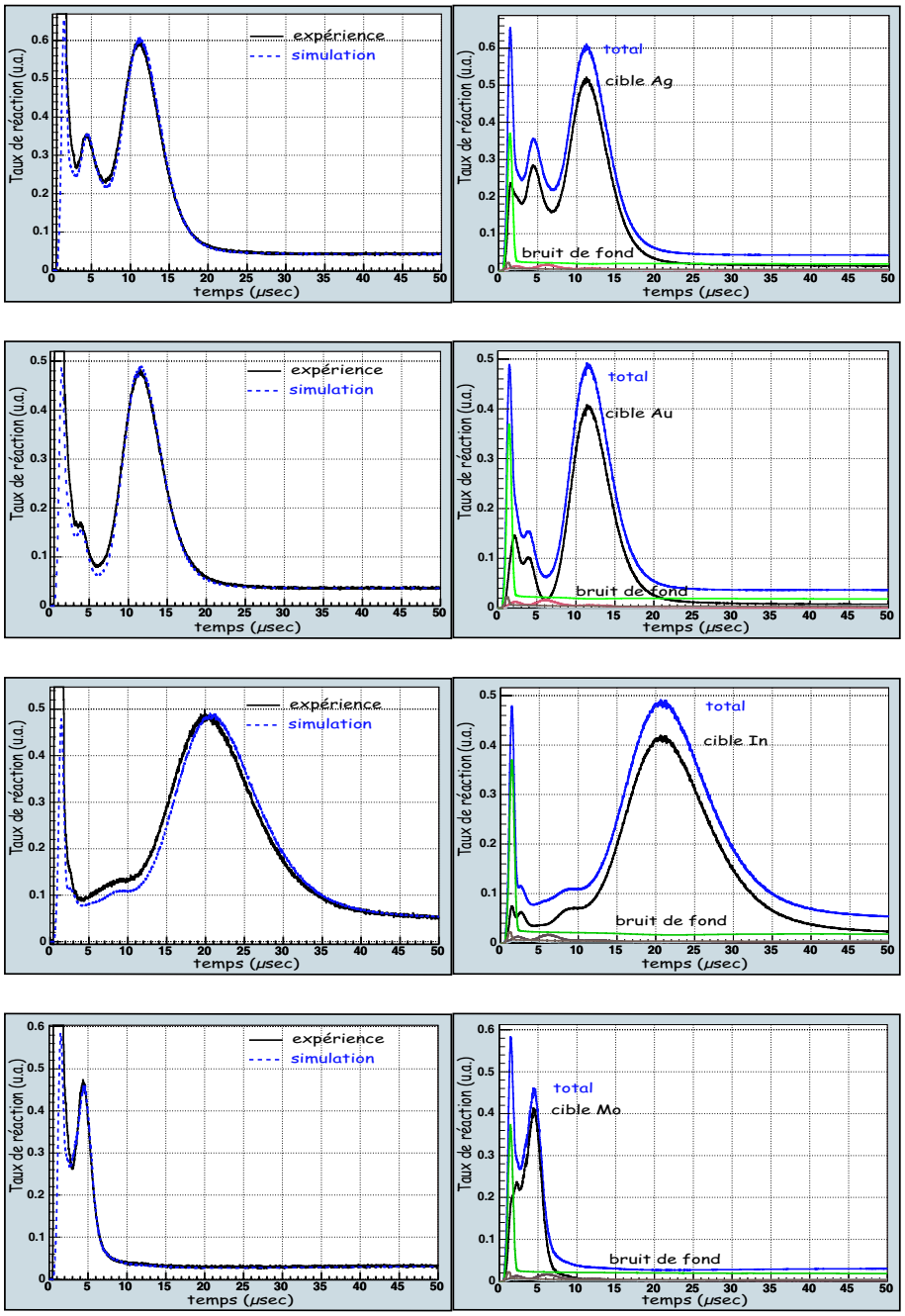


FIG. 6.4 – *Reconstitution des spectres mesurés dans le massif de graphite avec les cibles d'argent (en haut), d'or (deuxième ligne), d'indium (troisième ligne) et de molybdène (en bas). La colonne de droite montre les contributions de la reconstitution simulée, le bruit de fond étant imposé tel qu'il a été déterminé dans le paragraphe 6.1.2.*

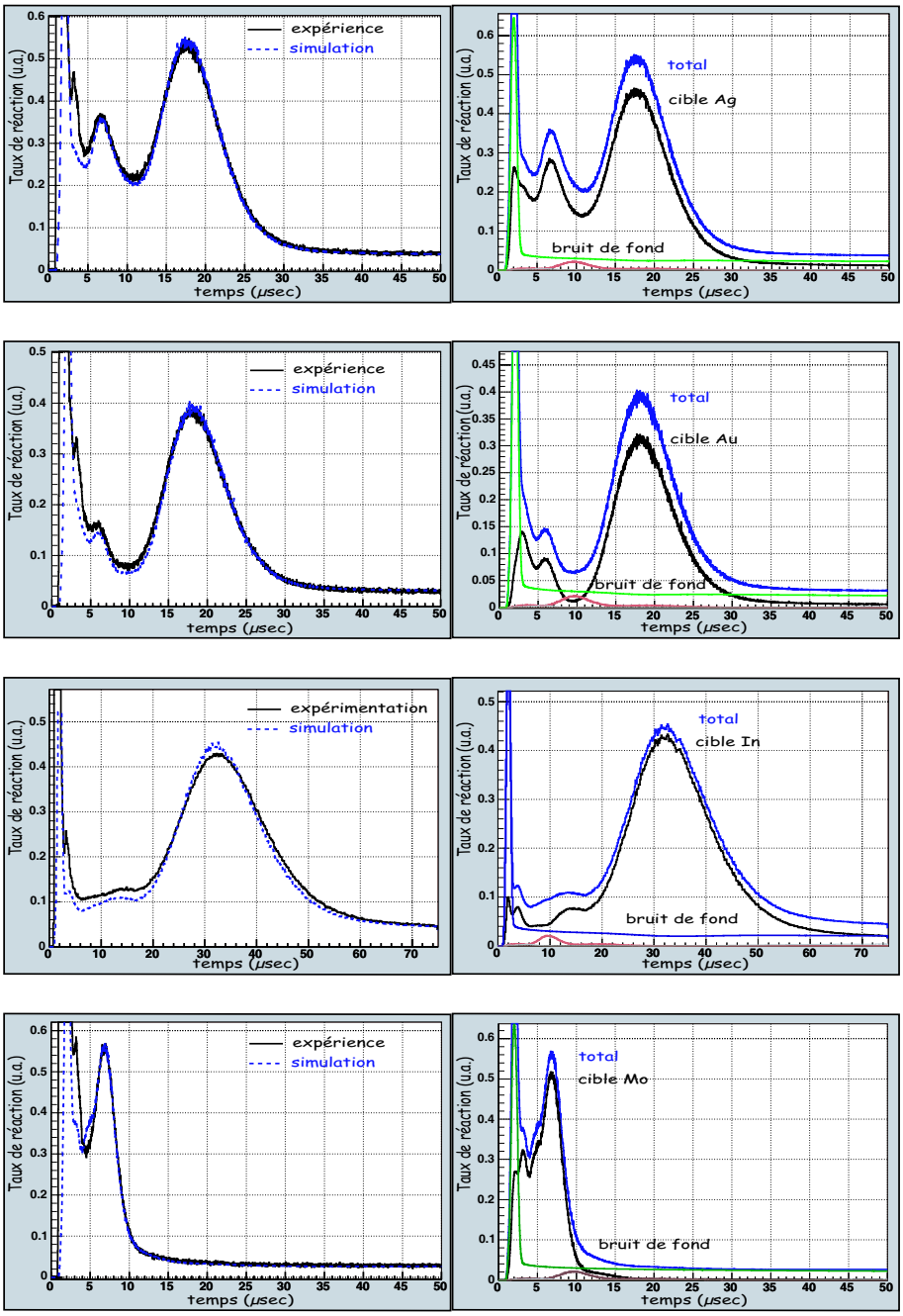


FIG. 6.5 – *Reconstitution des spectres mesurés dans le massif de Téflon avec les cibles d'argent (en haut), d'or (deuxième ligne), d'indium (troisième ligne) et de molybdène (en bas). La colonne de droite montre les contributions de la reconstitution simulée, le bruit de fond étant imposé tel qu'il a été déterminé dans le paragraphe 6.1.2.*

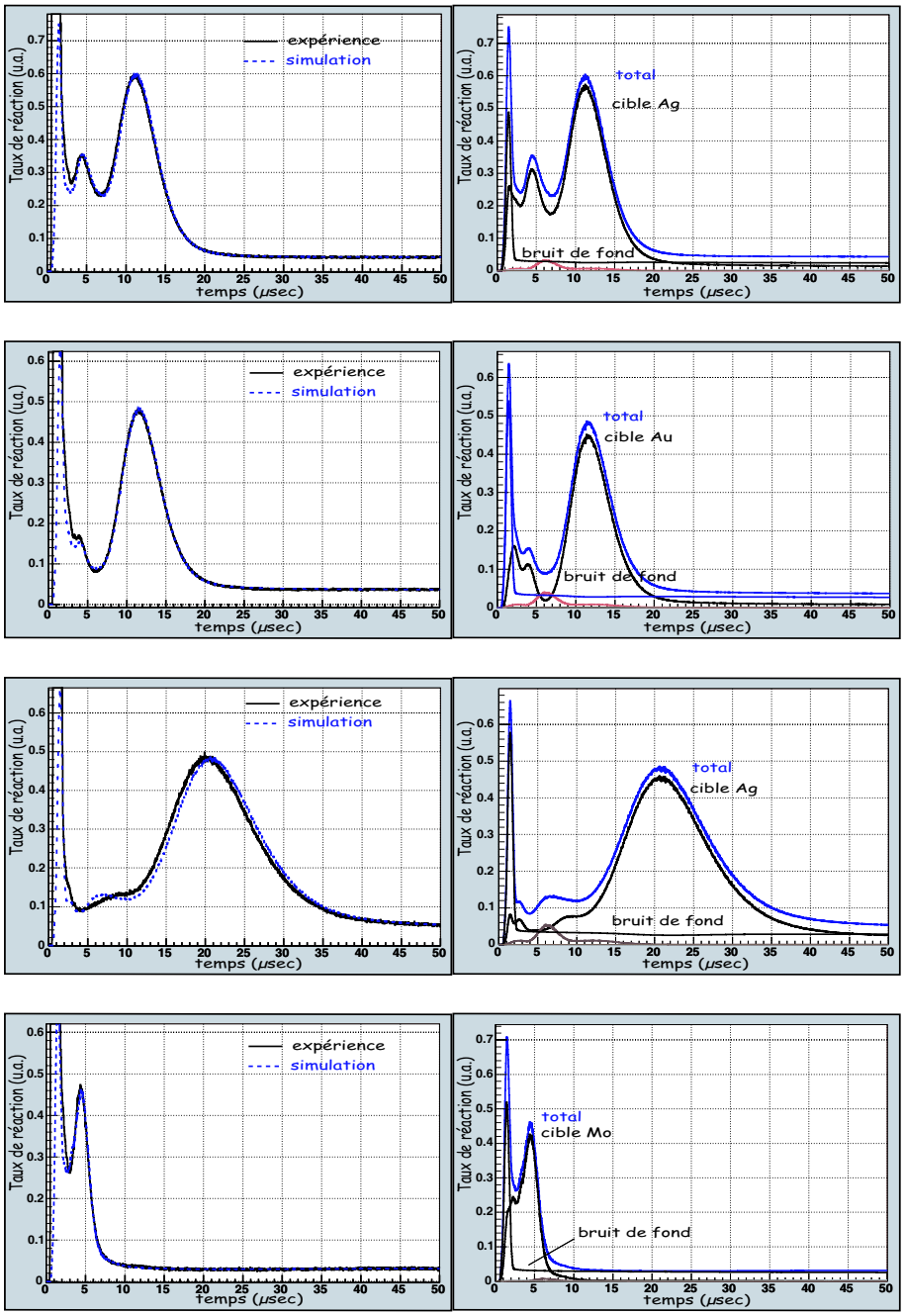


FIG. 6.6 – *Reconstitution des spectres mesurés dans le massif de graphite avec les cibles d'argent (en haut), d'or (deuxième ligne), d'indium (troisième ligne) et de molybdène (en bas). La colonne de droite montre les contributions de la reconstitution simulée, le bruit de fond est déterminé par la procédure de minimisation sans contrainte sur les coefficients.*

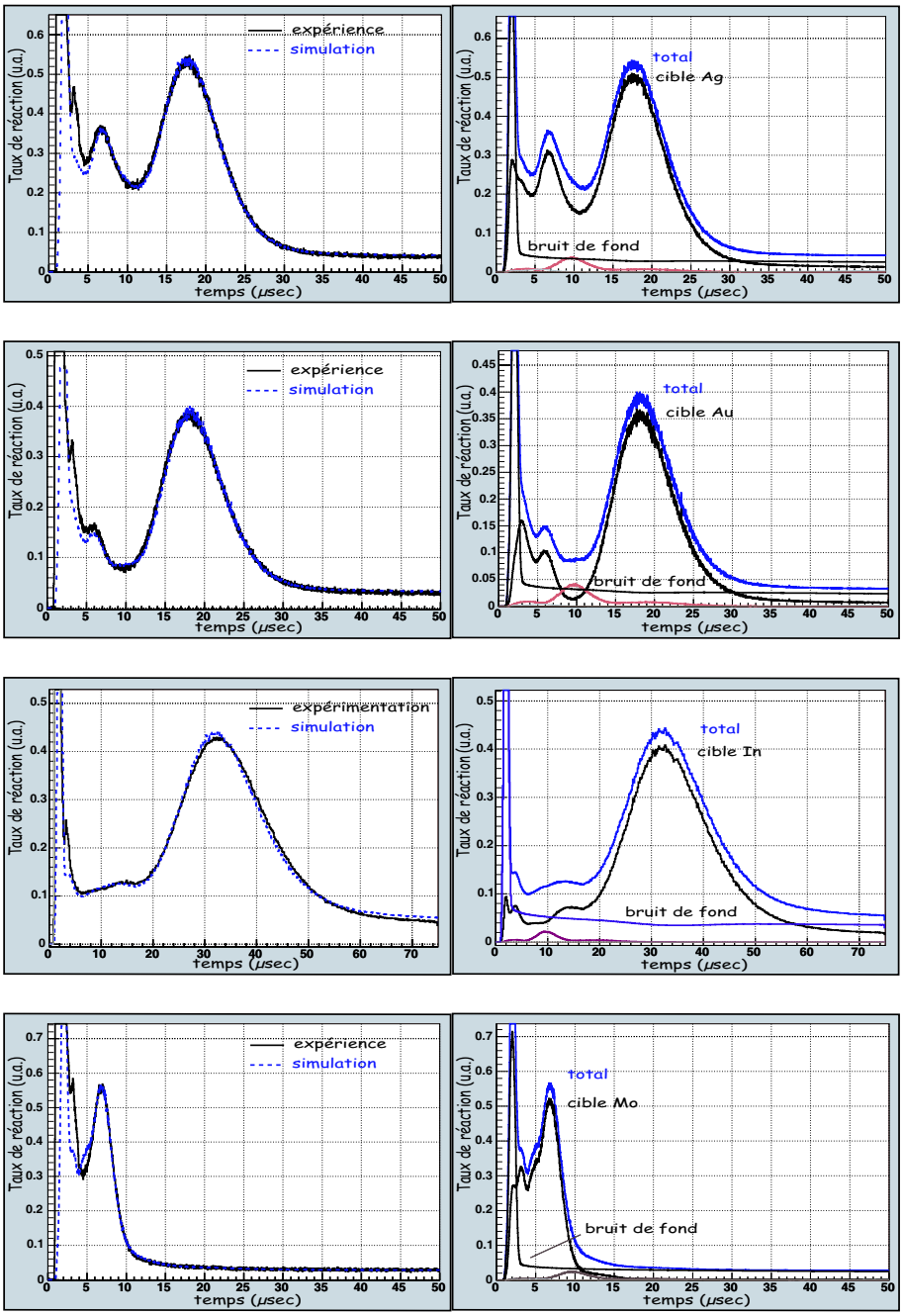


FIG. 6.7 – *Reconstitution des spectres mesurés dans le massif de Téflon avec les cibles d'argent (en haut), d'or (deuxième ligne), d'indium (troisième ligne) et de molybdène (en bas). La colonne de droite montre les contributions de la reconstitution simulée, le bruit de fond est déterminé par la procédure de minimisation sans contrainte sur les coefficients.*

taux de réaction total lors d'une mesure avec cible. La difficulté réside alors dans la normalisation des spectres. Nous allons donc développer deux approches différentes.

Ces deux méthodes diffèrent dans la détermination des coefficients α et β définis tel que :

$$\tau_s(t_i) = \alpha\tau_e(t_i) - \beta Bd\, f_v(t_i) \tag{6.7}$$

Cette équation exprime simplement le fait que le taux de réaction simulé $\tau_s(t_i)$ (au canal temps t_i) dans la cible résonnante est une combinaison linéaire d'une expérience avec cible $\tau_e(t_i)$ et du bruit de fond $Bd\, f_v(t_i)$. L'indice v illustre le fait que la correction de bruit de fond doit être effectuée avec le bruit de fond réel d'une acquisition avec cible, c'est à dire composé de tous les gammas détectés qui ne proviennent pas de la cible résonnante. Ce bruit de fond diffère, à cause de la dépression du flux due à la cible résonnante, du bruit de fond $Bd\, f(t)$ mesuré sans cible. Nous devons alors corriger le spectre de bruit de fond expérimental. Si nous appelons $Bd\, f_v(t_i)$ le bruit de fond réel pendant une acquisition avec cible et $Bd\, f(t_i)$ le bruit de fond effectivement mesuré (sans cible), alors nous pouvons exprimer la combinaison linéaire en fonction du rapport $R(t_i) = \frac{Bd\, f_v(t_i)}{Bd\, f(t_i)}$:

$$\tau_s(t_i) = \alpha\tau_e(t_i) - \beta R(t_{in}) Bd\, f(t_i) \tag{6.8}$$

La fonction $Bd\, f(t_i)$ étant simplement le taux de réaction mesuré sans cible, il reste alors à déterminer la fonction $R(t_i)$. Dans le paragraphe 6.1.2, nous avons reconstitué le bruit de fond expérimental avec les contributions individuelles simulées. Cela va nous permettre d'exprimer la fonction $R(t_i)$ définie comme le rapport entre le bruit de fond simulé sans cible à celui avec cible (cf. figure 6.8 pour la représentation de cette fonction dans le massif de graphite, les courbes dans le Téflon sont similaires)

Nous avons défini maintenant comment reconstruire le taux de réaction dans une cible résonnante en fonction des spectres expérimentaux. Il reste alors à déterminer les coefficients de normalisation α et β. Nous allons développer deux méthodes de normalisation, une basée sur le nombre de protons détectés par le détecteur Silicium, puis l'autre, sur un moindre carré entre l'expérience et la simulation numérique.

6.2.2 Normalisation par le détecteur Si

La première approche consiste à normaliser par le nombre de neutrons émis par la source. Le détecteur Silicium nous permet d'obtenir le nombre de protons générés dans la cible TiD et ayant été détectés. Ce nombre est proportionnel au nombre de protons ayant été généré, lui même proportionnel au nombre de neutrons créés durant l'acquisition (cf. Chapitre 2). La méthode s'énonce ainsi :

- Le taux de comptage total d'une mesure avec cible résonnante est normalisé par le nombre de protons détectés dans le Silicium pendant cette mesure.

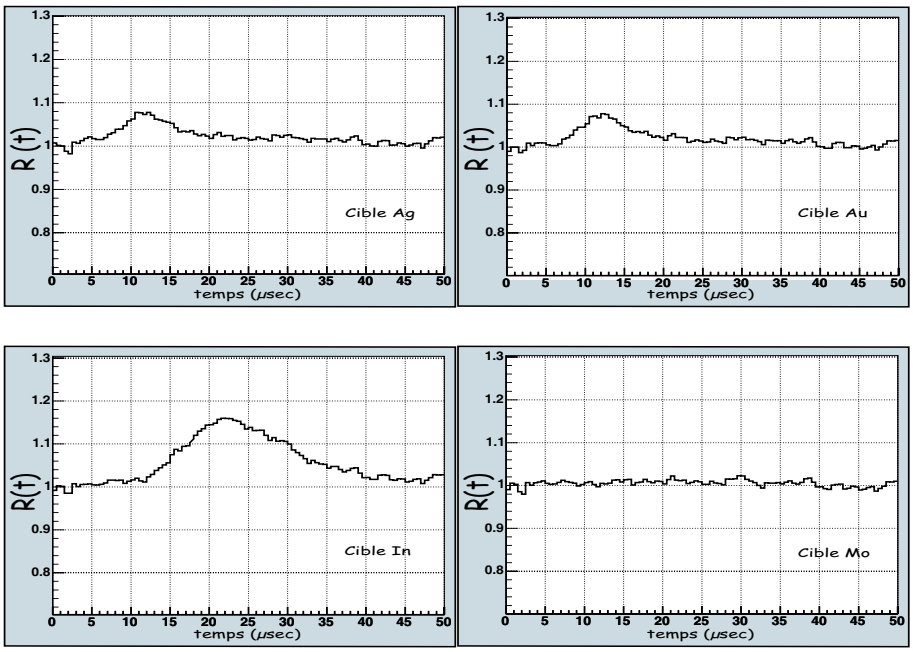


FIG. 6.8 – *Fonctions $R(t)$ déterminées par la simulation numérique pour les cibles d'argent, d'or, d'indium et de molybdène dans le graphite.*

- Le taux de réaction du bruit de fond est normalisé de la même manière puis multiplié par la fonction $R(t_i)$.
- Ces deux spectres sont soustraits afin d'obtenir le taux de comptage dans la cible uniquement.
- L'histogramme résultant est renormalisé par rapport au taux de comptage simulé de manière à obtenir l'écart minimum.

Représentons alors les taux de réaction expérimentaux reconstitués et simulés pour les différentes cibles utilisées dans le massif de graphite figure 6.9.

Les reconstitutions obtenues sont satisfaisantes. Néanmoins, l'écart aux temps faibles entre la simulation numérique et l'expérimentation pour les cibles d'argent, d'indium et d'or apparaît, comme pour les reconstitutions des spectres expérimentaux vues dans le paragraphe précédent.

Les spectres équivalents mesurés dans le massif de Téflon (cf figure 6.10) conduisent aux mêmes observations.

6.2.3 Normalisation par la méthode des moindres carrés

Il est possible de définir une autre méthode de normalisation indépendante du signal fourni par le Silicium. Cette seconde méthode de minimisation est de principe similaire à celle développée dans le paragraphe 6.1.1. Elle consiste à exprimer le taux de réaction simulé $\tau_s(t_i)$ à un instant associé au canal t_i comme une combinaison linéaire du taux de réaction expérimental $\tau_e(t_i)$ et du bruit de fond corrigé par l'auto-absorption $Bd\, f_v(t_i)$:

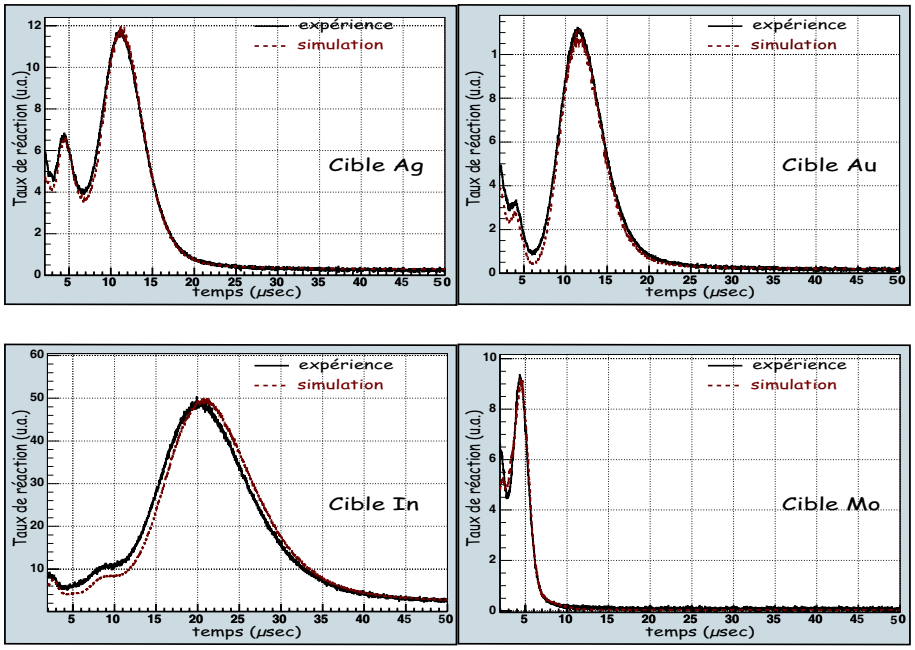


FIG. 6.9 – *Représentation des taux de réaction simulés (courbes pointillées) et expérimentaux obtenus par normalisation Silicium (courbes pleines) dans le massif de graphite.*

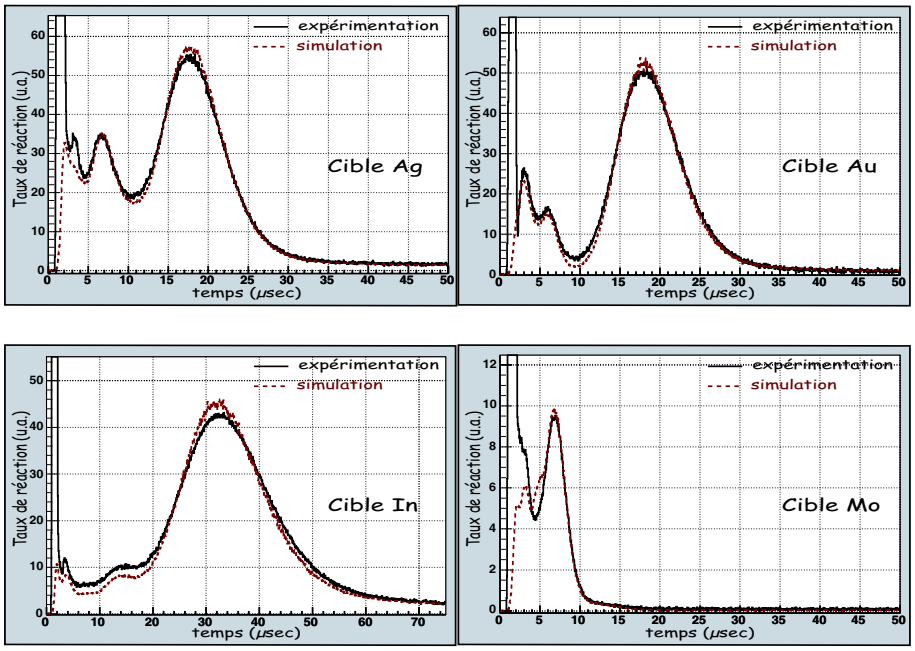


FIG. 6.10 – *Représentation des taux de réaction simulés (courbes pointillées) et expérimentaux obtenus par normalisation Silicium (courbes pleines) dans le massif de Téflon.*

$$\tau_s(t_i) = \alpha\tau_e(t_i) - \beta Bd\, f_v(t_i) \tag{6.9}$$

Il convient alors d'exprimer la fonction $f(\alpha,\beta)$ de type χ^2 qui illustre l'écart entre la simulation numérique et l'expérience telle que :

$$f(\alpha,\beta) = \sum_{t_i} (\tau_s(t_i) - \alpha\tau_e(t_i) - \beta Bd\, f_v(t_i))^2 \tag{6.10}$$

Le critère de minimisation de cette fonction conduit alors aux deux coefficients α et β qui rendent l'écart entre la simulation numérique et l'expérience minimal. Nous conservons les notations du paragraphe 6.1.1 en posant $[A.B] = \sum_{t_i}(A_i.B_i)$, où A_i et B_i sont les taux de réaction simulés ($\tau_s(t_i)$) ou expérimentaux ($\tau_e(t_i)$ ou $Bd\, f_v(t_i)$) à l'instant donné par le canal t_i. Nous obtenons alors une expression analytique donnant les coefficients α et β :

$$\alpha = \frac{[\tau_s.\tau_e]\,[Bd\,f.Bd\,f] - [\tau_s.Bd\,f]\,[\tau_e.Bd\,f]}{[\tau_e.\tau_e]\,[Bd\,f.Bd\,f] - [\tau_e.Bd\,f]\,[\tau_e.Bd\,f]} \tag{6.11}$$

$$\beta = \frac{\alpha\,[\tau_e.\tau_e] - [\tau_e.\tau_s]}{[\tau_e.Bd\,f]} \tag{6.12}$$

Ces coefficients ont été calculés pour toutes les cibles et les mesures correspondantes. Ce calcul conduit aux histogrammes de la figure 6.11 pour les mesures réalisées dans le massif de graphite et figure 6.12 pour celles dans le Téflon.

Ces reconstitutions sont très proches de celles déterminées par la normalisation Silicium.

6.3 Extraction des sections efficaces

Nous avons jusqu'ici décrit et appliqué les méthodes d'obtention de spectres simulés et expérimentaux exploitables. La question est maintenant de savoir comment nous allons extraire les sections efficaces expérimentales à partir de ces données. Nous allons ici développer deux méthodes et les appliquer aux quatre types de reconstitutions réalisées :

- Les spectres qui représentent les taux de réaction expérimentaux totaux reconstitués par les différentes contributions de la simulation numérique dont les coefficients de normalisation sont calculés pour chaque cible.
- Les spectres qui représentent les taux de réaction totaux reconstitués par les différentes contributions de la simulation numérique et dont les coefficients sont imposés par la minimisation de la fonction $f(\beta,\gamma,\varepsilon,\rho,\omega)$ sur le bruit de fond.
- Les spectres représentant le taux de réaction dans les cibles résonnantes uniquement et dont la réduction de bruit de fond est effectuée par normalisation par rapport au détecteur Silicium.

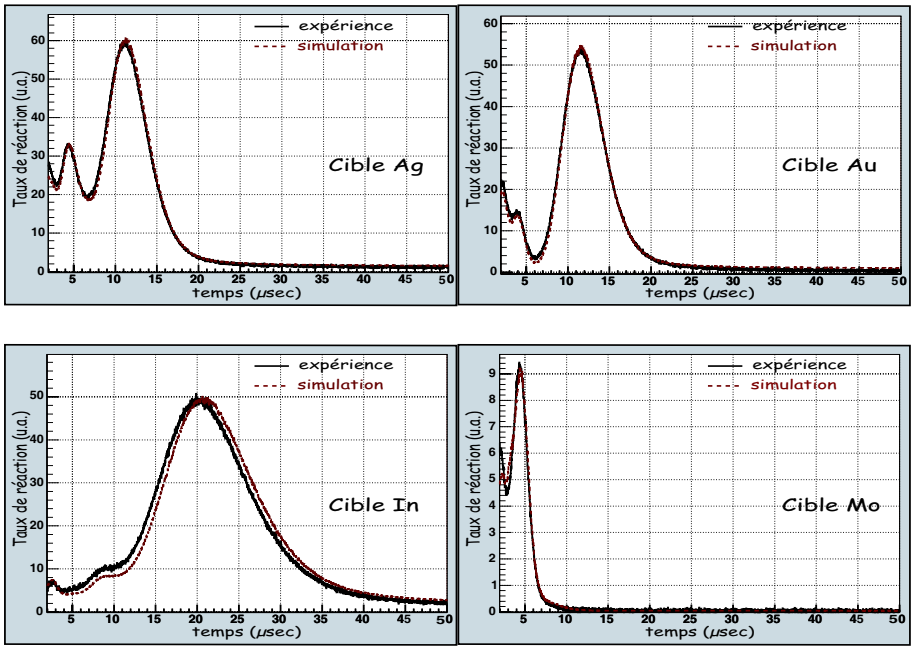


FIG. 6.11 – *Taux de réaction simulés (courbes pointillées) et expérimentaux (courbes pleines) dans le graphite. La normalisation des spectres expérimentaux a été réalisée par la méthode de minimisation de* χ^2.

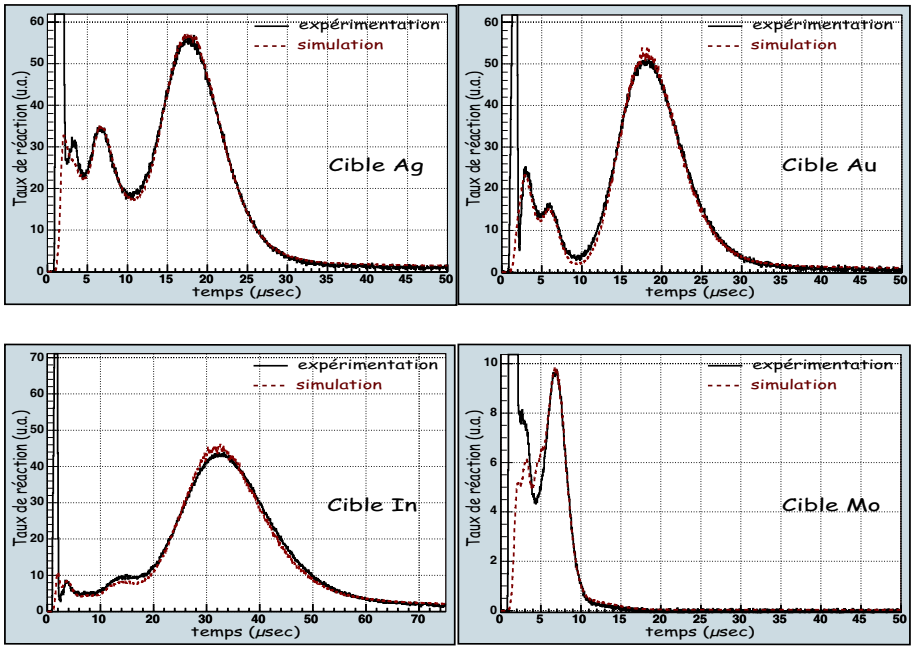


FIG. 6.12 – *Taux de réaction simulés (courbes pointillées) et expérimentaux (courbes pleines) dans le Téflon. La normalisation des spectres expérimentaux a été réalisée par la méthode de minimisation de* χ^2.

- Les spectres représentant le taux de réaction dans les cibles résonnantes reconstitué par minimisation de χ^2 entre la simulation numérique et l'expérimentation.

La détermination de la section efficace de diffusion élastique du carbone ou du fluor est basée sur la comparaison directe de l'expérience avec la simulation numérique par une étude de type paramétrique qui consiste à réaliser plusieurs simulations numériques en incluant une variation $\Delta\sigma$ sur la section efficace de diffusion élastique du carbone et du fluor. La variable $\Delta\sigma$ exprime l'écart en pour-cent entre la section efficace de diffusion élastique utilisée dans la simulation σ_s et celle des bases de données nucléaires σ_b :

$$\Delta\sigma = 100.\left(\frac{\sigma_s}{\sigma_b} - 1\right) \tag{6.13}$$

Les deux méthodes d'extraction des sections efficaces se basent alors sur un critère de convergence de la simulation numérique vers l'expérience. Deux critères différents ont été testés ici.

6.3.1 Méthode des moindres carrés

Le principe de cette méthode est très simple : il suffit de considérer que l'écart minimum entre la mesure et la simulation numérique est atteint pour une section efficace du matériau diffuseur égale à la section efficace réelle qui gère le ralentissement des neutrons au cours de l'expérience. Pour chaque simulation numérique associée à une variation $\Delta\sigma$ et de taux de réaction en fonction du temps $\tau_s(t_i)$, il convient alors de définir une fonction qui exprime l'écart relatif entre la mesure et la simulation de la forme :

$$\chi^2(\Delta\sigma) = \sum_{t1}^{t2}\left(1 - \frac{\tau_s(t_i)}{\tau_e(t_i)}\right)^2 \tag{6.14}$$

où le terme $\tau_e(t_i)$ représente le taux de comptage expérimental. Il reste ici à définir les bornes de la sommation t_1 et t_2 que nous avons fixées de manière conventionnelle : la borne inférieure t_1 est le minimum local précédent la résonance et la borne maximum t_2 est symétrique de t_1 à droite de la résonance.

L'expression de l'erreur sur la grandeur 6.14 se déduit du raisonnement explicité dans l'annexe A. Nous considérons alors que $\tau_s(t_i)$ et $\tau_e(t_i)$ sont des variables aléatoires indépendantes qui se distribuent selon une densité de probabilité quasi-gaussienne, dont les paramètres, $\sigma_s(t_i)$ et $\sigma_e(t_i)$, représentent les incertitudes statistiques simulées et expérimentales. Ces dernières sont simples à extraire, car MCNP fournit dans son fichier de sortie $\tau_s(t_i) \pm \delta\tau_s(t_i)$ et nous avons la relation $\delta\tau_e(t_i) = \frac{\tau_e(t_i)}{\sqrt{N_e(t_i)}}$ avec $N_e(t_i)$, nombre de coups détectés dans le canal t_i. La condition $\frac{\delta\tau_e(t_i)}{\tau_e(t_i)} \ll 1$, nécessaire à la validité du calcul qui va suivre est respectée car les erreurs relatives expérimentales sont de l'ordre du %. En effectuant le changement de variable suivant :

$$V(t_i) = 1 - \frac{\tau_s(t_i)}{\tau_e(t_i)} \tag{6.15}$$

nous déduisons l'erreur associée à V_i de la forme :

$$\delta V(t_i) = \sqrt{\left(\frac{\delta\tau_s(t_i)}{\tau_e(t_i)}\right)^2 + \left(\frac{\tau_s(t_i)}{\tau_e^2(t_i)}\delta\tau_e(t_i)\right)^2} \tag{6.16}$$

Le changement de variable $U(t_i) = V(t_i)^2$ permet de considérer la fonction $U(t_i)$ comme l'argument de la somme dans l'expression (6.14) et son erreur est donnée par :

$$\delta U(t_i) = \sqrt{2\delta V(t_i)^4 + 4\delta V(t_i)^2 V^2(t_i)} \tag{6.17}$$

En faisant l'approximation que les taux de comptage aux instants t_i et t_j sont indépendants pour tout $j \neq i$, l'erreur statistique totale $\Delta\left(\chi(\Delta\sigma)^2\right)$sur la grandeur $\chi^2(\Delta\sigma)$ se déduit de l'égalité suivante :

$$\Delta\left(\chi(\Delta\sigma)^2\right)^2 = \sum_{t1}^{t2} \delta U(t_i)^2 \tag{6.18}$$

Nous avons alors ici toutes les expressions nécessaires ainsi que les taux de comptages expérimentaux et simulés pour effectuer le calcul de la grandeur χ^2 avec son erreur associée. Il convient aussi d'effectuer les simulations numériques avec différentes variations sur la section efficace de diffusion élastique et de calculer cette grandeur pour chaque $\Delta\sigma$. Nous avons imposé une variation allant de -5% jusqu'à $+5\%$ par pas de 1% ce qui correspond alors à 11 points pour chaque cible résonnante[1]. Ces bornes seront étendues si le minimum de la fonction $\chi^2(\Delta\sigma)$ n'est pas observé dans ce domaine de variation.

6.3.2 Méthode de la relation E-t

Nous avons développé les aspects du ralentissement des neutrons dans un massif ralentisseur chapitre 4. Nous rappelons ici le caractère principal qui est que le ralentissement des neutrons dans les milieux que nous considérons est caractérisé par la relation :

$$E = \frac{K}{(t + t_o)^2} \tag{6.19}$$

où le paramètre K, qui dépend du matériau diffuseur, est inversement proportionnel au carré de la section efficace de diffusion élastique. Analytiquement, le temps de résonance t_r pour une cible dont l'énergie de résonance est E_r est donc de la forme :

[1] *Le domaine énergétique modifi é s'étend de l'énergie thermique jusqu'à* $100\,keV$.

$$t_r = \sqrt{\frac{K}{E_r}} - t_o \tag{6.20}$$

Bien que cette expression soit la conséquence d'approximations et qu'elle ne soit pas parfaitement exacte appliquée aux massifs, nous pouvons conserver la dépendance en $1/\sigma^2$ du paramètre K. Le temps de résonance en fonction de la section efficace de diffusion élastique σ_s du milieu s'écrit, en fonction de a et b, constantes à déterminer :

$$t_r(\sigma_s) = \frac{a}{\sigma_s} + b \tag{6.21}$$

Les études par simulation numérique réalisées jusqu'ici font intervenir la variation sur la section efficace, par l'intermédiaire de la variable $\Delta\sigma = 100.\left(\frac{\sigma_s}{\sigma_b} - 1\right)$. En considérant que le terme $\Delta\sigma \ll 1$, il est possible d'exprimer le temps de résonance simulé en fonction de cette variable, soit :

$$t_r(\Delta\sigma) = A\Delta\sigma + B \tag{6.22}$$

Cette expression est valable pour une variation de la section efficace du carbone pour les mesures réalisées dans le massif de graphite, et pour une variation de la section efficace du fluor pour les mesures dans le bloc de Téflon. Cette fonction, prise entre $\Delta\sigma = -5\%$ et $\Delta\sigma = 5\%$ est décroissante (plus la section efficace de la simulation augmente, plus le ralentissement est rapide et plus l'instant de résonance est faible). La simulation numérique permet alors la détermination des coefficients A et B donc d'une fonction continue $t_r(\Delta\sigma)$. L'intersection entre la droite déterminée par l'équation (6.22) et la droite d'équation $t_r = t_r^{exp}$, temps de résonance expérimental, conduit à la détermination de la variation de la section efficace.

La question est de savoir comment déterminer l'instant de résonance associé à une simulation numérique ou à un taux de réaction expérimental. Lors d'expériences antérieures [Pe01],[TA99], réalisées avec un spectromètre à temps de ralentissement en plomb, des ajustements gaussiens, éventuellement corrigés par une exponentielle décroissante ont été proposés. Dans notre cas, l'ajustement gaussien n'est absolument pas satisfaisant car les résonances observées sont très asymétriques, ce qui n'est pas le cas pour une résonance dans un massif de plomb. Nous avons déterminé quelques fonctions analytiques qui ajustent relativement bien les résonances. Celle qui s'accorde le mieux avec les résonances de l'or, de l'argent, de l'indium et du molybdène est une fonction du type :

$$f(t) = A\,(t-B)^2\, exp\left(\frac{t-B}{C}\right)^2 \tag{6.23}$$

Cette fonction est représentée figure 6.13 avec des coefficients arbitraires et ses paramètres caractéristiques, maxima et minimum, sont spécifiés. Nous imposons dans la procédure d'ajustement la condition $t > B$ afin de n'utiliser que la partie droite du minimum de la courbe qui correspond à la

forme des résonances.

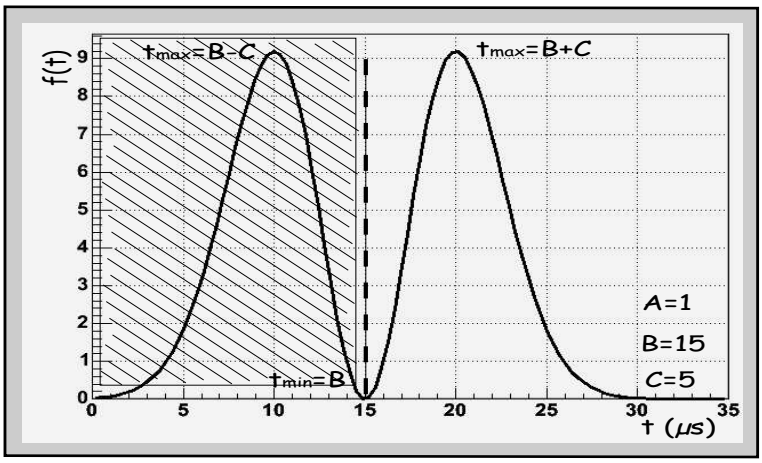


FIG. 6.13 – *Fonction f(t) et valeurs numériques des coefficients utilisés. La partie à droite des pointillés est la partie de la courbe qui va servir à ajuster les résonances expérimentales et simulées.*

Nous allons alors comparer la qualité d'un ajustement des résonances des quatre cibles par des fonctions de type gaussien, polynôme d'ordre 5 et par la fonction que nous venons de définir. La qualité sera jugée par l'extraction d'un χ^2 réduit. Les bornes des ajustements ont été fixées à 60% du maximum des résonances. Le tableau 6.1 permet de comparer les valeurs du χ^2 réduit pour deux exemples de simulations numériques pour le massif de graphite.

$\Delta\sigma = 0$				$\Delta\sigma = 2\%$			
cible	gaussienne	polynôme 5	$f(t)$	cible	gaussienne	polynôme 5	$f(t)$
Au	4.5	1.01	1.20	Au	2.83	1.09	1.15
Ag	4.31	1.09	1.37	Ag	2.23	0.93	1.11
In	5.94	0.94	1.44	In	1.51	0.99	1.06
Mo	0.80	0.71	1.04	Mo	0.87	0.80	1.11

TAB. 6.1 – *Valeurs numériques du χ^2 réduit associé à des ajustements des résonances des cibles d'or, d'argent, d'indium et de molybdène par trois fonctions différentes. Le tableau de gauche est relatif à des simulation réalisées avec la section efficace du carbone des bases de données nucléaires tandis que celui de droite correspond à une section efficace supérieure de* 2% *à celle des bases.*

Nous voyons que l'ajustement gaussien n'est pas acceptable, son χ^2 réduit est largement supérieur à celui des deux autres fonctions. Les meilleurs ajustements sont réalisés pour un polynôme d'ordre 5 qui est l'ordre le plus bas conduisant à des ajustements acceptables. Néanmoins, un ajustement par un polynôme de ce type conduit à une détermination relativement compliquée de l'incertitude à associer

au temps de résonance calculé. La fonction $f(t)$ qui n'a que trois paramètres ajustables, a des valeurs de χ^2 réduit très acceptables et offre une détermination de l'instant de résonance très simple. L'erreur associée s'extrait aussi très facilement. Nous allons donc utiliser cette fonction pour la détermination des instants de résonance qui s'exprime alors :

$$t_r = B + C \tag{6.24}$$

$$\Delta t_r = \sqrt{\Delta B^2 + \Delta C^2 + 2\,cov(B,C)} \tag{6.25}$$

6.3.3 Section efficace du Carbone

• MÉTHODE DES MOINDRES CARRÉS

Cette méthode est appliquée aux différents spectres obtenus et présentés précédemment. Les courbes obtenues (cf figure 6.14) mettent en évidence la régularité ainsi que l'allure parabolique de la fonction $\chi^2(\Delta\sigma)$. Ceci nous conduit alors à un ajustement par un polynôme du second ordre. Sur cette figure, les chiffres indiqués représentent le minimum de la fonction χ^2 avec son erreur associée en pour-cent. A chaque cible correspond le même calcul appliqué aux quatre méthodes de reconstitution de spectres :

- Les deux courbes du haut sont la reconstitution du taux de réaction simulé dans la cible par réduction de bruit de fond. La normalisation est effectuée par réduction de variance (à gauche) puis par normalisation avec le détecteur Silicium (à droite).
- Les courbes du bas montrent les reconstitutions des spectres expérimentaux totaux par la simulation numérique avec les coefficients du bruit de fond imposés (à droite) ou non en exécutant le programme de minimisation sur toute les contributions individuelles (à gauche).

Le minimum de cette fonction et son erreur associée s'extraient simplement et sont présentés sur les courbes correspondantes. Notons que l'erreur sur $\Delta\sigma$ que nous avons calculée, liée à la détermination du minimum fournie par le logiciel de traitement, est d'origine statistique uniquement.

L'ensemble des calculs des variations $\Delta\sigma$ est cohérent, sauf en ce qui concerne la cible d'indium qui conduit à des résultats notablement différents des autres cibles ce qui nous a contraints d'exclure ces quatre résultats du traitement. Nous conservons donc les valeurs relatives aux cibles d'or, d'argent et de molybdène.

• MÉTHODE DE LA RELATION $E - t$

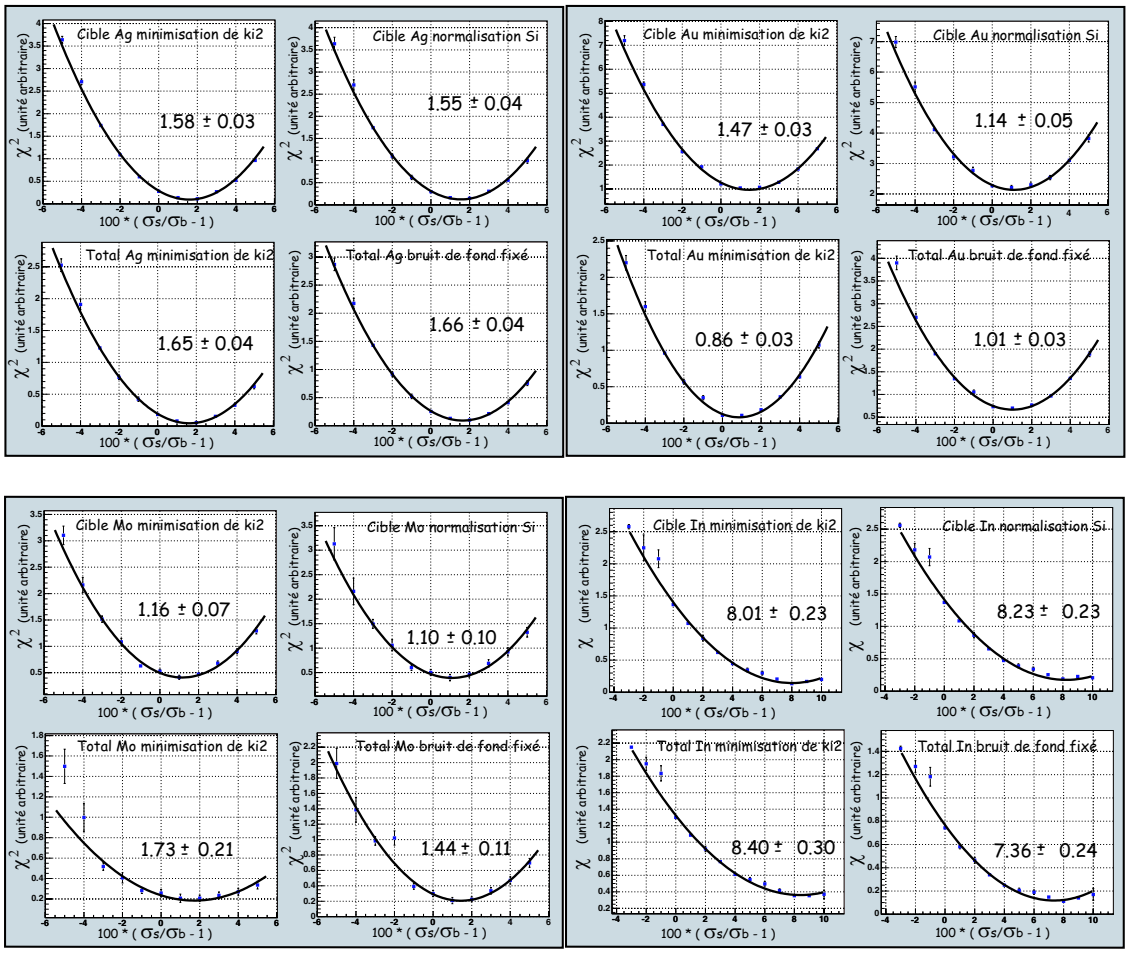


FIG. 6.14 – *Grandeur χ^2 en fonction de l'écart imposé sur la section efficace de diffusion élastique σ_b du carbone dans les bases de données nucléaires (la section efficace utilisée dans la simulation numérique est σ_s). Les quatre graphiques en haut à gauche sont relatifs à la cible d'argent, l'or est représenté en haut à droite, le molybdène en bas à gauche et enfin, les courbes en bas à droite représentent l'indium.*

Les ajustements ont été réalisés uniquement sur les spectres représentant le taux de réaction dans les cibles résonnantes. En effet, les autres spectres (taux de réaction dans la cible ajouté au bruit de fond) imposeraient de rajouter à $f(t)$ une fonction caractéristique du bruit de fond, donc des paramètres supplémentaires. Nous allons donc extraire la section efficace du carbone par cette méthode avec les spectres relatifs aux cibles résonnantes reconstituées par les deux méthodes décrites dans les paragraphes 6.3.1 et 6.3.2. Les droites (cf équation (6.23)) obtenues sont représentées figure 6.15.

Les résultats présentés sur cette figure sont en accord avec ceux déterminés par la méthode de minimisation du χ^2 sauf pour la cible de molybdène. Par ailleurs, les ajustements réalisés sur cette résonance ont conduit à de grandes valeurs du χ^2 réduit, donc à des ajustements de faibles qualités. Nous allons quand même conserver ces valeurs car les écarts sont faibles et peuvent être par conséquent dus à une source d'erreur systématique. En revanche, comme dans le paragraphe précédent, les valeurs associées à la cible d'indium sont en désaccord avec les autres cibles et seront ignorées dans la détermination de la variation de la section efficace du carbone.

• DISCUSSION SUR LE DÉCALAGE INDUIT PAR LA CIBLE D'INDIUM

Les deux méthodes d'extraction de la section efficace du carbone conduisent à des valeurs divergentes lorsqu'elles sont appliquées aux données relatives à la cible d'indium. La résonance de cette cible se situe à $E = 1.49\,eV$, énergie de résonance plus faible que les autres cibles utilisées. L'ensemble des expériences ainsi que les analyses étant réalisés de manière identique pour toutes les cibles, cet écart semble mettre en cause un aspect du traitement par la simulation numérique. Nous verrons par la suite que le traitement équivalent appliqué aux expériences dans le Téflon n'entraîne aucune incohérence relative à la cible d'indium. Or, la différence fondamentale entre les deux séries de simulations numériques réside dans la prise en compte, pour le cas du graphite, d'un traitement thermique optionnel qui prend en compte la structure moléculaire du réseau cristallin ainsi que les énergies de liaisons entre les atomes par l'intermédiaire d'une matrice de diffusion "$S(\alpha,\beta)$". Le traitement thermique dans le graphite s'active pour des énergies inférieures à $4.5\,eV$ ce qui explique pourquoi les autres cibles ne sont pas perturbées au niveau des résonances.

Afin d'observer l'influence de ce traitement sur les résultats avec la cible d'indium, nous l'avons supprimé d'une simulation numérique prise avec une section efficace de diffusion élastique imposée à $\Delta\sigma = 1\%$. Enfin, la méthode de la relation $E - t$ a été testée et une extrapolation linéaire a conduit à une nouvelle valeur pour le $\Delta\sigma$ qui minimise l'écart entre l'expérience et la simulation :

$$\Delta\sigma = (2.2 \pm 0.2)\% \tag{6.26}$$

Cette nouvelle valeur est alors cohérente avec les autres cibles résonantes.

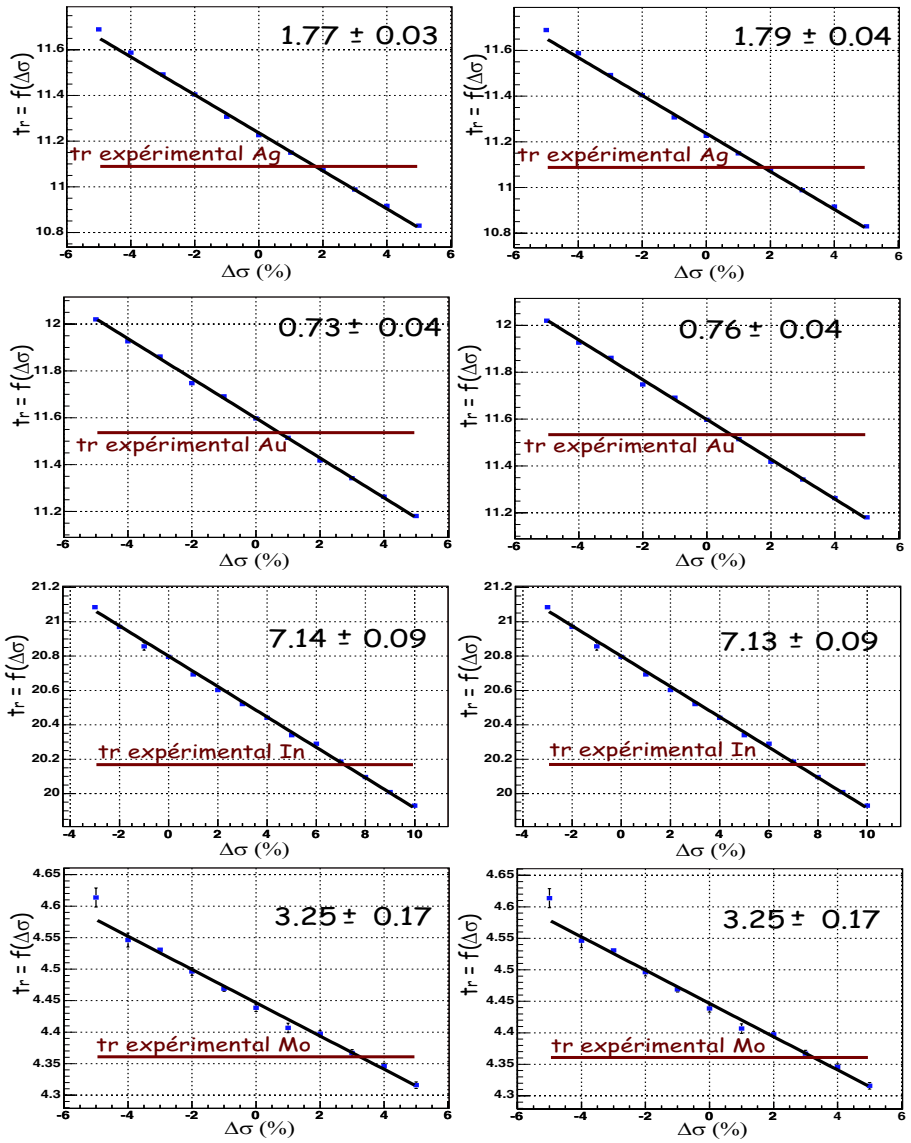


FIG. 6.15 – *Fonction $t_r = f(t)$ pour l'ensemble des cibles utilisées dans le graphite avec mise en évidence de l'intersection avec le temps de résonance expérimental et qui conduit à la section efficace mesurée indiquée sur les différents graphes.*

Néanmoins, comme nous le voyons sur la figure 6.16, si le temps de résonance devient raisonable sans le traitement thermique, il faut noter que la forme générale de la résonance temporelle est moins en accord avec la résonance expérimentale.

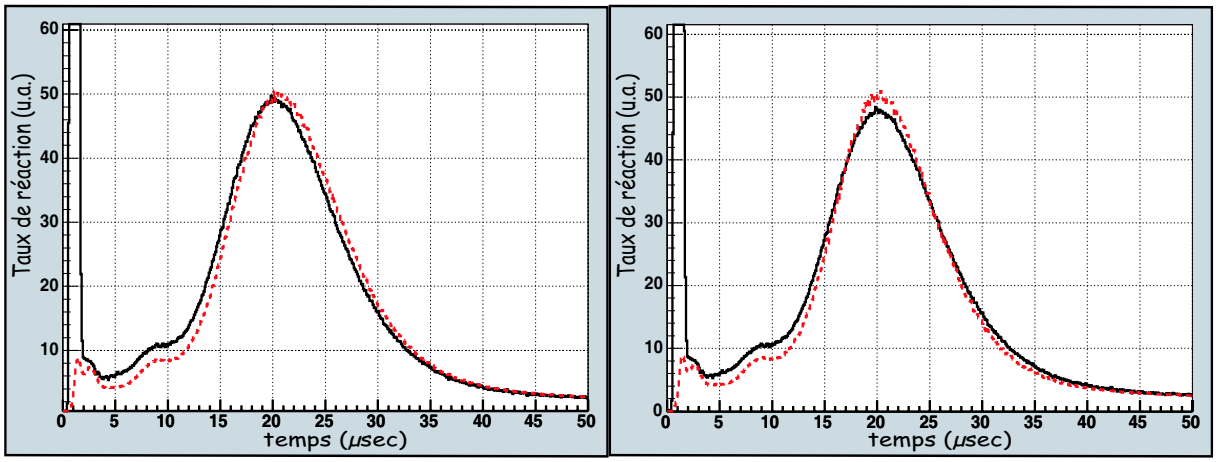


FIG. 6.16 – *Superposition entre le spectre expérimental (trait plein) et la simulation numérique (trait pointillé) pour la cible d'indium avec (courbes de gauches) et sans traitement thermique (courbes de droite).*

Actuellement, des réévaluations des données thermiques sont effectuées [MA05] sur des matériaux tels que l'hydrogène dans H_2O et ZrH et le deutérium dans D_2O. Ces nouvelles évaluations mettent l'accent sur le fait que la plupart des données thermiques existantes ont été réalisées dans les années 50 et 60. Le fait mis en évidence dans ce travail montre que le traitement thermique concernant le graphite induit un désaccord important entre l'expérience et la simulation. Il apparaît donc la nécéssité d'une réévaluation des données thermique pour le graphite. En effet, de nouvelles données telles que l'évolution de la structure du graphite due à différents procédés de fabrication ainsi que la remise en cause des modèles thermiques pourraient expliquer l'écart observé.

• SECTION EFFICACE MOYENNE EXPÉRIMENTALE

En l'absence d'arguments décisifs permettant de choisir une méthode de détermination par rapport à l'autre, nous avons retenu la moyenne des valeurs obtenues par ces différentes méthodes.

De plus, l'ensemble des points que nous avons extraits sont associés à une erreur statistique uniquement. Or, des sources d'erreurs ne sont pas prises en compte :

- Les erreurs systématiques liées à l'ensemble expérimental.

- Les erreurs systématiques dues aux approximations de la simulation numérique.
- Les erreurs sur la méthode de détermination de la section efficace.

Ces sources d'erreurs ne sont pas déterminables à l'aide de nos données expérimentales et simulées. Dans ces conditions, la variance par rapport à la valeur moyenne constitue la seule estimation raisonnable de l'erreur sur la mesure intégrant les erreurs statistiques et systématiques pré-citées.

L'incertitude (cf Chapitre 2) sur la densité du massif de graphite est de 0.57% et doit être ajoutée quadratiquement à l'erreur totale sur la variation mesurée de la section efficace du carbone.

Ce calcul conduit à la valeur du $\Delta\sigma$ expérimental exprimant l'écart mesuré par rapport à la section efficace du carbone issu des tables de données nucléaires :

$$\Delta\sigma = (1.55 \pm 1.12)\% \tag{6.27}$$

6.3.4 Section efficace du fluor

La détermination de la section efficace du fluor doit s'appuyer sur les résultats précédents par l'utilisation dans la simulation numérique de la section efficace mesurée du carbone et de son erreur associée. Au moments où les simulations "Téflon" ont été réalisées, les résultats sur le carbone n'étaient pas définitifs. Nous avons donc, par précaution, effectué les simulation pour le massif de Téflon avec deux valeurs extrêmes, $\Delta\sigma = 0$ et $\Delta\sigma = 3\%$, de façon à pouvoir interpoler les résultats en fonction de la valeur finale donnée par la relation (6.27).

- MÉTHODE MOINDRE CARRÉ

Le processus ici est identique au cas du graphite et conduit à deux séries de courbes (figure 6.17 et figure 6.18) qui diffèrent par la valeur du $\Delta\sigma$ imposé à la section efficace du carbone.

L'ensemble des points associés aux simulations numériques utilisant la section efficace du carbone des bases de données , soit $\Delta\sigma = 0$, ainsi que les points déterminés pour $\Delta\sigma = 3\%$ sont compatibles entre eux et seront par conséquent intégralement conservés.

- MÉTHODE RELATION $E - t$

Les ajustements sur les taux de réaction avec cible résonnante uniquement sont effectués en considérant une justification similaire au cas du graphite. Les droites ainsi obtenues sont représentées figure 6.19, pour une variation $\Delta\sigma = 0$ sur la section efficace de diffusion élastique du carbone et

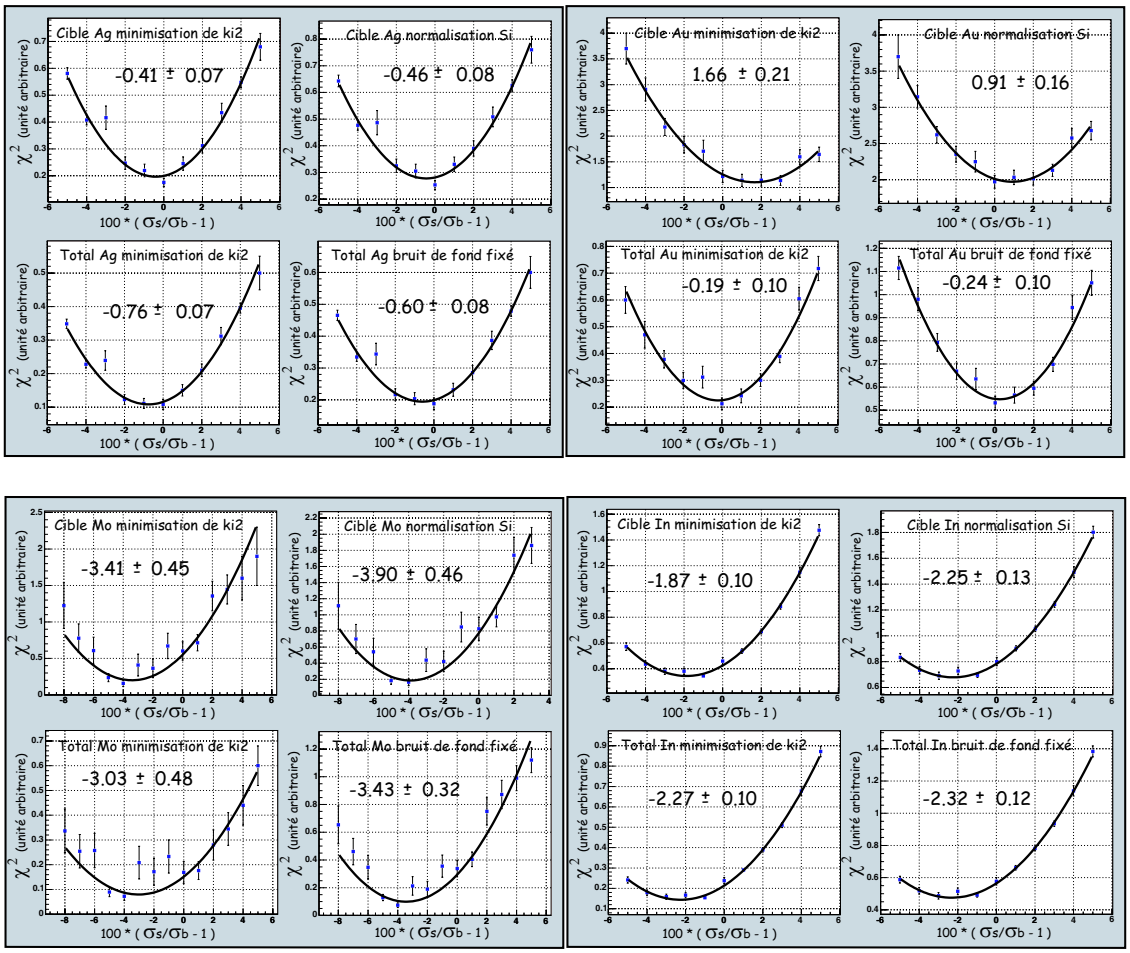


FIG. 6.17 – *Grandeur χ^2 en fonction de l'écart imposé sur la section efficace de diffusion élastique σ_b du fluor pour une variation nulle sur la section efficace du carbone. Les quatre graphiques en haut à gauche sont relatifs à la cible d'argent, l'or est représenté en haut à droite, le molybdène en bas à gauche et enfin, les courbes en bas à droite représentent l'indium.*

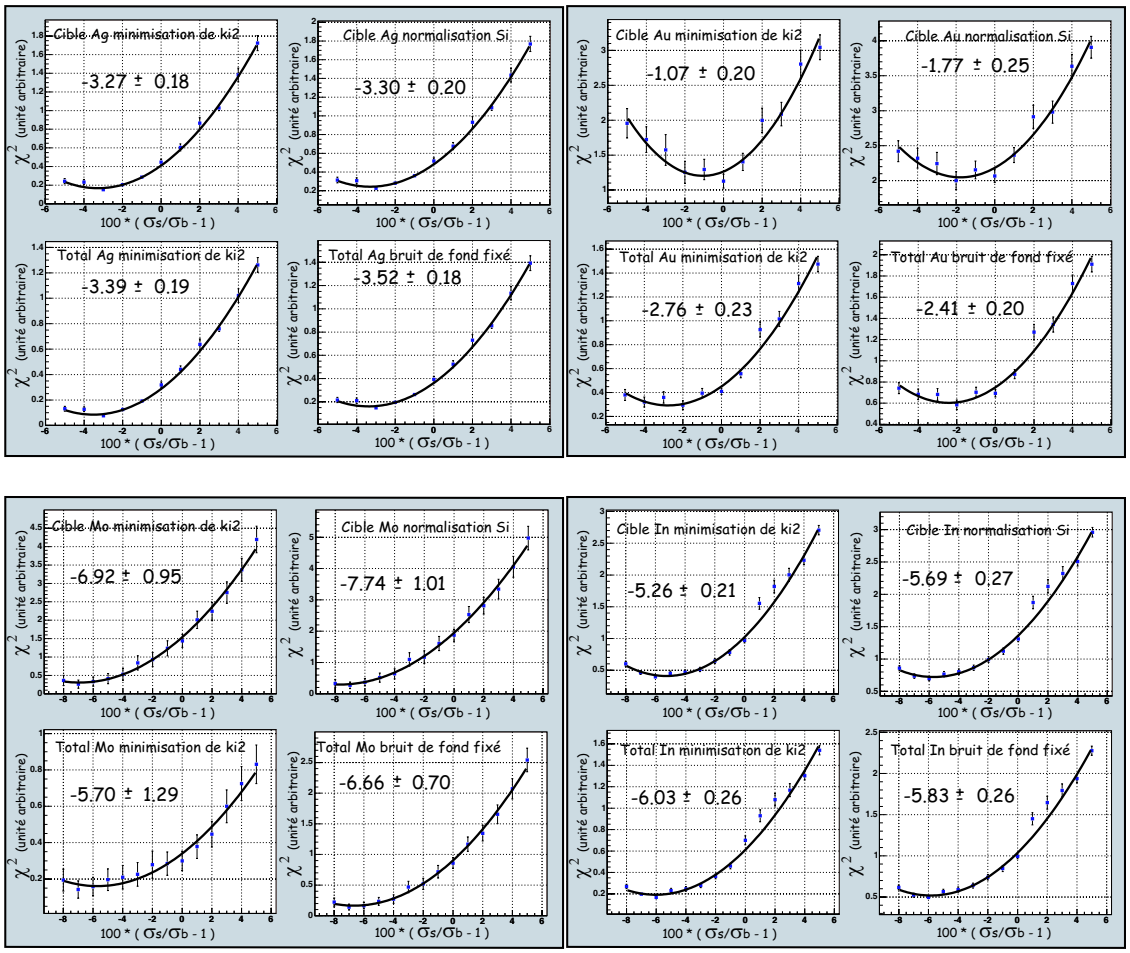


FIG. 6.18 – *Grandeur χ^2 en fonction de l'écart imposé sur la section efficace de diffusion élastique σ_b du fluor pour une variation de 3% sur la section efficace du carbone. Les quatre graphiques en haut à gauche sont relatifs à la cible d'argent, l'or est représenté en haut à droite, le molybdène en bas à gauche et enfin, les courbes en bas à droite représentent l'indium.*

figure 6.20 pour $\Delta\sigma = 3\%$.

Ces résultats sont parfaitement en accord avec la détermination par moindre carré.

• SECTION EFFICACE MOYENNE EXPÉRIMENTALE

Un calcul similaire à celui réalisé pour le graphite et incluant l'incertitude de 0.46% sur la densité du massif de Téflon a conduit à :

$$\Delta\sigma_F = (-1.39 \pm 1.55)\% \ \textit{pour}\ \Delta\sigma = 0 \tag{6.28}$$

$$\Delta\sigma_F = (-4.48 \pm 2.66)\% \ \textit{pour}\ \Delta\sigma = 3\% \tag{6.29}$$

Nous remarquons que les 3% imposés sur la section efficace du carbone sont compensés par la variation induite sur la section efficace du fluor. Une interpolation linéaire entre les deux valeurs est alors possible et la variation sur la section efficace du fluor prise pour 1.55% de variation sur la section efficace du carbone donne finalement :

$$\Delta\sigma_F = (-2.99 \pm 2.13)\%$$

Le plateau de la section efficace du fluor est ainsi déterminé comme étant 3% plus faible que celui des bases de données nucléaires.

6.4 Discussion des résultats

Nous allons dans ce paragraphe définir un critère pour déterminer le domaine énergétique où nos mesures sont valides. Enfin, nous pourrons comparer directement les mesures effectuées avec les données évaluées et expérimentales existantes.

6.4.1 Domaine énergétique des mesures

La méthode retenue pour évaluer ce domaine consiste à observer la variation induite sur le temps de résonance associé à une énergie E_r par différentes modifications de la section efficace de diffusion élastique entre une énergie limite E_L jusqu'à l'énergie initiale des neutrons $E_0 = 2.5 MeV$.

Le chapitre 4 montre que le temps de ralentissement moyen d'un neutron jusqu'au choc n est de la forme :

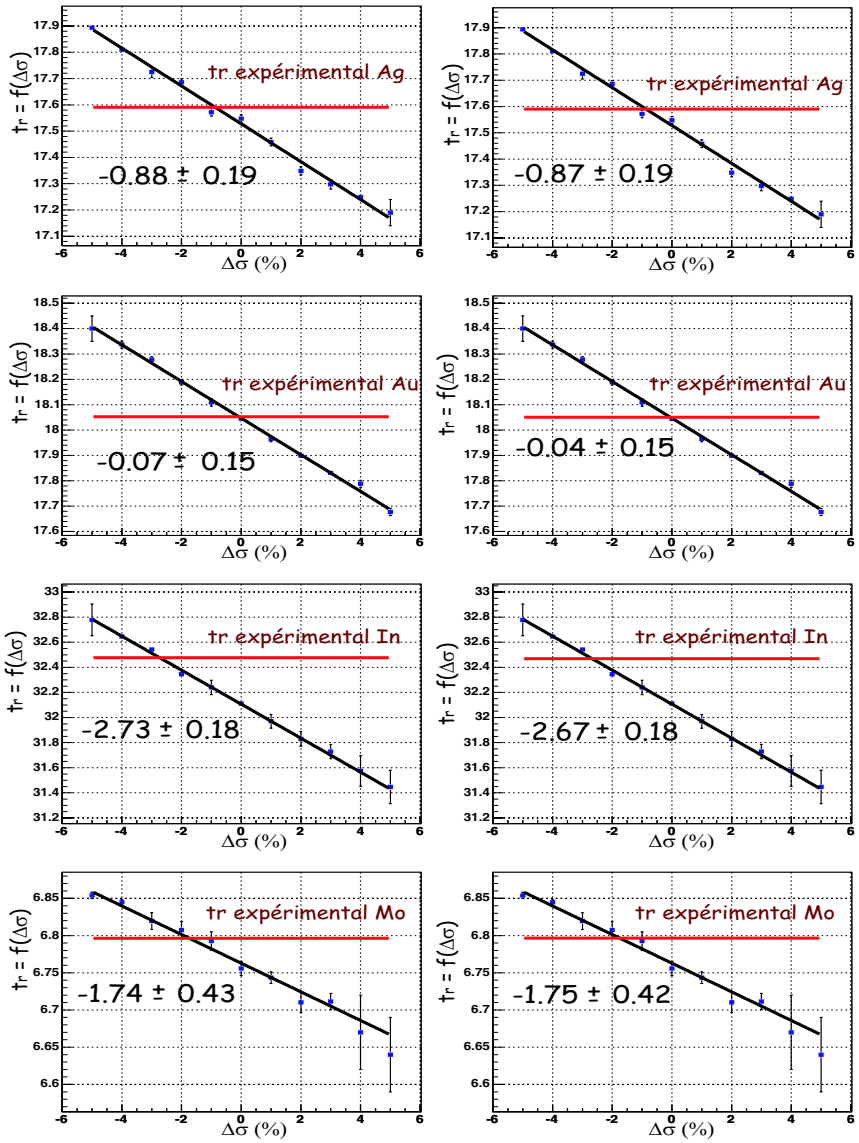


FIG. 6.19 – *Fonction $t_r = f(t)$ pour l'ensemble des cibles utilisées dans le Téflon, pour une variation nulle sur la section efficace du carbone, avec la mise en évidence de l'intersection avec le temps de résonance expérimental.*

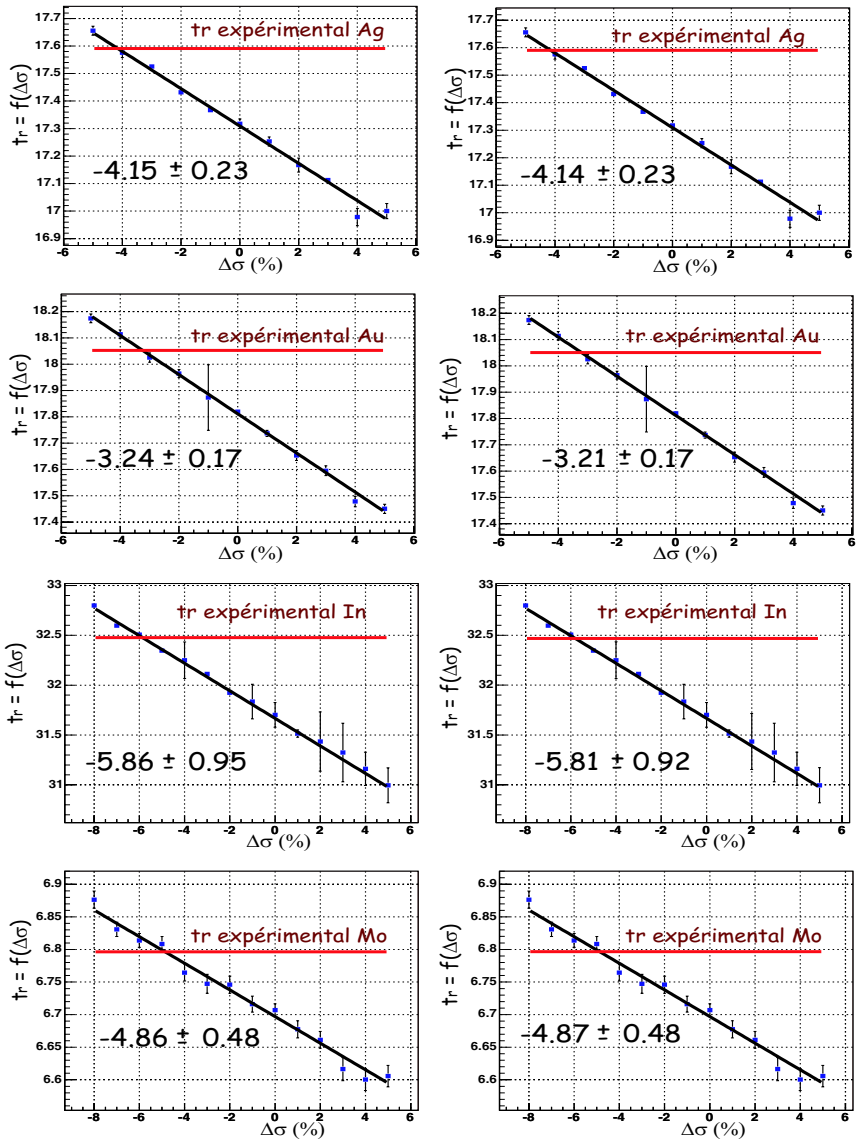


FIG. 6.20 – *Fonction $t_r = f(t)$ pour l'ensemble des cibles utilisées dans le Téflon, pour une variation de 3% sur la section efficace du carbone, avec la mise en évidence de l'intersection avec le temps de résonance expérimental.*

$$t^{(n)} = \frac{A}{\rho N_a}\sqrt{\frac{m_n}{2}}\sum_{i=0}^{n-1}\frac{1}{\sigma(E_i)\sqrt{E_i}} \tag{6.30}$$

Les termes A, ρ, N_a et m_n sont respectivement la masse atomique du noyau diffuseur, la densité du milieu, le nombre d'Avogadro et la masse d'un neutron. L'énergie E_i d'un neutron après un $i^{ème}$ choc est de la forme :

$$E_i = \frac{E_0}{\beta^{2i}} \tag{6.31}$$

où le coefficient β est explicité dans le chapitre 4. Nous allons ici raisonner sur le ralentissement des neutrons dans le graphite puis énoncer les résultats pour le Téflon.

Le développement menant à la relation $E-t$ dans le graphite consiste à imposer la section efficace de diffusion élastique $\sigma(E_i)$ indépendante de l'énergie. Ici, nous allons extraire $\sigma(E_i)$ des bases de données nucléaires et résoudre numériquement l'équation (6.30). Il sera alors simple de modifier $\sigma(E_i)$ entre E_L et E_0 et d'observer l'influence de cette variation sur le temps de résonance ainsi obtenu par rapport au temps de résonance théorique[2]. La méthode consiste alors à faire varier E_L à partir de E_0 et d'observer la variation du temps de résonance. Le critère choisi est que la variation sur le temps de résonance doit être inférieure à un pour-mille pour une variation donnée sur $\sigma(E_i)$. Nous assurons ainsi une fluctuation maximale sur les sections efficaces mesurées de 0.1%.

Dans le chapitre suivant, des mesures de la section efficace du carbone et du fluor au-delà de $200\,keV$ effectuées de manières indépendantes sont présentées. Nous trouvons un écart mesuré entre la section efficace du carbone et celle des bases de données de l'ordre de 5%. Nous avons donc imposé une variation de 5% sur la section efficace du carbone entre E_0 et différentes valeur de E_L. L'influence de cette variation peut alors être observée sur différents instants de ralentissement. Nous représentons figure 6.21 le traitement réalisé pour le temps de résonance caractéristique du molybdène à l'énergie $E = 45\,eV$ et celui de l'argent à $E = 5\,eV$. Ces figures mettent en évidence les valeurs de E_L qui induisent dans les deux cas une variation de un pour-mille sur le temps de résonance observé. Ces valeurs ont été déterminées à $150\,keV$ pour la résonance à $E = 45\,eV$ et à $20\,keV$ pour l'énergie de résonance de l'argent.

La signification physique de ces résultats est que les mesures du plateau des sections efficaces du carbone peuvent être considérées comme valides entre quelques eV et $150\,keV$.

Un travail similaire a été effectué pour le Téflon et a mené à un domaine de validation de la section efficace du Fluor identique.

[2] *Notons que l'équation (6.30) est issue d'un modèle, incluant des hypothèses simplifi catrices, qui s'écarte de quelques pour-cents de l'expérience. Néanmoins, la dépendance par rapport à la section effi cace de diffusion élastique est très fi able et nous avons pu montrer que les écarts relatifs sur les temps de résonances ainsi déduits sont très précis.*

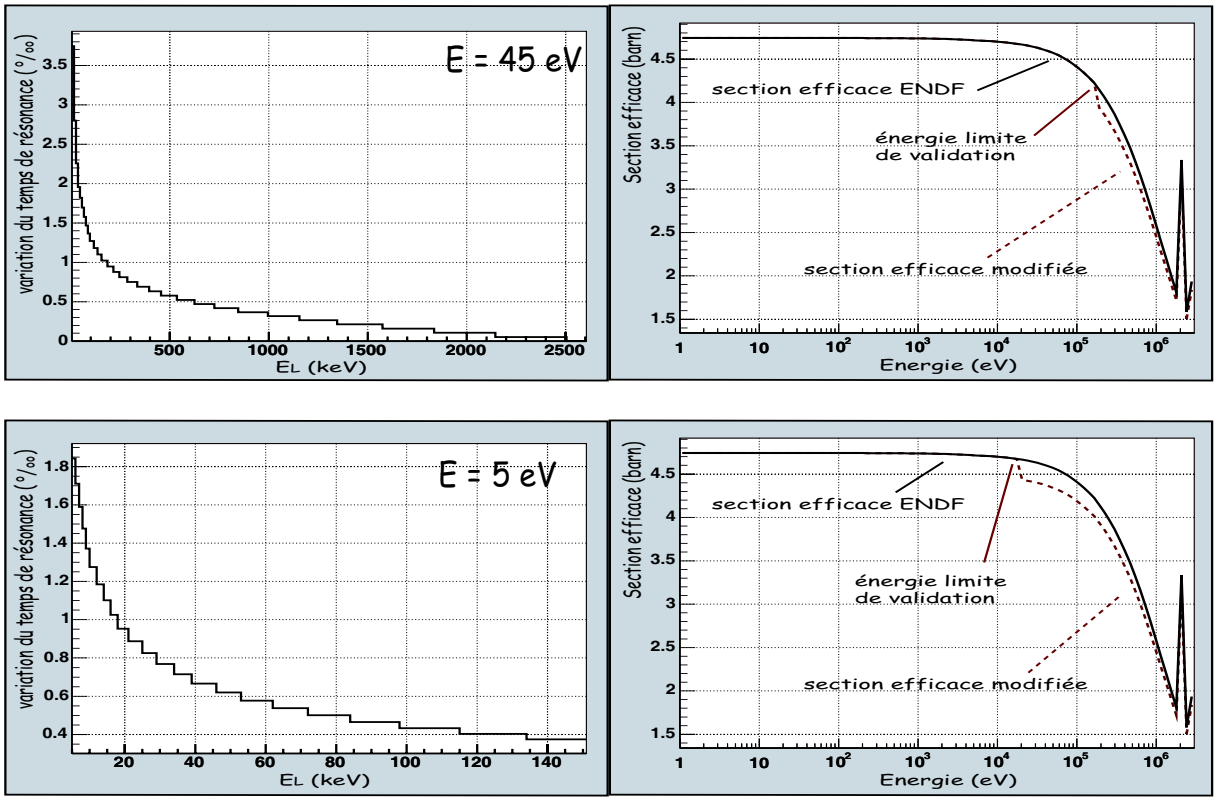


FIG. 6.21 – *Variation du temps de résonance en pour-mille par rapport au temps de résonance théorique, pour deux énergies ($E = 5\,eV$ et $E = 45\,eV$) en fonction de l'énergie limite à partir de laquelle nous avons imposée* 5% *de variation sur la section efficace de diffusion élastique du carbone. Les sections efficaces modifiées par rapport à la base ENDF sont représentée telles qu'elles induisent 1 pour-mille de variation sur le temps de résonance.*

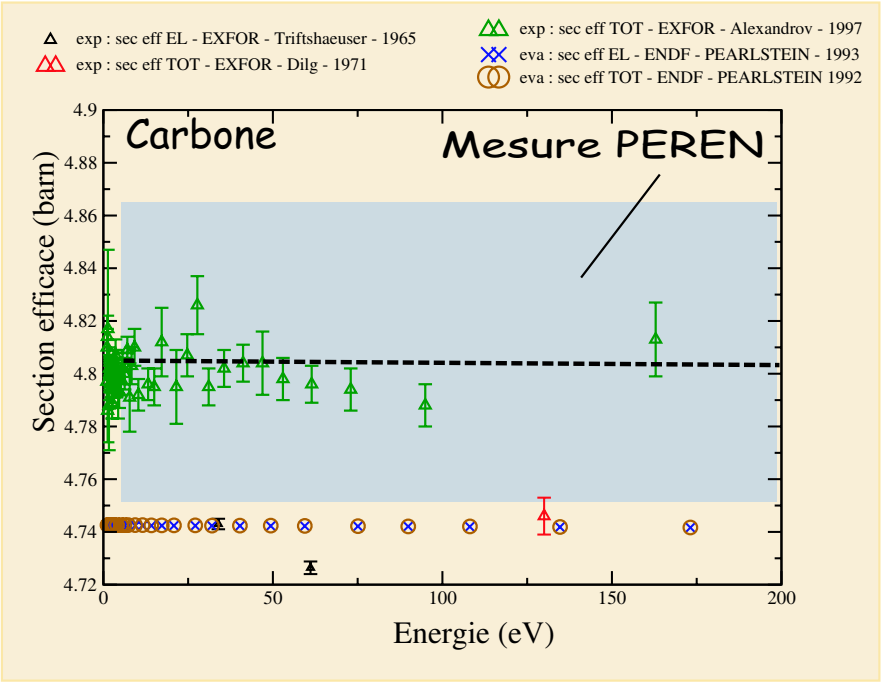
6.4.2 Visualisation des résultats

Ce paragraphe a pour but de confronter directement les résultats pour le carbone et le fluor avec les données existantes évaluées ou expérimentales. Il s'agit de superposer nos mesures avec les courbes de sections efficaces représentées dans le chapitre 1.

Pour le carbone, ce travail conduit à la figure 6.22 et la représentation de la section efficace mesurée du fluor est effectuée figure 6.23.

La section efficace mesurée du carbone est satisfaisante dans la mesure où elle s'accorde parfaitement avec les mesures récentes réalisées par Alexandrov [Al97]. Par ailleurs, les incertitudes représentées concernant ces mesures sont d'origine purement statistiques.

En revanche, la mesure de la section efficace du Fluor conduit à une valeur qui s'écarte des évaluations ainsi que des mesures. Néanmoins, si les erreurs relatives aux mesures de Larson [La76] ne sont que statistiques, l'évaluations de l'erreur systématique conduit à une valeur de 3% ce qui rend cette série de mesures cohérente avec la mesure réalisée sur la plate-forme PEREN.



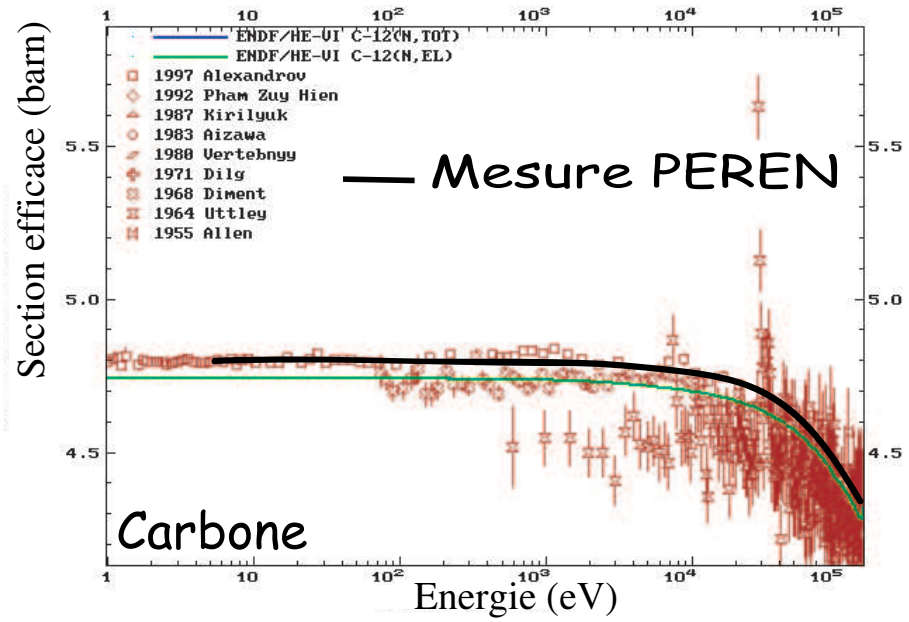
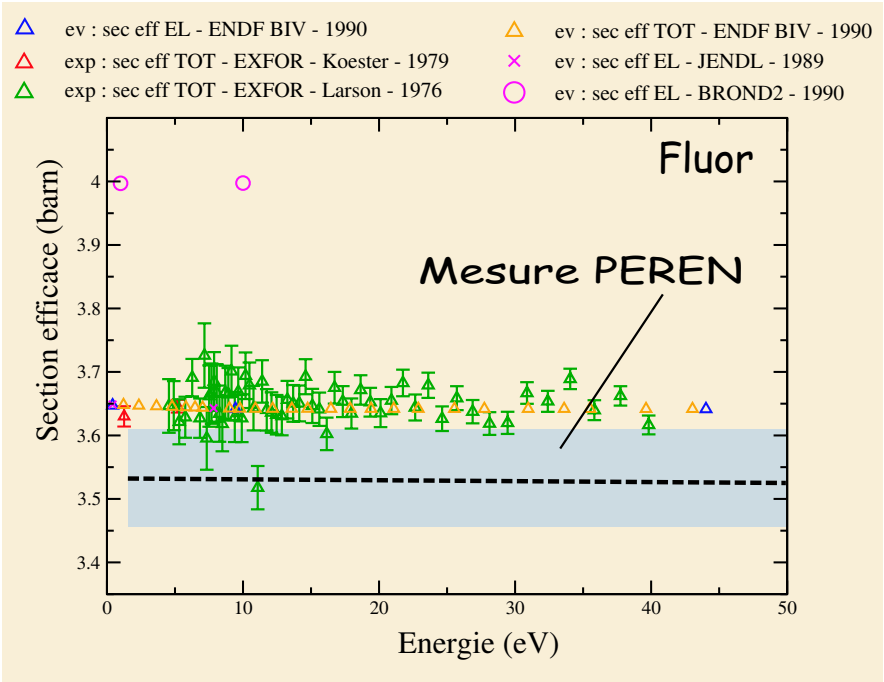


FIG. 6.22 – *Superposition de la mesure du plateau de la section efficace du carbone effectuée sur la plate-forme PEREN avec les données évaluées et expérimentales récentes. La courbe du haut s'étend de 0 à 200 eV et l'erreur associée à la mesure est représentée par la zone grisée. La courbe du bas montre l'ensemble du domaine énergétique de validité des mesures.*



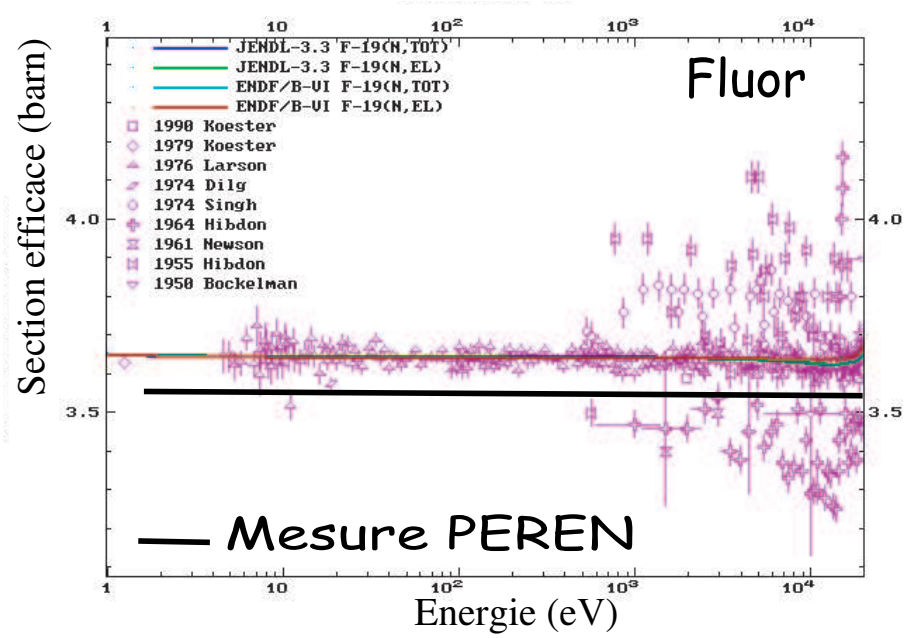


FIG. 6.23 – *Superposition de la mesure du plateau de la section efficace du fluor effectuée sur la plateforme PEREN avec les données évaluées et expérimentales existantes. La courbe du haut s'étend de 0 à 200 eV et l'erreur associée à la mesure est représentée par la zone grisée. La courbe du bas montre l'ensemble du domaine énergétique de validité des mesures.*

Chapitre 7

Sections efficaces totales sur le carbone et le fluor entre 200 et $600\,keV$: validation des bases de données.

7.1 Introduction

Une série d'expériences visant à déterminer les sections efficaces totales sur le carbone et le fluor à différentes énergies de neutrons a été réalisée en collaboration avec le groupe Aval du Cycle et Énergie Nucléaire du CENBG. Ces mesures s'inscrivent de manière complémentaire à celles effectuées sur PEREN. Les conditions expérimentales au CENBG nous ont permis d'explorer une gamme énergétique de mesure s'étendant de $200\,keV$ à $600\,keV$.

Les sections efficaces totales sur le carbone et le fluor issues de la base de données $ENDF$ sont représentées Fig 7.1.

Entre $200\,keV$ et $600\,keV$, la section efficace totale sur un noyau de carbone se confond avec la section efficace de diffusion élastique. En revanche, un neutron peut interagir selon trois voies de réactions sur un noyau de Fluor :

- voie 1 : diffusion élastique.
- voie 2 : diffusion inélastique conduisant au premier état excité du Fluor.
- voie 3 : diffusion inélastique conduisant au deuxième état excité du Fluor.

La présente étude est basée sur la transmission de neutrons à travers un échantillon de matière. Un ensemble de mesures par transmission à travers des échantillons de graphite pur permettra d'extraire la section efficace totale sur le carbone σ_C. Le Fluor n'existant à l'état solide que lié, la transmission à travers des échantillons de Téflon (de composition chimique CF_2) nous mènera à la section efficace totale sur le Fluor définie par l'intermédiaire de la relation suivante :

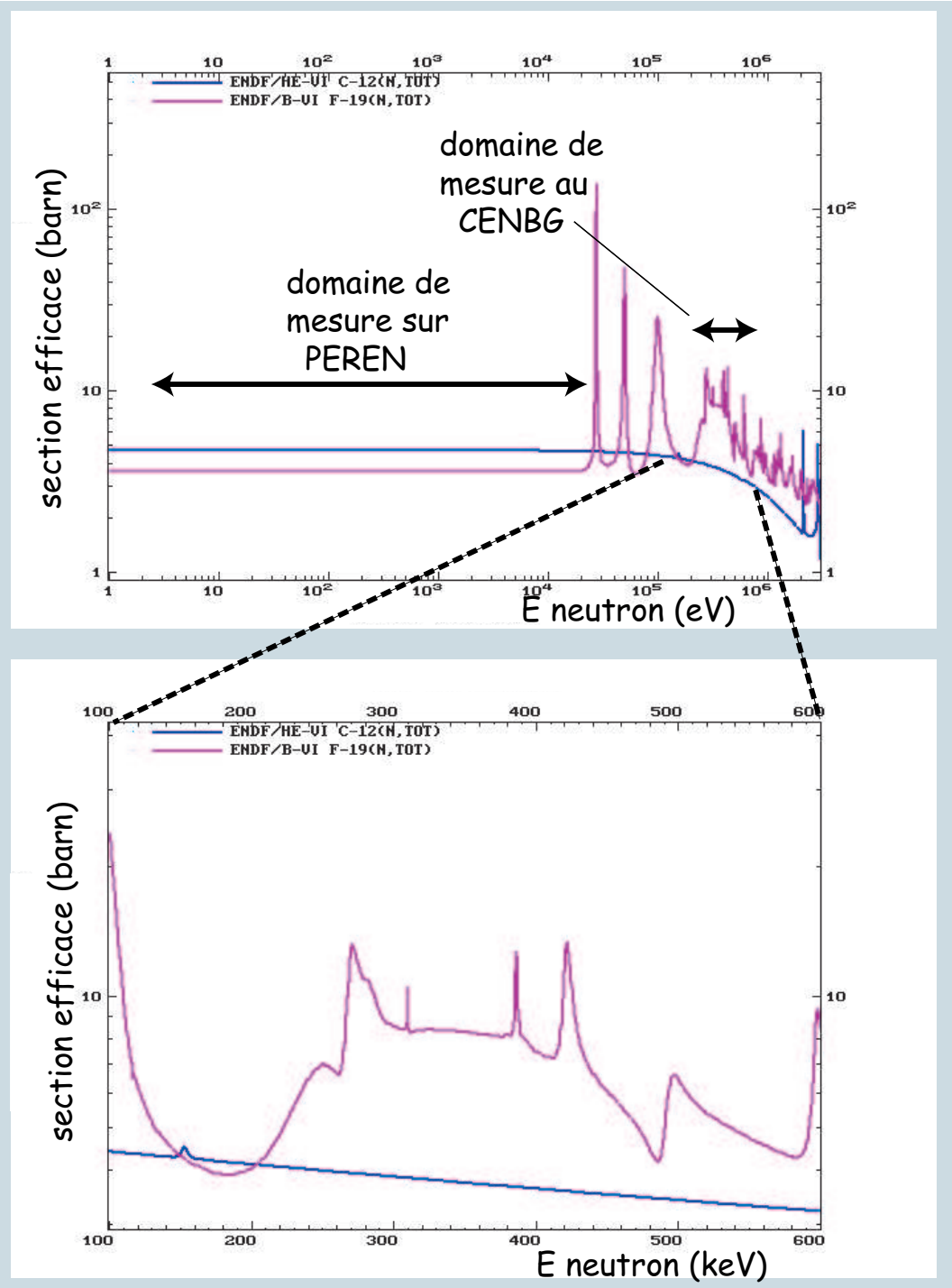


FIG. 7.1 – *Sections efficaces du Carbone (courbe bleue) et du Fluor (courbe violette) issues de la base de données ENDF. Les courbes du haut sont représentées sur un large spectre énergétique, tandis que celles du bas montrent notre domaine de mesure.*

$$\sigma_T = \sigma_C + 2\sigma_F \tag{7.1}$$

Nous pourrons donc, ayant préalablement déterminé σ_C, en déduire la section efficace totale sur le Fluor σ_F.

Nous allons maintenant décrire le principe d'une mesure par transmission avant d'expliciter les parties constituantes de l'expérience. Un modèle théorique ainsi qu'une modélisation par simulation numérique de l'expérience seront réalisés, avant de passer à l'analyse des mesures.

7.2 Description de l'expérience

Nous avons représenté le schéma expérimental figure 7.2 qui nous permet de définir trois ensembles distincts :

- la cible de production de neutrons.
- l'échantillon composé de Graphite ou de Téflon, suivant la section efficace que nous cherchons à mesurer.
- le détecteur de neutrons.

Nous les décrirons après avoir introduit le principe de la mesure par transmission.

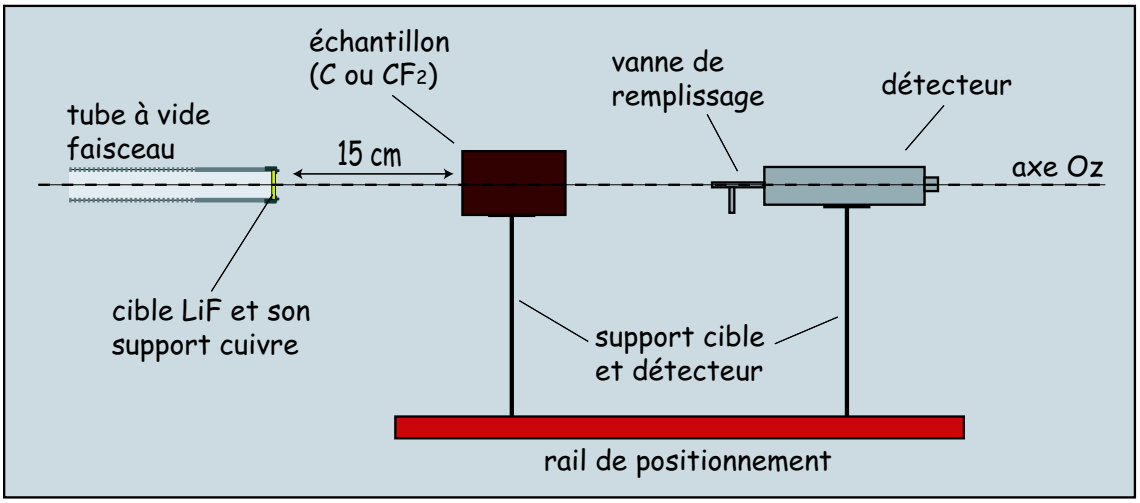


FIG. 7.2 – *Schéma du montage expérimental.*

Indiquons les notations qui seront conservées tout au long de ce chapitre :

- Ep_0 est l'énergie d'un proton arrivant sur la cible de LiF.
- Ep est l'énergie d'un proton ralenti dans la cible de LiF.

- E_0 est l'énergie d'un neutron émis dans l'axe du faisceau incident et produit dans la cible de LiF par un proton d'énergie Ep_0.
- E est l'énergie d'un neutron produit dans la cible de LiF par un proton ralenti à l'énergie Ep.
- ν est le cosinus de l'angle d'émission du neutron par rapport à l'axe du faisceau dans le référentiel du laboratoire.
- Le nombre de neutrons détectés, d'énergies comprises entre E et $E+dE$, lors d'une mesure par transmission à travers un échantillon de longueur L sera noté $N(L,E)dE$.
- Le taux de transmission de neutrons d'énergies comprises entre E et $E+dE$ à travers un échantillon de longueur L, défini comme le rapport du nombre de neutrons détectés avec échantillon $N(L,E)dE$ à celui des neutrons détectés sans échantillon $N(0,E)dE$, sera noté $\Gamma(L,E) = \frac{N(L,E)}{N(0,E)}$.

7.2.1 Principe de la mesure

Le principe de mesure de la section efficace totale d'un matériau par transmission est relativement simple. Nous considérons (figure 7.3), un flux de neutrons parallèle à l'axe Oz d'énergie E pénétrant en $z=0$ à l'intérieur d'un matériau diffuseur. Ce flux est alors atténué par les réactions nucléaires des neutrons sur les noyaux du milieu ; nous cherchons alors à déterminer le flux de neutrons $N(L,E)$ sortant du cylindre en $z=L$.

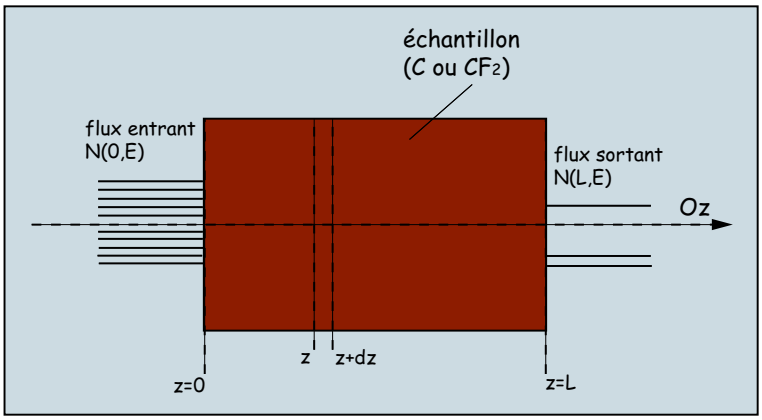


FIG. 7.3 – *Schéma de principe de la transmission de particules à travers un matériau. Le taux de transmission se définit comme le rapport du flux entrant $N(L,E)$ au flux sortant $N(0,E)$; il illustre l'atténuation du flux incident dans le matériau.*

Par unité de temps et pour des neutrons d'énergie comprise entre E et $E+dE$, la différence entre le nombre de neutrons traversant une surface perpendiculaire à Oz en $z+dz$ et celui traversant une surface perpendiculaire à Oz en z est proportionnelle à ce dernier. La constante de proportionnalité est la probabilité d'interaction d'un neutron entre z et $z+dz$ qui s'écrit $\frac{dz}{\lambda(E)}$ où $\lambda(E)$ est le libre parcours moyen du neutron d'énergie E dans le matériau considéré :

$$N(z+dz,E)-N(z,E)=-N(z,E)\frac{dz}{\lambda(E)} \tag{7.2}$$

Nous pouvons facilement intégrer cette équation différentielle entre $z=0$ et $z=L$:

$$N(L,E)=N(0,E)e^{\left(-\frac{L}{\lambda(E)}\right)} \tag{7.3}$$

Le taux de transmission tel que nous l'avons défini s'exprime donc de la manière suivante [So62] :

$$\Gamma(L,E)=e^{-\frac{L}{\lambda(E)}} \tag{7.4}$$

En explicitant le libre parcours moyen d'un neutron dans un matériau en fonction de l'énergie tel que :

$$\lambda(E)=\frac{A}{\rho N_a\sigma(E)} \tag{7.5}$$

où A, ρ, et N_a représentent respectivement la masse molaire du matériau, sa masse volumique et le nombre d'Avogadro, $\sigma(E)$ étant la section efficace microscopique totale du matériau à l'énergie E, nous obtenons un expression simple de la section efficace :

$$\sigma(E)=-\frac{A}{\rho N_a L}\ln\left(\Gamma(L,E)\right) \tag{7.6}$$

La section efficace microscopique totale d'un matériau se déduit donc du taux de transmission à travers un échantillon de longueur L.

7.2.2 La source de production de neutrons

Les neutrons sont produits par la réaction endothermique :

$$p\ +\ {}^{7}Li\ \rightarrow\ {}^{7}Be\ +\ n\ +\ Q \tag{7.7}$$

Avec une chaleur de réaction $Q=-1.64\,MeV$. Les protons incidents fournis par un accélérateur électrostatique de type Van de Graaff [Gr05] entrent en collision en bout de ligne avec une cible de Fluorure de Lithium (LiF) déposé sur une rondelle de cuivre de $0.5\,mm$ d'épaisseur. La cible de LiF utilisée durant toute l'expérience a une épaisseur de $400\,\mu g.cm^{-2}$.

L'énergie des neutrons est liée à celle des protons incidents et au cosinus de l'angle d'émission du neutron dans le référentiel du laboratoire par la relation suivante :

$$E=\left(\frac{1}{2}\left(\frac{\sqrt{Ep}}{4}\nu+\sqrt{\frac{Ep}{16}+3Ep+\frac{7}{2}Q}\right)\right)^2 \tag{7.8}$$

Cette fonction est tracée figure 7.4 pour une émission dans l'axe du faisceau incident, soit pour $\nu=1$.

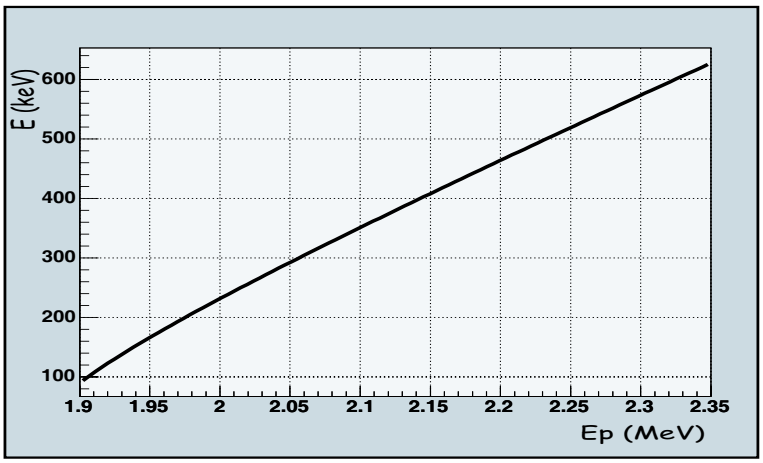


FIG. 7.4 – *Énergie des neutrons émis à* $0°$ *en fonction de l'énergie des protons incidents dans le référentiel du laboratoire.*

7.2.3 Les échantillons de Graphite et de Téflon

Les échantillons sont, pour les deux matériaux, de forme cylindrique. Nous avons quatre échantillons différents (deux en graphites et deux en Téflons) de même diamètre mais de longueur (orientée selon l'axe *Oz*) variable . Il y a donc, pour un matériau donné, trois configurations expérimentales possibles dont nous précisons les paramètres table 7.1.

	longueur (cm)	densité ($g.cm^{-3}$)
Téflon	2.01	2.167 ± 0.010
	4.00	
	6.01	
Graphite	2.01	1.870 ± 0.006
	3.95	
	5.96	

TAB. 7.1 – *Caractéristiques des échantillons de graphite et de Téflon.*

Le libre parcours moyen λ d'un neutron d'énergie E dans un milieu étant donné par la relation (7.5), nous pouvons en déduire l'ordre de grandeur de celui-ci dans le Graphite et le Téflon. L'énergie de neutron de notre domaine énergétique menant au plus grand libre parcours moyen est $E \sim 570\,keV$. Nous obtenons dans ce cas $\lambda_C \approx 3.5\,cm$ et $\lambda_T \approx 3.3\,cm$ où les indices C et T sont relatifs au carbone et au Téflon. Pour $E \sim 250\,keV$, nous trouvons $\lambda_C \approx 2.7\,cm$ et $\lambda_T \approx 2.1\,cm$, ce qui correspond à l'ordre de grandeur du plus petit libre parcours moyen d'un neutron sur le carbone dans

l'intervalle énergétique expérimenté. Nous avons donc des échantillons dont les longueurs sont de l'ordre de une à trois fois le libre parcours moyen des neutrons.

7.2.4 Le système de détection et d'acquisition

Le détecteur de neutrons est un compteur proportionnel représenté Fig 7.2 et détaillé Fig 7.5.

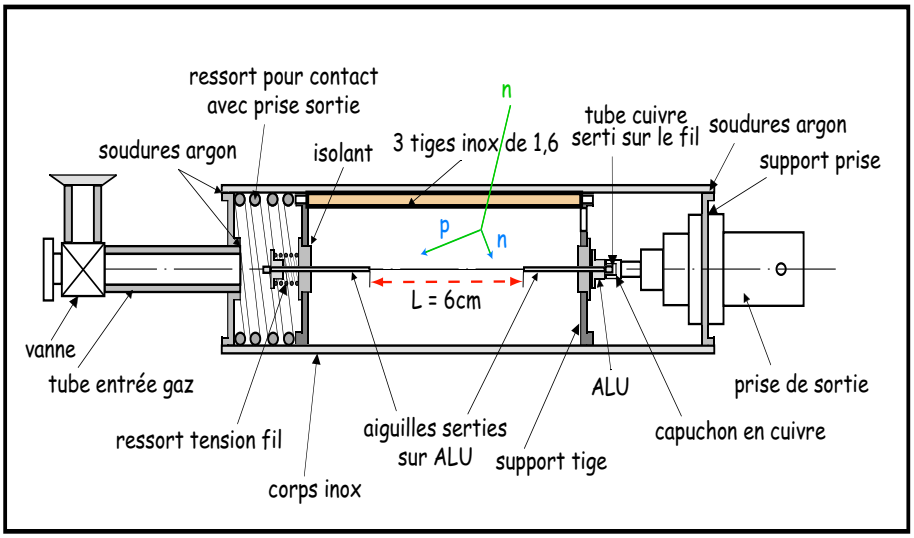


FIG. 7.5 – *Schéma détaillé du détecteur à protons de recul.*

C'est un cylindre d'inox rempli d'hydrogène à la pression de $4\,bars$. Il détecte les neutrons par diffusion élastique sur les protons du milieu qui perdent leur énergie en ionisant le gaz. L'amplitude du signal fourni est proportionnel à la perte d'énergie du proton dans le gaz. Ce type de détecteur à hydrogène est fréquemment utilisé pour des neutrons d'énergies comprises entre $20\,keV$ et $3\,MeV$.

Lorsqu'un neutron d'énergie E entre en collision avec un atome d'hydrogène du milieu, l'énergie E_H transférée au proton s'écrit :

$$E_H = \frac{1}{2}(1+\cos\theta)E \tag{7.9}$$

où θ est l'angle de diffusion du proton dans le référentiel du centre de masse. La distribution angulaire dans le centre de masse étant isotrope , soit $P(\cos\theta) = \frac{1}{2}$ (ce qui est vrai pour des énergies de neutrons inférieures à quelques MeV), la distribution énergétique des protons associés à des neutrons d'énergie E définie par :

$$P(E_H) = P(\cos\theta)\frac{d(\cos\theta)}{dE_H} \tag{7.10}$$

s'explicite de la forme suivante :

$$P(E_H)dE_H = \frac{1}{E}dE_H \tag{7.11}$$

Nous pouvons donc conclure de ce qui précède que dans un cas idéal, la réponse du détecteur face à un faisceau de neutrons mono-cinétiques d'énergie E se distribuera selon une constante entre le canal 0 et celui correspondant à l'énergie des neutrons. Dans la réalité, nous sommes loin de ce cas idéal, et nous allons maintenant expliquer qualitativement pourquoi.

Une caractéristique physique importante est le parcours projeté des protons dans l'hydrogène. La densité du gaz (considéré comme un gaz parfait) dans le détecteur est reliée à la pression par :

$$\rho = \frac{AP}{RT}.10^{-6} \tag{7.12}$$

où A est la masse molaire du gaz (égale à $1\,g.mol^{-1}$ dans ce cas), $P = 4.10^5 Pa$ est la pression, $T = 300\,K$, la température et R la constante de Boltzmann. Nous obtenons alors la masse volumique du gaz $\rho = 1.6.10^{-4}\,g.cm^{-3}$. Nous pouvons alors tracer le parcours issu des bases de données nucléaires [Be05] en fonction de l'énergie transmise aux protons (cf Fig 7.6). Nous remarquons que le parcours projeté varie quasi-linéairement en fonction de l'énergie entre 0.1 et $2\,cm$. Le volume actif du détecteur étant de $6\,cm$ de longueur pour une surface d'environ $0.5\,cm^2$, un nombre non négligeable de protons ne perdront pas la totalité de leur énergie dans le détecteur. Ce phénomène, que l'on appelle "effet de bord" entraîne la perte de proportionnalité entre l'amplitude des signaux délivrés et l'énergie des neutrons détectés.

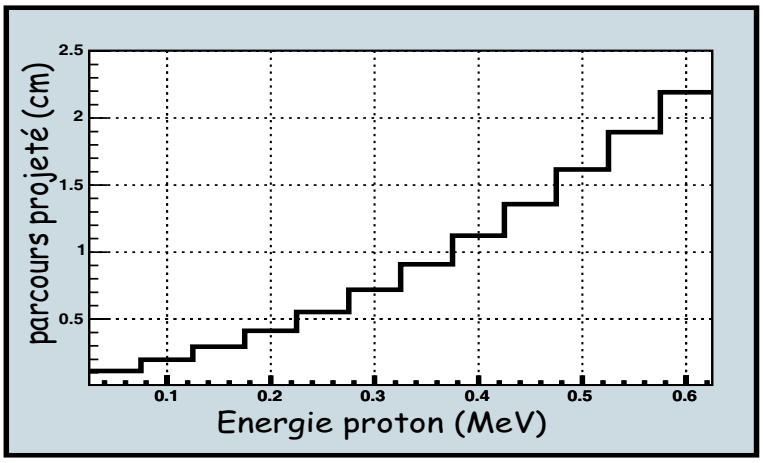


FIG. 7.6 – *Parcours moyen des protons dans l'hydrogène à 4 bars de pression en fonction de leur énergie.*

Pour une énergie de protons de recul donnée, la réponse du détecteur se distribuera selon une gaussienne dont la largeur à mi-hauteur dépendra de la résolution de notre détecteur. Cet effet de

résolution aura pour conséquence une chute progressive et non “piquée” de la réponse du détecteur vers l’énergie maximale des neutrons. Nous pouvons alors prévoir en première approximation la forme des spectres (cf figure 7.7) en énergie que nous allons obtenir avec notre détecteur.

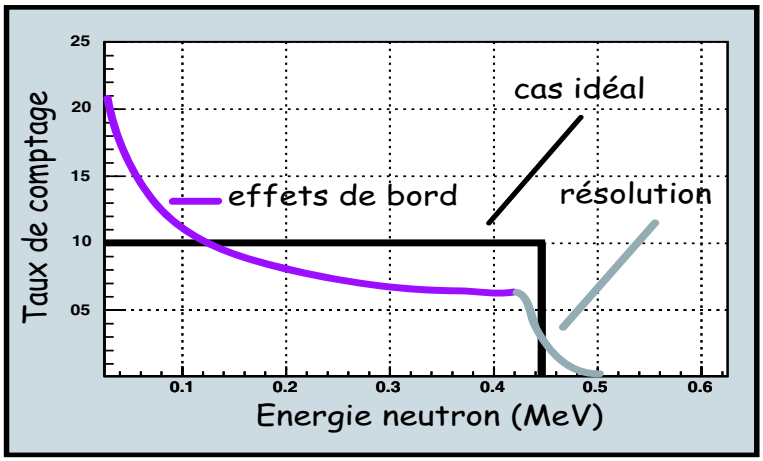


FIG. 7.7 – *Réponse attendue du détecteur où est représenté en noir le cas idéal (résolution parfaite et sans effet de bord). La courbe en violet prend en compte l’effet de bord, d’où un déplacement des hautes énergies vers les plus basses, tandis que la courbe grisée montre l’effet d’une résolution énergétique d’une dizaine de %.*

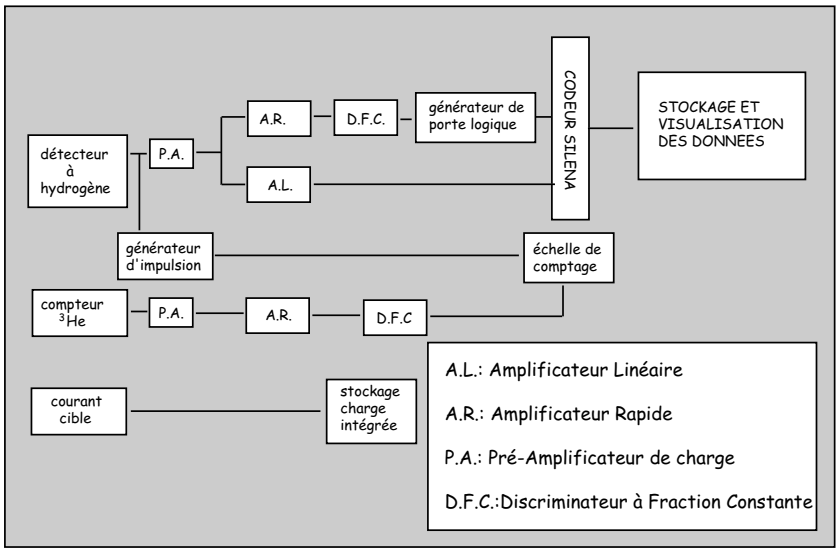


FIG. 7.8 – *Schéma de la chaîne d’acquisition.*

Le montage électronique associé à l’expérience est représenté figure 7.8.

Une impulsion créée par un générateur à fréquence ajustable est envoyée à travers le système de mesure, tel que l'est le signal du détecteur. Cette impulsion est stockée simultanément par l'acquisition de données et par une échelle de comptage indépendante. Le rapport entre le taux de comptage de l'échelle N_e et de l'analyseur N_{acq} permet alors de déterminer la correction de temps mort de la chaîne d'acquisition représentée par le paramètre $\tau = \frac{N_{acq}}{N_e}$.

Le taux de comptage issu d'un compteur ^3He situé dans l'axe du faisceau derrière le détecteur de neutron est stocké sur l'échelle de comptage, permettant ainsi une évaluation du flux de neutrons dans la salle. Le courant généré par le faisceau incident est converti en charge puis intégré afin d'évaluer le flux de protons au niveau de la cible.

7.2.5 Les mesures : description et normalisation

Pour effectuer nos mesures de sections efficaces, nous avons réalisé, pour une énergie de protons incidents Ep_0 fixée, une série de treize acquisitions. Les six mesures effectuées avec les six longueurs d'échantillon, sont encadrées par une mesure sans échantillon. Cela nous permettra d'une part de prendre en compte l'usure éventuelle de la cible de production et d'évaluer d'autre part l'erreur totale (statistique et systématique) à associer aux taux de réaction mesurés.

Nous avons expérimenté cinq énergies de protons incidents correspondant à cinq énergies de neutrons dont les valeurs pour un angle d'émission selon l'axe du faisceau incident sont explicitées tableau 7.2.

$Ep_0\,(MeV)$	2.299	2.202	2.113	2.034	2.024	1.976
$E_0\,(keV)$ à 0°	572.4	466.1	365.9	273.2	261.1	200.8

TAB. 7.2 – *Valeurs numériques des paramètres énergétiques de l'émission de neutrons. Nous avons indiqué sur la première ligne les énergies des protons des différentes expériences et l'énergie des neutrons produits dans l'axe du faisceau.*

Afin de comparer les taux de comptage à une énergie de neutrons incidente avec ou sans échantillon, il est nécessaire de les normaliser par rapport à une grandeur commune. Les deux possibilités de normalisation sont la charge intégrée au niveau du support en cuivre de la cible de production de neutrons et le taux de comptage issu du compteur ^3He. Normaliser les spectres par ce dernier est insatisfaisant car le compteur est situé dans l'axe du faisceau derrière le dispositif expérimental. Le taux de comptage sera donc dépendant de la longueur de l'échantillon de mesure et ne pourra en conséquence être interprété comme un flux absolu (par contre, il pourra être utilisé pour les mesures sans échantillons).

La première possibilité consiste à prendre pour coefficient de normalisation la charge intégrée corrigée du temps mort Q_{tm}. Lors d'une acquisition, nous définissons le facteur de correction du

temps mort $\tau = \frac{N_{acq}}{N_e}$ défini au dessus. Nous relevons ensuite la charge intégrée Q, ce qui nous permet d'en déduire la charge intégrée corrigée du temps mort telle que :

$$Q_{tm} = Q\tau \tag{7.13}$$

La normalisation par cette grandeur peut paraître critiquable, car Q_{tm} est en fait lié au flux absolu du faisceau de protons incidents et non des neutrons produits. Si en cours d'acquisition le faisceau se décentre ou si la cible s'use, alors le nombre de neutrons produits diminuera tandis que la charge intégrée n'évoluera pas. Nous pouvons nous assurer que cette normalisation convient en mesurant le rapport de Q_{tm} par le taux de comptage du détecteur ^3He corrigé lui aussi du temps mort, pour tous les spectres acquis sans échantillons à une énergie de neutrons fixée. Nous avons constaté que ce rapport ne dépasse pas le pour-cent. Le coefficient Q_{tm} est alors notre coefficient de normalisation des spectres expérimentaux.

Nous illustrons figure 7.9, à titre d'exemple, pour une énergie de neutrons incidente $E_0 = 366\,keV$ l'évolution de ce rapport en fonction de l'acquisition sans échantillon.

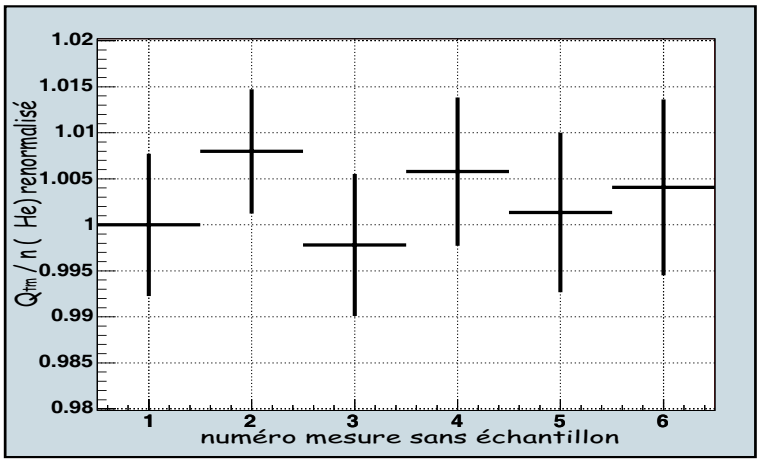


FIG. 7.9 – *Rapport entre la charge intégrée corrigée du temps mort et le taux de comptage corrigé du temps mort du détecteur* ^3He *pour une série de six mesures sans échantillon à l'énergie de neutron* $366\,keV$. *Les erreurs statistiques sont représentées. Le rapport a été renormalisé à l'unité pour la première acquisition. L'écart est au plus de l'ordre de* 0.8%.

Nous pouvons maintenant, à titre d'exemple, représenter figure 7.10 un ensemble de spectres en énergie des neutrons détectés pour quatre configurations différentes (une mesure sans échantillon et trois mesures avec les trois longueurs d'échantillon) à énergie de neutron fixée. La méthode d'étalonnage en énergie consiste simplement à associer l'énergie maximum des neutrons au dernier canal non nul du spectre sans échantillon.

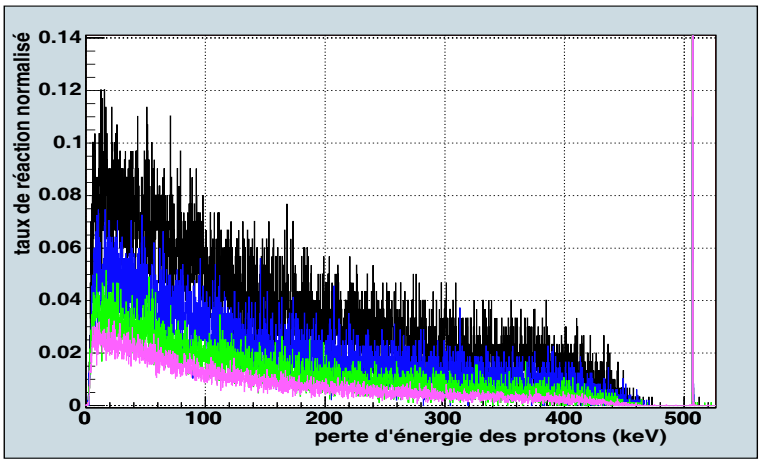


FIG. 7.10 – *Spectres expérimentaux normalisés par la charge corrigée du temps mort pour une mesure sans échantillon (courbe noire), et respectivement en rouge, bleu et violet les acquisitions avec les échantillons de carbone de* $2\,cm$, $4\,cm$ *et* $6\,cm$ *de longueur. Le pic à l'extrémité du spectre correspond au signal du générateur d'impulsion.*

7.3 Modèle théorique de l'expérience

Le modèle simple présenté au paragraphe 7.2.1 permet de comprendre le principe physique d'une mesure de section efficace par transmission. Cependant, de nombreuses corrections non négligeables sont nécessaires, afin de prendre en compte les phénomènes suivants :

- La source de neutrons n'est ni mono-énergétique, ni isotrope.
- L'anisotropie de la source est fonction de l'énergie des neutrons.
- L'efficacité de détection dépend de l'énergie des neutrons.
- Un neutron n'ayant pas les caractéristiques cinématiques initiales favorables à sa détection peut diffuser sur l'environnement expérimental et être détecté. On qualifiera de "retours" ce type de neutrons détectés. L'importance relative de ces retours dépendra du nombre de canaux pris en compte sur un spectre expérimental pour l'évaluation des taux de comptage.

Il convient maintenant de compléter les notations qui nous serviront à prendre en compte les phénomènes décrits ici. Nous appellerons :

- $\Delta E\,p_0$, la largeur énergétique des protons dans les $400\,\mu g.cm^{-2}$ d'épaisseur de la cible LiF de production de neutrons.
- ΔE_0, la largeur énergétique des neutrons émis à $0°$ induite par $\Delta E\,p_0$; l'énergie des neutrons produits dans l'axe du faisceau incident dans la cible s'étend en conséquence de $E_0 - \Delta E_0$ jusqu'à E_0.

Un taux de comptage expérimental sera évalué par intégration des spectres sur une largeur énergétique ΔE, soit entre $E_0 - \Delta E$ et E_0.

Nous allons introduire progressivement et indépendamment chaque correction en définissant à chaque étape la nouvelle expression du taux de transmission corrigé.

7.3.1 Bruit de fond issu de la cible de production de neutrons

Les neutrons sont générés dans la cible de LiF par la réaction suivante :

$$p \ + \ {}^{7}Li \ \rightarrow \ {}^{7}Be \ + \ n \ + \ Q \tag{7.14}$$

avec la chaleur de réaction $Q = -1.64\,MeV$. D'autres réactions nucléaires sont possibles entre un proton et un noyau de ${}^{7}Li$. Les deux autres voies possibles sont une voie γ (source de bruit de fond potentielle) et une voie produisant 2α non gênante, car la distance parcourue par des α d'énergie proche de $10\,MeV$ dans le support de cible en cuivre est inférieure à son épaisseur. Les autres réactions permises n'entrent pas en jeu car leur chaleur de réaction est telle que $Q \geq 2.5\,MeV$, tandis que l'énergie des protons de notre expérience ne dépasse pas les $2.3\,MeV$. Nous pouvons donc conclure qu'en dehors des γ, nous n'aurons pas de bruit de fond lié à d'autres particules générées par la source.

Une acquisition a été réalisée en intercalant entre la source et le détecteur un échantillon de polyéthylène d'une dizaine de centimètres. Dans ces conditions, les neutrons directs seront tous arrêtés par cet échantillon. Le spectre obtenu figure 7.11 contient alors des évènements relatifs aux gammas issus du LiF, ou alors aux neutrons ayant diffusés sur l'environnement expérimental pour finalement atteindre le détecteur.

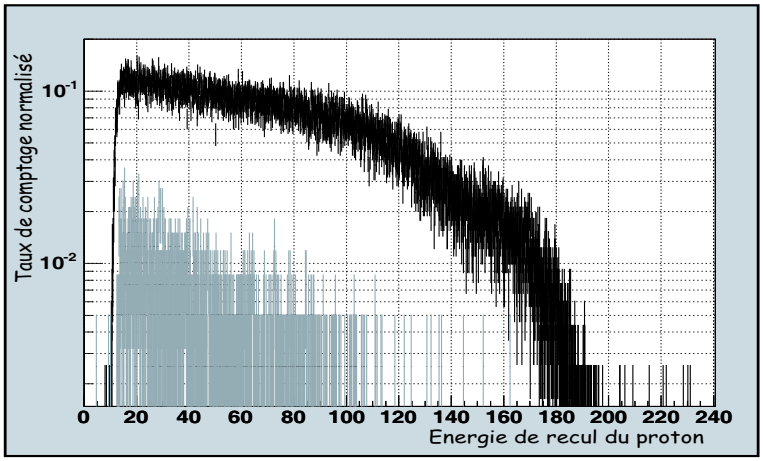


FIG. 7.11 – *Bruit de fond (courbe claire) mesuré avec l'échantillon de polyéthylène comparé à une acquisition sans échantillon (courbe noire) pour une énergie de neutron maximum de $E_0 = 200\,keV$.*

D'après les spectres de la figure 7.11, la contribution des gammas, relativement faible, se situe au maximum à une énergie de l'ordre de $120\,keV$ pour des protons de $2\,MeV$. Cette conclusion peut être

étendue à toute les énergies des protons utilisées car la voie gamma étant fortement exo-énergétique ($Q = 17.26\,MeV$), l'énergie de ces derniers sera peu dépendante de l'énergie des protons incidents.

7.3.2 Largeur énergétique de la source de neutrons

Les protons incidents d'énergie Ep_0 traversant l'épaisseur de fluorure de lithium vont perdre une certaine quantité d'énergie ΔEp_0 dans la cible. Une variation ΔEp_0 sur l'énergie des protons va donc introduire une variation ΔE_0 sur l'énergie des neutrons produits, calculable par l'expression (7.8).

La perte d'énergie des protons dans le fluorure de lithium étant tabulée [Be05], nous pouvons ajuster la courbe, dans le domaine énergétique qui nous concerne ($2\,MeV \leq Ep_0 \leq 2.3\,MeV$) par un polynôme d'ordre 2 de la forme :

$$\frac{dEp}{\rho dx} = 1.91.10^{-5} Ep_0^2 - 1.23.10^{-4} Ep_0 + 2.94.10^{-4} \tag{7.15}$$

La perte d'énergie des protons dans la cible s'exprime naturellement par :

$$\Delta Ep_0 = \left(\frac{dEp}{\rho dx}\right)_{Ep_0} \rho\Delta x \tag{7.16}$$

où $\rho\Delta x$ est l'épaisseur de la cible en $\mu g.cm^{-2}$. Le tableau 7.3 explicite, en fonction des énergies de protons utilisées, l'énergie des neutrons émis à 0°, la perte d'énergie des protons ainsi que celle des neutrons correspondante.

$Ep_0\,(MeV)$	2.299	2.202	2.113	2.034	2.024	1.976
$E\,(keV)$ à 0°	572.4	466.1	365.9	273.2	261.1	200.8
$\Delta Ep_0\,(keV)$	44.9	46.3	47.8	49.1	49.3	50.2
$\Delta E_0\,(keV)$ à 0°	48.9	51.7	55.4	60.9	61.9	69.3

TAB. 7.3 – *Perte d'énergie des protons ΔEp_0 dans les $400\,\mu g.cm^{-2}$ de Fluorure de Lithium et perte d'énergie ΔE_0 des neutrons associés pour les énergies de protons Ep_0 utilisées produisant des neutrons d'énergie E.*

Nous pouvons par ailleurs considérer que le flux de protons à travers la cible est constant, la perte de protons par réaction nucléaire étant négligeable par rapport au flux incident. Nous comprenons alors que, pour une énergie de proton incident, il y a en fait dans la cible de LiF toute une distribution énergétique qui s'étend de l'énergie initiale du proton Ep_0 jusqu'à cette énergie réduite de ΔEp_0. En conséquence, le nombre de neutrons d'énergie E générés au niveau de la cible LiF sera proportionnel à la section efficace $\sigma_{p,n}(Ep)$ de la voie neutron de la réaction p sur ^7Li, que nous avons représentée figure 7.12.

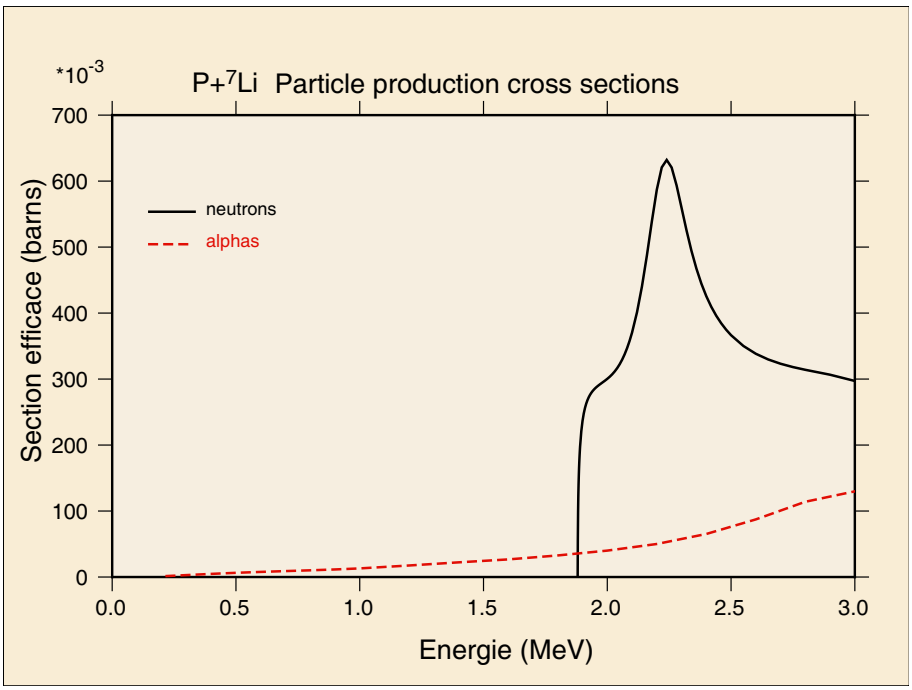


FIG. 7.12 – *Section efficace de la réaction p sur ^7Li issue de la base de données nucléaires ENDF [Ha99]. La voie neutron est en trait plein, comparée à une voie alpha, en pointillé.*

Nous pouvons extraire les données des bases pour la zone énergétique qui nous intéresse ($2\,MeV < Ep_0 < 2.3\,MeV$) et ajuster la courbe résultante (cf Figure 7.13) par un polynôme d'ordre 4.

En inversant l'équation (7.8) prise à un angle d'émission parallèle à l'axe du faisceau incident, soit $\nu = 1$, nous obtenons l'expression de Ep en fonction de E :

$$Ep(E) = \left(-\frac{\sqrt{E}}{6} + \sqrt{-\frac{7}{6}Q + \frac{49}{36}E}\right) \tag{7.17}$$

Cette transformation nous permet de passer aisément de la section efficace $\sigma_{p,n}(Ep)$ en fonction de l'énergie des protons, à cette même grandeur en fonction de l'énergie des neutrons émis à 0° : $\sigma_{p,n}(E) = \sigma_{p,n}(Ep(E))$. L'intérêt de ce dernier polynôme est qu'il nous permet d'avoir une fonction continue de E directement proportionnelle au nombre de neutrons d'énergie E émis à 0° au niveau de la cible LiF.

Le taux de transmission évalué tel que nous l'avons défini, en posant $a = \frac{A}{\rho N_a}$, se transforme alors de la façon suivante :

$$\Gamma(L,E_0) = \frac{\int_{E_0-\Delta E_0}^{E_0} \left[\sigma_{p,n}(E).e^{-aL\sigma(E)}\right] dE}{\int_{E_0-\Delta E_0}^{E_0} \left[\sigma_{p,n}(E)\right] dE} \tag{7.18}$$

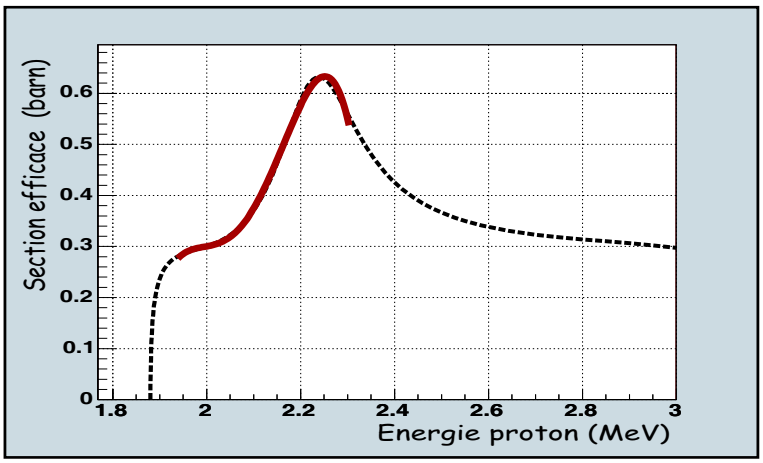


FIG. 7.13 – *Section efficace de la voie neutron issue des bases de données nucléaires et son ajustement dans la zone d'intérêt par un polynôme d'ordre* 4 *d'équation* $\sigma_{p,n}(Ep) = -3.57.10^3 + 6.92.10^3 Ep - 5.02.10^3 Ep^2 + 1.62.10^3 Ep^3 - 1.95.10^2 Ep^4$.

Cette nouvelle expression exprime le fait que le nombre de neutrons détectés d'énergie E comprise entre E_0 et $E_0 - \Delta E_0$ avec ou sans échantillon est proportionnel à la section efficace de la voie neutron $\sigma_{p,n}(E)$. Le nombre total de neutrons détectés doit alors être intégré sur toutes les énergies de neutrons générées au niveau de la cible LiF.

7.3.3 Distribution angulaire de la source de neutrons

La probabilité d'émission $P(\nu, E)dE$ d'un neutron d'énergie comprise entre E et $E + dE$ en fonction de son angle d'émission dans le référentiel du laboratoire par rapport à l'axe du faisceau étant fortement dépendante de l'énergie Ep du proton l'ayant généré, il est important de bien décrire la distribution angulaire afin d'intégrer au taux de transmission la probabilité d'émission d'un neutron vers le détecteur. En effet, le nombre de neutrons détectés d'énergie comprise entre E et $E + dE$ sera proportionnel à la probabilité d'émission d'un neutron vers le détecteur, soit pour $\nu = 1$ [1].

Représentons la distribution angulaire dans le centre de masse de l'émission de neutrons en fonction de l'énergie incidente des protons dans le référentiel du laboratoire issue de la base de données ENDF [Ha99] sur la figure 7.14.

Ces distributions angulaires ont une forme analytique connue et se présentent sous la forme d'une somme de polynômes de Legendre :

[1] *Notons que nous faisons l'approximation que la probabilité d'émission vers le détecteur est égale à la probabilité d'émission à* 0° *; ce qui est justifi é par le fait que la variation énergétique d'un neutron émis à* 0° *par rapport aux limites du détecteur est de* 0.3% *au plus.*

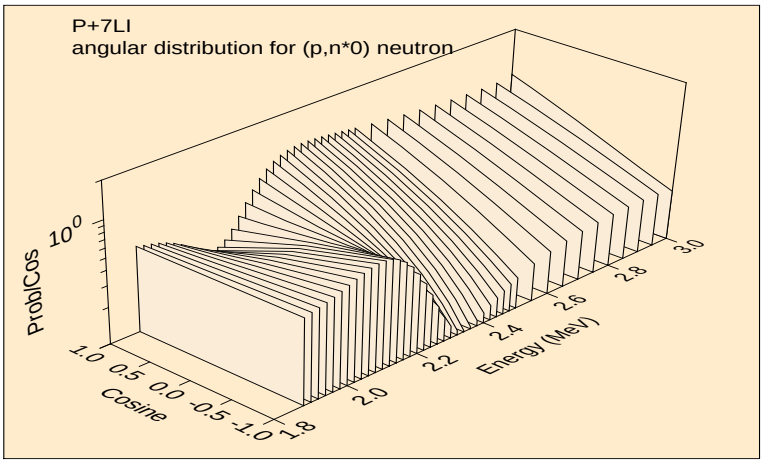


FIG. 7.14 – *Distribution de l'angle d'émission dans le référentiel du centre de masse des neutrons en fonction de leur énergie incidente dans le laboratoire.*

$$P(\mu, Ep) = 0.5 + \sum_{l+1}^{N_l} \frac{2l+1}{2} a_l(Ep) P_l(\mu) \tag{7.19}$$

où μ représente le cosinus de l'angle d'émission dans le centre de masse, N_l est l'ordre maximum, $a_l(Ep)$ sont les coefficients de Legendre (tabulés [Ha99]) qui ne dépendent que de l'énergie incidente Ep. Dans le cas de la réaction $(p,^7Li)$, seuls les deux premiers coefficients de Legendre sont non nuls, l'expression (7.19) se réduit donc à :

$$P(\mu, Ep) = 0.5 + \frac{3}{2} a_1(Ep)\,\mu + \frac{5}{4} a_2(Ep)\,(3\mu^2 - 1) \tag{7.20}$$

Les deux coefficients a_1 et a_2 ont été ajustés par deux polynômes d'ordre 3 et 4, ce qui nous permet d'obtenir une construction analytique de la distribution angulaire dans le centre de masse telle qu'elle est représentée dans les bases de données. La dernière étape pour caractériser la distribution angulaire de la source de neutrons consiste à passer du référentiel du centre de masse à celui du laboratoire pour obtenir la distribution du cosinus de l'angle d'émission dans le laboratoire en fonction de l'énergie incidente. Nous avons la relation de passage entre les deux référentiels :

$$P(\nu, Ep) = p(\mu, Ep) \frac{d\mu}{d\nu} \tag{7.21}$$

La relation qui lie le cosinus de l'angle d'émission dans le centre de masse μ à celui dans le référentiel du laboratoire ν est donnée par :

$$\mu = \frac{\nu - K(\nu, Ep)}{\sqrt{1 - 2K(\nu, Ep)\nu + K(\nu, Ep)^2}} \tag{7.22}$$

où la fonction K est définie par :

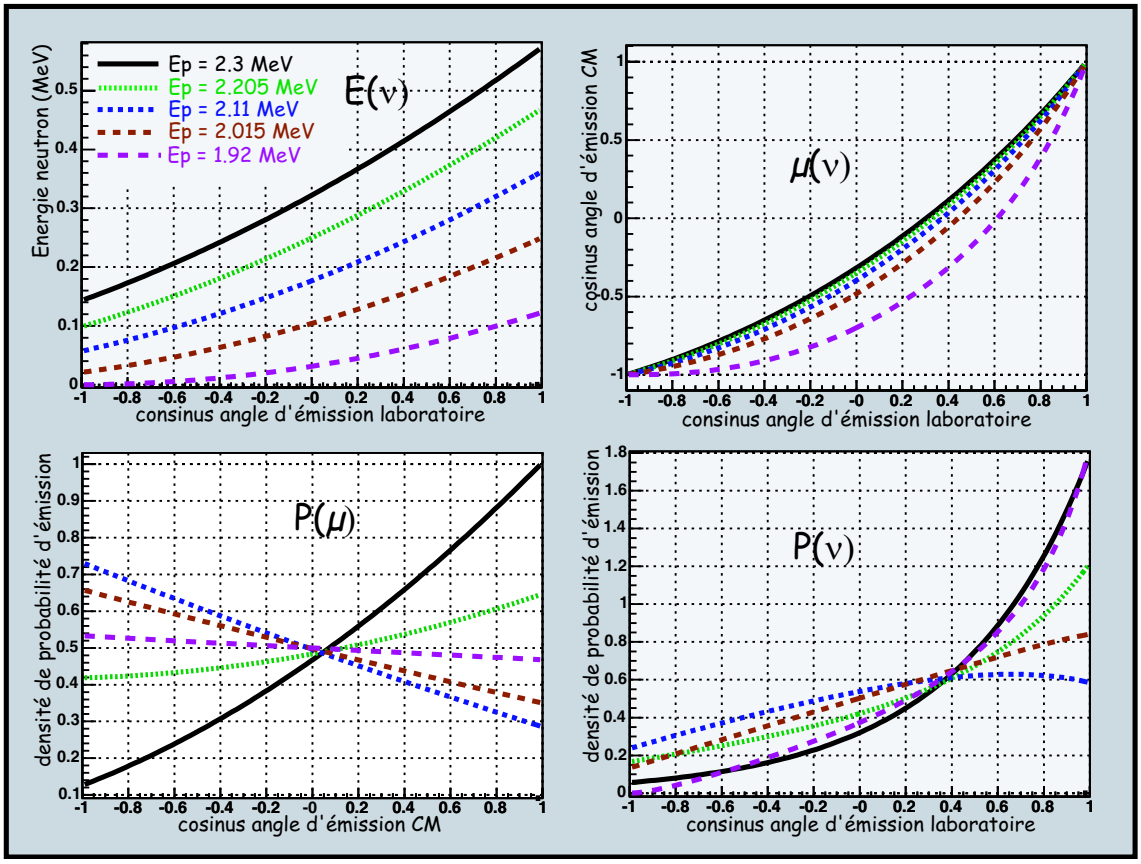


FIG. 7.15 – *Reconstruction de la distribution angulaire des neutrons dans le référentiel du laboratoire. La courbe en haut à gauche représente l'énergie des neutrons en fonction de l'angle d'émission dans le laboratoire pour différentes énergies de protons Ep (cf équation (7.8)). Nous avons aussi représenté en haut à droite la reconstruction de l'équation (7.22). Les distributions angulaires dans le centre de masse (projection des courbes de la figure 7.14 sur l'axe des cosinus) ainsi que la transformée dans le référentiel du laboratoire sont représentées respectivement en bas à gauche puis à droite. Cinq énergie différentes explicitées sur la figure ont été tracées.*

$$K(\nu, Ep) = \frac{1}{8} C \sqrt{\frac{Ep}{E}} \tag{7.23}$$

La constante $C = \frac{m_p + M_{7_{Li}}}{m_n + M_{7_{Be}}}$ définie par le rapport des masses initiales sur finales est très proche de un. La fonction K dépend de ν par l'intermédiaire de E.

Après calcul, nous obtenons finalement la distribution angulaire dans le référentiel du laboratoire représentée sur la figure 7.15.

Il est important de noter que la transformation du centre de masse au référentiel du laboratoire entraîne dans tous les cas une anisotropie favorisant les angles avant.

Nous avons donc maintenant défini la distribution angulaire d'un neutron $P(\nu, Ep)$ généré par un proton d'énergie Ep. Prise en $\nu = 1$, et en effectuant la transformation $Ep \rightarrow Ep(E)$ définie par l'équation (7.17), nous obtenons la probabilité d'émission vers le détecteur d'un neutron d'énergie E que nous appelons $P(1,E)dE$ et que nous intégrons à l'évaluation du taux de transmission expérimental :

$$\Gamma(L,E_0) = \frac{\displaystyle\int_{E_0-\Delta E_0}^{E_0} \left[P(1,E).\sigma_{p,n}(E).e^{-aL\sigma(E)}\right] dE}{\displaystyle\int_{E_0-\Delta E_0}^{E_0} [P(1,E).\sigma_{p,n}(E)]\, dE} \tag{7.24}$$

7.3.4 Efficacité de détection

La probabilité de détection d'un neutron d'énergie comprise entre E et $E + dE$ est proportionnelle à la section efficace de diffusion élastique du neutron sur l'hydrogène contenu dans le détecteur $\sigma_{n,H}(E)$. Nous la déterminons de la même manière que précédemment en ajustant les points issus des bases de données nucléaires [Ha99] par un polynôme d'ordre 4 de la forme :

$$\sigma_{n,H}(E) = 19.5 - 9.25.10^{-2}E + 3.10^{-4}E^2 - 4.94.10^{-7}E^3 + 3.12.10^{-10}E^4 \tag{7.25}$$

où l'énergie des neutrons E correspond au domaine énergétique des protons, soit $2MeV < Ep < 2.3MeV$.

Nous allons simplifier le formalisme en introduisant la fonction $\Sigma(E)$ définie comme le produit des trois fonctions correctives que nous venons de déterminer :

$$\Sigma(E) = P(1,E).\sigma_{p,n}(E).\sigma_{n,H}(E) \tag{7.26}$$

Cette fonction a une forme relativement simple que nous représentons, ainsi que les fonctions qui la composent, figure 7.16. Le taux de transmission corrigé s'exprime alors par la relation :

$$\Gamma(L,E_0) = \frac{\int_{E_0-\Delta E_0}^{E_0} \left[\Sigma(E).e^{-aL\sigma(E)}\right] dE}{\int_{E_0-\Delta E_0}^{E_0} [\Sigma(E)]\, dE} \tag{7.27}$$

7.3.5 Bornes d'intégration des spectres expérimentaux

Un spectre expérimental représente le nombre de protons de recul détectés en fonction de l'énergie qu'ils ont perdue dans le détecteur. Le taux de transmission évalué va dépendre du nombre de canaux intégrés entre une énergie $E_0 - \Delta E$ et E_0, en appelant E_0 l'énergie maximum transférée à un proton, et ΔE l'intervalle d'intégration d'un spectre expérimental. En effet, la contribution du bruit de fond à faible énergie et des détections éventuelles de neutrons ayant diffusé sur l'environnement

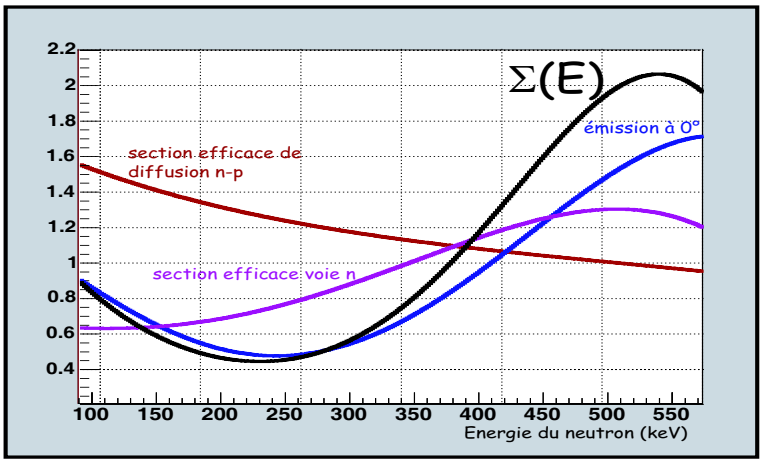


FIG. 7.16 – *Fonction $\Sigma(E)$ et les trois fonctions qui la composent. Ces fonctions ont été renormalisées afin de pouvoir comparer plus facilement leurs influences respectives sur Σ. Le taux de transmission $\Gamma(L,E)$ s'exprimant comme un rapport, est inchangé par renormalisations.*

expérimental est fonction de l'énergie, donc des bornes d'intégration du spectre expérimental. On doit donc inclure dans l'évaluation du taux de transmission expérimental le fait que nous n'utilisons pas la totalité des spectres pour la détermination des taux de comptage. En négligeant les effets de bord et de résolution (le signal expérimental serait donc, pour des neutrons énergie E, constant jusqu'à l'énergie E_0), la probabilité de détecter un neutron d'énergie E en intégrant un spectre expérimental entre $E_0 - \Delta E$ et E_0 est proportionnelle à $\omega_{\Delta E}(E)$ défini par :

$$\omega_{\Delta E}(E) = \frac{E - (E_0 - \Delta E)}{E} \tag{7.28}$$

avec la condition sur E qui s'écrit :

$$E_0 - \Delta E \leq E \leq E_0 \tag{7.29}$$

Cette fonction exprime simplement le rapport de l'aire de la réponse (considérée constante) du détecteur entre $E_0 - \Delta E$ et E sur l'aire de cette même réponse entre 0 et E.

Le taux de transmission évalué mesuré pour un échantillon de longueur L, pour des neutrons d'énergie maximum E_0 et pour une largeur ΔE d'intégration de spectre s'exprime maintenant par :

$$\Gamma_{\Delta E}(L,E_0) = \frac{\displaystyle\int_{E_0-\Delta E_0}^{E_0} \left[\Sigma(E).\omega_{\Delta E}(E).e^{-aL\sigma(E)}\right] dE}{\displaystyle\int_{E_0-\Delta E_0}^{E_0} \left[\Sigma(E).\omega_{\Delta E}(E)\right] dE} \tag{7.30}$$

7.3.6 Diffusion des neutrons sur l'environnement expérimental

En observant le schéma expérimental (figure 7.2), nous constatons que le diamètre de l'échantillon est supérieur au diamètre du cône reliant la source de neutrons au détecteur. Autrement dit, il existe un volume d'échantillon non négligeable qui ne participe pas à l'atténuation des neutrons. En revanche, comme le libre parcours moyen des neutrons est de l'ordre de grandeur de la longueur des échantillons, la probabilité de diffusion d'un neutron dans l'échantillon est élevée. On parle de multi-diffusions dans l'échantillon dans le cas d'un neutron qui n'aurait pas la direction initiale lui permettant d'atteindre le détecteur, mais qui, après une ou plusieurs diffusion dans l'échantillon dont la dernière l'orientera vers le détecteur, sera détecté. Ces neutrons (figure 7.17) vont tendre à augmenter la transmission telle qu'elle est définie par l'équation (7.24).

Par ailleurs, la mesure ne pouvant évidemment pas se faire dans un environnement vide de matière, il convient d'énoncer tous les processus possibles menant à la détection d'un neutron alors qu'il n'avait pas les conditions cinématiques initiales nécessaires à sa détection. La figure 7.17 résume les possibilités dominantes à une seule diffusion[2].Notons que parmi les possibilités représentées, nous pouvons regrouper trois courants principaux :

- le courant "naturel", constitué par les neutrons émis vers le détecteur, directement détectés ou atténués par l'échantillon dont la transmission obéit à la loi exprimée par l'équation (7.30).
- les diffusions fortuites d'un neutron ayant les caractéristiques cinématiques initiales favorables pour être détecté mais qui, en diffusant sur l'environnement, ne va pas atteindre le détecteur. Ce type de comportement va tendre à diminuer le nombre attendu de neutrons détectés. Les atténuations de ce type peuvent se produire au niveau du support de la cible LiF en cuivre puis sur la partie inox du détecteur du coté de l'échantillon. Nous avons montré que la variation induite sur l'évaluation du taux de transmission par ces atténuations successives est inférieure à un pour mille, c'est-à-dire que ces coefficients d'atténuation se compensent dans l'expression du taux de transmission, du fait qu'il s'exprime comme un rapport de deux taux de comptages.
- les diffusions d'un neutron sur l'environnement, qui orientera son vecteur vitesse vers le détecteur alors qu'il n'avait pas les conditions cinématiques initiales nécessaires à sa possible détection. Ceux-ci vont tendre à augmenter le nombre de neutrons détectés. Les neutrons peuvent diffuser sur le support cible en cuivre, sur le tube à vide en inox du faisceau de protons, sur l'air présent dans la salle et enfin sur le sol en béton.

Nous regroupons les phénomènes de diffusion sur l'environnement et de multi-diffusion sur l'échantillon dans un unique terme que nous imposons proportionnel au nombre de neutrons détectés directement sans prise en compte de ces retours. En appelant la constante de proportionnalité $r_{\Delta E}(L)$, qui

[2] *les multiples diffusions sur l'environnement ne sont pas mentionnées mais seront intégrées aux corrections effectuées par la suite.*

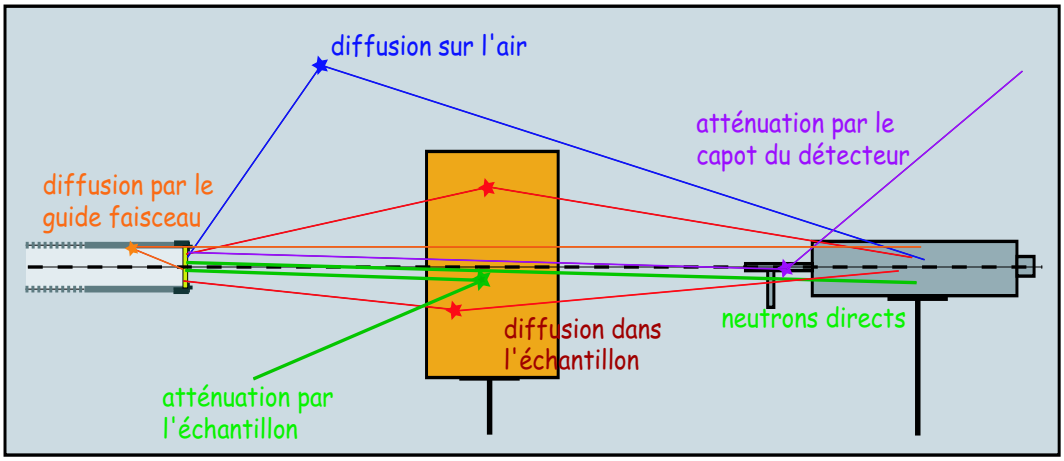


FIG. 7.17 – *Illustration des processus de diffusions dominants dans l'expérience. Les parcours schématisés en vert sont les processus de base pour la mesure par transmission tandis que les autres représentent l'ensemble des processus parasites à prendre en compte dans les corrections.*

représente le taux de retours par rapport aux neutrons directs pour un échantillon de longueur L et pour une intégration de spectre expérimental ΔE, nous obtenons alors l'expression finale du taux de transmission pour une énergie maximum de neutrons E_0 :

$$\Gamma_{\Delta E}(L,E_0) = \frac{[1+r_{\Delta E}(L)]\int_{E_0-\Delta E_0}^{E_0}\left[\Sigma(E).\omega_{\Delta E}(E).e^{-aL\sigma(E)}\right]dE}{[1+r_{\Delta E}(0)]\int_{E_0-\Delta E_0}^{E_0}[\Sigma(E).\omega_{\Delta E}(E)]\,dE} \tag{7.31}$$

Notons que le terme $r_{\Delta E}(L)$ prend en compte les multi-diffusions sur l'échantillon et l'environnement, tandis que $r_{\Delta E}(0)$, étant associé à une mesure sans échantillon ne contient que les diffusions sur l'environnement.

7.3.7 Détermination de la section efficace

Nous allons maintenant prendre en compte l'ensemble des remarques précédentes pour construire une méthode de détermination de la section efficace totale d'un matériau. Nous avons besoin de dissocier le taux de transmission mesuré $\Gamma_{\Delta E}^{exp}(L,E_0)$ du taux de transmission évalué $\Gamma_{\Delta E}^{eva}(L,E_0)$ à travers un échantillon de longueur L, à l'énergie maximum de neutron E_0 de largeur énergétique ΔE_0, pour une largeur d'intégration de spectre expérimental ΔE. Le taux de transmission expérimental est défini par :

$$\Gamma_{\Delta E}^{exp}(L,E_0) = \frac{N_{exp}(L)}{N_{exp}(0)} \tag{7.32}$$

Il représente simplement le rapport entre le nombre de neutrons transmis à travers un échantillon de longueur L détectés entre $E_0 - \Delta E$ et E_0, au nombre de neutrons détectés lors d'une mesure sans échantillon pour le même domaine d'intégration. La transmission évaluée est associée à $\Gamma_{\Delta E}(L, E_0)$ défini par l'équation (7.31). Du fait de la largeur énergétique ΔE_0 intrinsèque à la source de neutrons, nous ne pouvons effectuer qu'une mesure intégrée de $\sigma(E)$ entre $E_0 - \Delta E_0$ et E_0. Nous introduisons donc de manière *ad hoc* un degré de variation sur la section efficace contenue dans le taux de transmission évalué donné par l'équation (7.31) en considérant que la section efficace évaluée $\sigma(E)$ entre une énergie $E_0 - \Delta E_0$ et E_0 est proportionelle à celle issue des bases de données nucléaires $\sigma_b(E)$. Nous imposons donc :

$$\sigma(E) = s\sigma_b(E) \tag{7.33}$$

Le taux de transmission évalué devient donc fonction de s, d'où :

$$\Gamma_{\Delta E}^{eva}(L, E_0, s) = \frac{[1 + r_{\Delta E}(L)] \int_{E_0 - \Delta E_0}^{E_0} \left[\Sigma(E).\omega_{\Delta E}(E).e^{-aLs\sigma_b(E)}\right] dE}{[1 + r_{\Delta E}(0)] \int_{E_0 - \Delta E_0}^{E_0} [\Sigma(E).\omega_{\Delta E}(E)] dE} \tag{7.34}$$

Notre méthode de détermination de la section efficace d'un matériau diffuseur s'énonce ainsi :

- nous évaluons, par la simulation numérique, les corrections $r_{\Delta E}(L)$.
- nous évaluons, à une énergie maximum de neutrons source E_0, en fonction de s pour chaque longueur d'échantillon L, la valeur de $\Gamma_{\Delta E}^{eva}(L, E_0, s)$
- nous déterminons la valeur du coefficient s qui minimise l'écart entre les taux de transmission expérimental et évalué. Cet écart sera mis en évidence par une fonction type χ^2 que nous définissons ainsi :

$$\chi^2_{\Delta E}(E_{0,}s) = \sum_{i=1}^{3} \left[\Gamma_{\Delta E}^{eva}(L, E_0, s) - \Gamma_{\Delta E}^{exp}(L, E_0)\right]^2 \tag{7.35}$$

  où la somme s'effectue sur les trois longueurs d'échantillon utilisées, les L_i étant définis table 7.1.

Le minimum de cette fonction pour la largeur d'intégration ΔE, atteint pour $s = s_{\Delta E}$, mène donc à la section efficace totale mesurée du matériau entre l'énergie $E_0 - \Delta E_0$ et E_0 par la formule suivante :

$$\sigma_{exp}(E) = s_{\Delta E}\sigma_b(E) \tag{7.36}$$

Le fait que l'épaisseur de la cible de production induit une largeur énergétique ΔE_0 élevée pour les neutrons nous contraint à proposer une validation des bases de données nucléaires plutôt qu'une mesure proprement dite de la section efficace.

7.3.8 Estimation de l'erreur sur la section efficace

Pour ce qui concerne le taux de transmission évalué par l'équation (7.34), les origines des incertitudes quantifiables sont :

- Les erreurs statistiques et systématiques expérimentales.
- La masse volumique des échantillons de mesure.
- La détermination des corrections par la simulation numérique.

Ces dernières étant du second ordre, leurs erreurs seront d'ordre supérieur donc négligeables devant les autres sources d'incertitudes. L'incertitude sur les masses volumiques des matériaux étant de l'ordre de 0.5 %, nous les négligerons aussi. Nous supposons donc que l'erreur sur la méthode est d'origine purement expérimentale.

La fonction $\chi^2_{\Delta E}(E_{0,}s)$ définie par l'équation (7.35) étant minimisée pour $s = s_{\Delta E}$, nous avons la relation :

$$\sum_{i=1}^{3} \left[\Gamma^{eva}_{\Delta E}(L,E_0,s) - \Gamma^{exp}_{\Delta E}(L,E_0)\right] \left.\frac{\partial \Gamma^{eva}_{\Delta E}}{\partial s}\right)_{s_{\Delta E}} = 0$$

Introduisons une petite variation $\delta\Gamma^{exp}_{\Delta E}(L,E_0)$ positive sur le taux de transmission expérimental $\Gamma^{exp}_{\Delta E}(L,E_0)$ défini équation (7.32). La fonction $\chi^2_{\Delta E}(E_{0,}s)$ se transforme alors de la manière suivante :

$$\chi^{2'}_{\Delta E}(E_{0,}s) = \sum_{i=1}^{3} \left[\left(\Gamma^{eva}_{\Delta E}(L,E_0,s) - \Gamma^{exp}_{\Delta E}(L,E_0) - \delta\Gamma^{exp}_{\Delta E}(L,E_0)\right)\right]^2 \tag{7.37}$$

La dérivée de la fonction χ^2 transformée, calculée en $s = s_{\Delta E}$ est donc de la forme :

$$\left.\frac{\partial \chi^{2'}_{\Delta E}}{\partial s}\right)_{s_{\Delta E}} = -2\sum_{i=1}^{3} \delta\Gamma^{exp}_{\Delta E}(L,E_0) \left.\frac{\partial \Gamma^{eva}_{\Delta E}}{\partial s}\right)_{s_{\Delta E}} \tag{7.38}$$

Le terme $\delta\Gamma^{exp}_{\Delta E}(L,E_0)$ est par définition positif. Le terme $\Gamma^{eva}_{\Delta E}(L,E_0,s)$ représentant le taux de transmission évalué en fonction de L_i et de s, pour L et E_0 fixés, est par définition une fonction bijective décroissante entre $s = 0$ et $s \to \infty$; sa dérivée partielle par rapport à s est donc toujours négative. En conclusion, la dérivée partielle par rapport à s de la fonction $\chi^{2'}$ prise en $s = s_{\Delta E}$ associée une variation positive du le taux de transmission expérimental sera positive :

$$\left.\frac{\partial \chi^{2'}_{\Delta E}}{\partial s}\right)_{s_{\Delta E}} > 0$$

Il s'ensuit naturellement que le minimum de la fonction $\chi^{2'}_{\Delta E}(E_{0,}s)$ sera atteint pour une valeur de s inférieure à $s_{\Delta E}$. Nous illustrons par le schéma 7.18 l'ensemble des remarques précédentes.

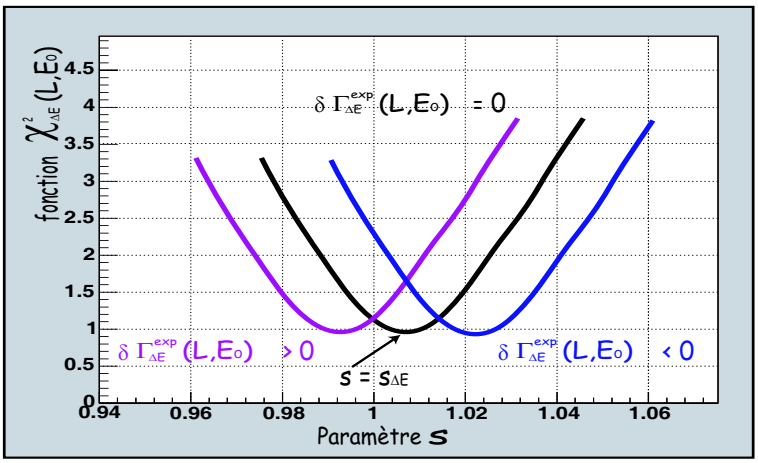


FIG. 7.18 – *Illustration de la variation de la fonction $\chi^2_{\Delta E}(E_{0,}s)$ lorsque l'on impose une variation sur le taux de transmission expérimental. Lorsque cette variation est positive, la fonction tend à se décaler sur la gauche et inversement.*

En introduisant l'erreur sur un taux de comptage expérimental $\Delta N_{exp}(L)$, nous pouvons définir l'erreur associée à un taux de transmission expérimental tels que :

$$\Delta\Gamma^{exp}_{\Delta E}(L,E_0) = \Gamma^{exp}_{\Delta E}(L,E_0)\sqrt{\frac{\Delta N_{exp}(L)}{N_{exp}(L)} + \frac{\Delta N_{exp}(0)}{N_{exp}(0)}} \tag{7.39}$$

Par suite, nous pouvons définir la fonction $\chi^2_{\Delta E}(E_{0,}s)$ avec le taux de transmission expérimental mesuré $\Gamma^{exp}_{\Delta E}(L,E_0)$, qui après minimisation, donc détermination de $s_{\Delta E}$, donnera la section efficace mesurée. La fonction $\chi^2_{\Delta E}(E_{0,}s)$ calculée avec le taux de transmission expérimental maximisé $\Gamma^{exp}_{\Delta E}(L,E_0) + \Delta\Gamma^{exp}_{\Delta E}(L,E_0)$ donnera la limite inférieure de la barre d'erreur par $s^-_{\Delta E}$, tandis que le même calcul avec $\Gamma^{exp}_{\Delta E}(L,E_0) - \Delta\Gamma^{exp}_{\Delta E}(L,E_0)$ mènera à la limite supérieure de la barre d'erreur de la section efficace mesurée par l'intermédiaire de $s^+_{\Delta E}$.

7.4 Modélisation de l'expérience par le code MCNP

La modélisation complète et précise de la géométrie comme de la source de neutrons est nécessaire pour l'estimation des corrections représentées par le terme $r_{\Delta E}(L)$ défini au paragraphe 7.3.6. Nous allons ici décrire les étapes de construction de la simulation numérique.

7.4.1 La géométrie

Nous avons reproduit dans la simulation numérique le schéma expérimental représenté figure 7.2.

La ligne faisceau a été reproduite incluant le tube à vide du faisceau en inox, la cible *LiF* ainsi que le support cible en cuivre. Nous avons aussi inclut à la simulation numérique les échantillons ainsi qu'un modèle de détecteur simplifié composé d'un capot en inox rempli de 4 *bars* d'hydrogène. L'environnement est composé d'air ambiant et du sol en béton incluant une fosse à neutrons située à une cinquantaine de centimètre sous la ligne expérimentale.

La géométrie MCNP est représentée figure 7.19.

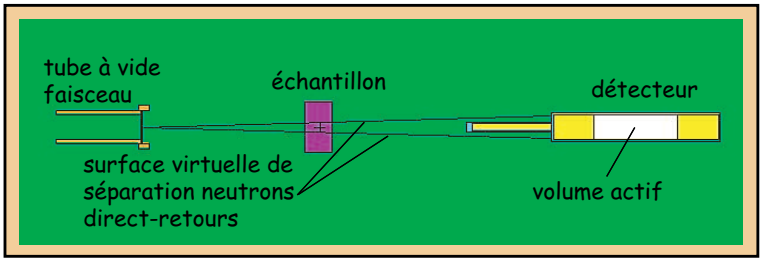


FIG. 7.19 – *Représentation à l'échelle de la géométrie MCNP. Nous avons appelé surface virtuelle de séparation neutrons directs-retours un cône de sommet situé au niveau de la source de neutrons et dont les limites coïncident avec le volume actif du détecteur.*

7.4.2 La source de neutrons

Il nous a fallu construire un fichier source prenant en compte les caractéristiques cinématiques de l'émission de neutrons et l'intégrer à la simulation. Nous avons déjà défini précisément (§ 7.3.2 et § 7.3.3) les caractéristiques d'émission de la source de neutrons. En conservant les notations habituelles, la méthode d'écriture d'une ligne de fichier source se résume ainsi :

- les trois variables position sont imposées au centre de la cible de production de neutrons, ce qui revient à négliger l'étalement spatiale du faisceau de protons incidents.
- l'énergie du proton Ep qui interagit avec le ^7Li est déterminée aléatoirement entre Ep_0 et $Ep_0 - \Delta Ep_0$ d'après la fonction $\sigma(Ep)$.
- nous en déduisons la distribution angulaire dans le centre de masse correspondante (figure 7.14).
- nous effectuons la transformation centre de masse - référentiel du laboratoire décrite paragraphe 7.3.3, qui nous donne la distribution angulaire dans le référentiel du laboratoire.
- l'angle d'émission θ du neutron dans le référentiel du laboratoire est généré aléatoirement conformément à la distribution précédemment déterminée.
- l'énergie du neutron est déterminée à partir de Ep et de $\nu = \cos\theta$ par la formule (7.8).
- l'instant de création du neutron ainsi que le poids sont imposés à $t = 0$ et $W_n = 1$.

Cette opération est répétée un million de fois, ce qui correspond finalement à un fichier source comprenant un million de neutrons de conditions cinématiques initiales différentes.

7.4.3 Réponse modélisée du détecteur

Le code de calcul MCNP ne permettant pas le transport des protons, nous ne pouvons extraire la réponse du détecteur d'une simulation numérique. En revanche, nous pouvons extraire, en fonction de l'énergie des neutrons, la distance qu'ils parcourent dans une cellule entre deux interactions. Si cette cellule est vide de matière, alors la distance extraite de la simulation numérique se confond avec la distance parcourue en ligne droite par un neutron dans cette cellule. Le libre parcours moyen d'un neutron dans l'hydrogène contenu dans le détecteur est de l'ordre d'une dizaine de mètres, sa probabilité d'interaction avec le gaz est par conséquent relativement faible. Nous pouvons alors considérer que la probabilité de diffusion d'un neutron sur un proton dans le volume actif du détecteur est proportionelle à la distance que parcourrait le neutron dans ce volume vide de matière. Il importe donc d'effectuer la simulation numérique en imposant un volume actif du détecteur vide. L'extraction de la longueur parcourue par les neutrons en fonction de leur énergie dans ce volume est proportionnelle au taux de réaction des neutrons $\eta(E)dE$ sur l'hydrogène du détecteur en fonction de l'énergie.

Nous pouvons alors nous approcher de la réponse du détecteur moyennant deux approximations qui consistent à négliger les effets de bord et de résolution du détecteur[3]. En effet, nous avons montré (cf paragraphe 7.2.4) que dans ces conditions, la réponse du détecteur à une diffusion d'un neutron d'énergie E sur un proton se distribuerait selon une constante (formule (7.11)) entre le canal 0 et E. Nous devons effectuer la transformation suivante sur tous les canaux d'un spectre simulé :

$$\eta(E)dE,\ E\,\varepsilon\,[E,E+dE] \Longrightarrow \frac{1}{E}\eta(E_1)dE_1,\ E_1\,\varepsilon\,[0,E+dE] \tag{7.40}$$

Cela revient en fait à distribuer un canal de poids $\eta(E)dE$, de largeur dE associé à l'énergie E sur tous les canaux d'énergie inférieure à E en multipliant le poids $\eta(E)dE$ par la probabilité $\frac{1}{E}$ d'appartenir à un canal d'énergie inférieure.

Nous illustrons la réponse simulée du détecteur $\omega_t(E)$ en fonction de la perte d'énergie des protons pour le point à l'énergie $E = 466\,keV$ sur la figure 7.20.

7.5 Analyse

7.5.1 Détermination des retours avec MCNP

Les corrections sont contenues dans le paramètre $r_{\Delta E}(L)$ défini paragraphe 7.3.6. Ce dernier représente la proportion des retours par rapport aux neutrons directs détectés sans interaction avec l'environnement. Nous avons deux méthodes pour l'évaluer à l'aide du code MCNP.

[3] *Cette approximation peut paraître abusive, mais la modélisation de l'expérience par la simulation numérique nous servira uniquement à effectuer des corrections du second ordre sur l'évaluation du taux de transmission.*

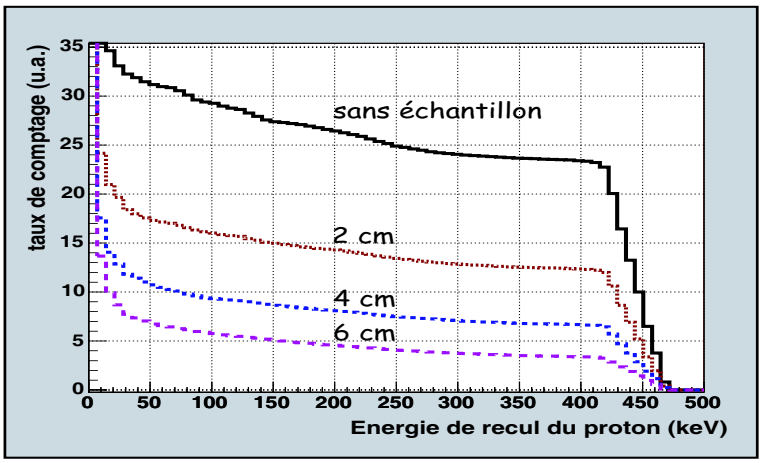


FIG. 7.20 – *Reconstitution des spectres expérimentaux pour une énergie de neutron $E_0 = 466\,keV$. Les courbes noire, rouge, bleue et violette représentent respectivement les simulations numériques relatives aux mesures sans échantillon et avec échantillons de $2\,cm$, $4\,cm$ et $6\,cm$ de longueur.*

La première consiste à extraire le taux de comptage des neutrons dans le volume actif du détecteur en fonction de leur énergie. Les retours étant constitués de neutrons ayant diffusé au moins une fois, ceux laissant une trace dans des canaux d'énergie inférieure à l'énergie de la source constituent les retours. Néanmoins, étant donnée la largeur énergétique de la source ΔE_0, nous ne pourrions pas dans ce cas différencier une partie des retours des neutrons issus de la source.

La deuxième méthode nécessite l'utilisation de la surface virtuelle introduite dans la géométrie définie par un cône de sommet coïncidant avec la source et dont l'angle solide correspond aux limites du volume actif du détecteur (cf. figure 7.19). Nous avons la possibilité avec MCNP, de marquer les neutrons qui traversent une cellule ou une surface donnée. Si nous faisons l'hypothèse, à vérifier, que la totalité des retours sont des neutrons qui ont traversé au moins une fois cette surface, alors la détermination des retours consiste simplement à calculer le rapport entre le taux de comptage simulé des neutrons marqués ayant atteint le détecteur sur le taux de comptage des neutrons directs.

Nous allons nous servir de la première méthode appliquée à des simulations utilisant une source de neutrons mono-énergétiques pour vérifier l'hypothèse de la validité de l'utilisation de la surface virtuelle. Il convient donc de déterminer dans ce cas précis le taux de comptage des neutrons en fonction de leur énergie dans le détecteur pour une source de neutron mono-énergétique et isotrope et de comparer les retours déterminés par la première et la seconde méthode.

Illustrons la méthode sur une simulation numérique avec un échantillon de Graphite de $6\,cm$ de longueur (pour lequel le taux de retour est maximum) et une source de neutrons d'énergie $E_0 = 450\,keV$. Nous représentons alors le taux de comptage en fonction de l'énergie pour les neutrons directs et les neutrons marqués sur la figure 7.21.

Appelons N_{s1} le nombre total de neutrons d'énergie $E_0 = 450\,keV$. N_{r1} représente le nombre de

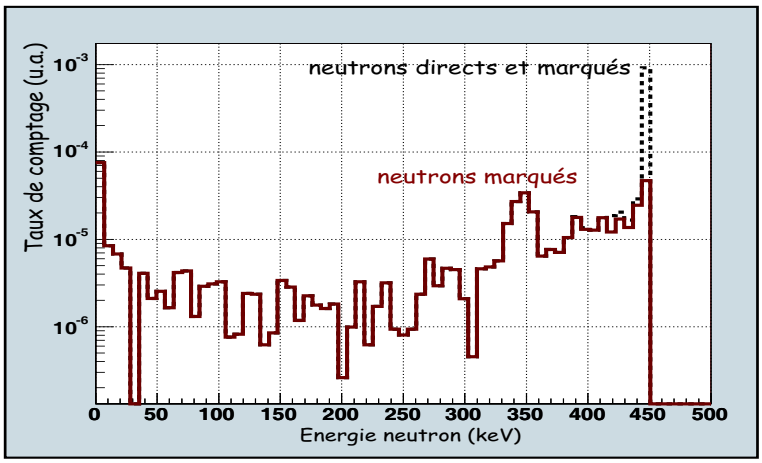


FIG. 7.21 – *Taux de comptage en unité arbitraire des neutrons dans le volume actif du détecteur en fonction de l'énergie. La courbe pointillée représente la totalité des neutrons ayant traversé le détecteur, tandis que la courbe en trait plein représente les neutrons qui ont atteint le détecteur après avoir franchi la surface conique. À partir du canal d'énergie* $400\,keV$*, les deux courbes sont confondues.*

neutrons intégré sur toutes les énergies telles que $E < E_0$. Nous pouvons donc définir le taux de retour $r_1(L)$ pour $L = 6\,cm$ calculé par la méthode 1 tel que :

$$r_1(6) = \frac{N_{r1}}{N_{s1}} \tag{7.41}$$

Le taux de retours par la deuxième méthode se calcule comme le rapport entre le taux de comptage des neutrons marqués N_{r2} intégré sur tout le spectre et le taux de comptage des neutrons directs issus de la source N_{d2}, défini comme la différence entre le flux total au canal d'énergie E_0 et le flux marqué au même canal. Dans ce cas, nous avons :

$$r_2(6) = \frac{N_{r2}}{N_{d2}} \tag{7.42}$$

Pour la simulation représentée figure 7.21, nous avons évalué l'écart relatif entre les deux méthodes :

$$1 - \frac{r_1(6)}{r_2(6)} = 0.013 \tag{7.43}$$

Nous pouvons donc conclure que les deux méthodes de détermination des retours sont équivalentes. Nous utiliserons donc la deuxième méthode car elle est la seule applicable dans notre cas.

Dans le paragraphe 7.4.3, nous avons décrit la méthode d'extraction de la réponse du détecteur par le code MCNP. Nous avons donc, associée à une simulation, la réponse totale simulée $\omega_t(E)$ du détecteur en fonction de la perte d'énergie des protons. Nous pouvons de la même manière extraire la réponse associée aux neutrons marqués ayant traversé la surface conique que nous appelons $\omega_r(E)$. À titre d'exemple, nous représentons figure 7.22, pour une énergie de neutron $E_0 = 466.1\,keV$, la

réponse totale modélisée $\omega_t(E)$ ainsi que la contribution des retours dans le détecteur $\omega_r(E)$.

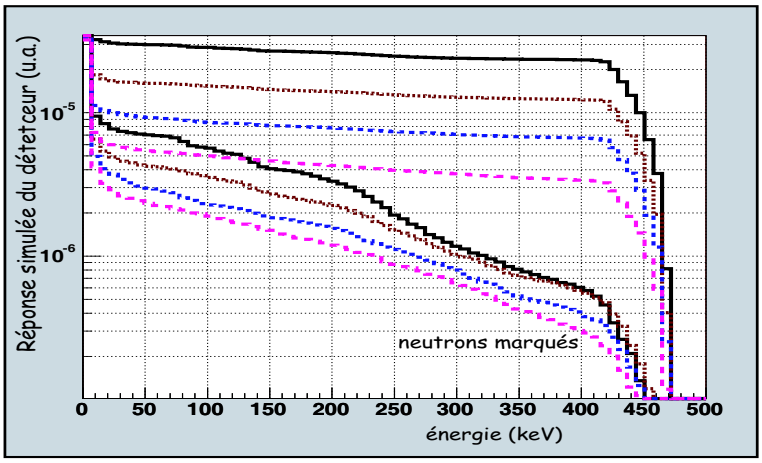


FIG. 7.22 – *Réponse totale simulée du détecteur à $E_0 = 466.1\,keV$ et contribution des neutrons marqués pour une simulation numérique d'une mesure sans échantillon (courbes noires) et avec échantillon de $2\,cm$ de longueur (courbes rouges), de $4\,cm$ (courbes bleues) et de $6\,cm$ (courbes violettes).*

Le taux de retour, pour une largeur d'intégration de spectre ΔE, est défini par la méthode 2 :

$$r_{\Delta E}(L) = \frac{\displaystyle\int_{E_0-\Delta E}^{E_0} \omega_t(E)dE}{\displaystyle\int_{E_0-\Delta E}^{E_0} (\omega_t(E) - \omega_r(E))\,dE} - 1 \tag{7.44}$$

Il est alors aisé d'évaluer cette grandeur pour toutes les énergies et pour les différentes longueurs d'échantillon de carbone ou de Téflon. Nous avons tracé $r_{\Delta E}(L)$ sur la figure 7.23.

7.5.2 Stabilité de la source de neutrons

Au cours de l'expérience, les réactions nucléaires au niveau de la cible de production de neutrons ainsi que l'extraction de molécules de LiF due au faisceau incident devraient tendre à diminuer la production de neutrons au cours du temps. Nous pouvons visualiser cet effet potentiel, en représentant toutes les mesures sans échantillon (rangées dans l'ordre temporel croissant) associées à une énergie de neutron E_0. La figure 7.24 nous montre clairement que la dispersion des taux de comptage (d'origine statistique et systématique) ne permet pas de mettre en évidence une diminution de la production de neutrons. Nous la négligerons donc par la suite, ou plutôt l'intégrerons à l'erreur totale sur un taux de comptage, que nous allons définir maintenant.

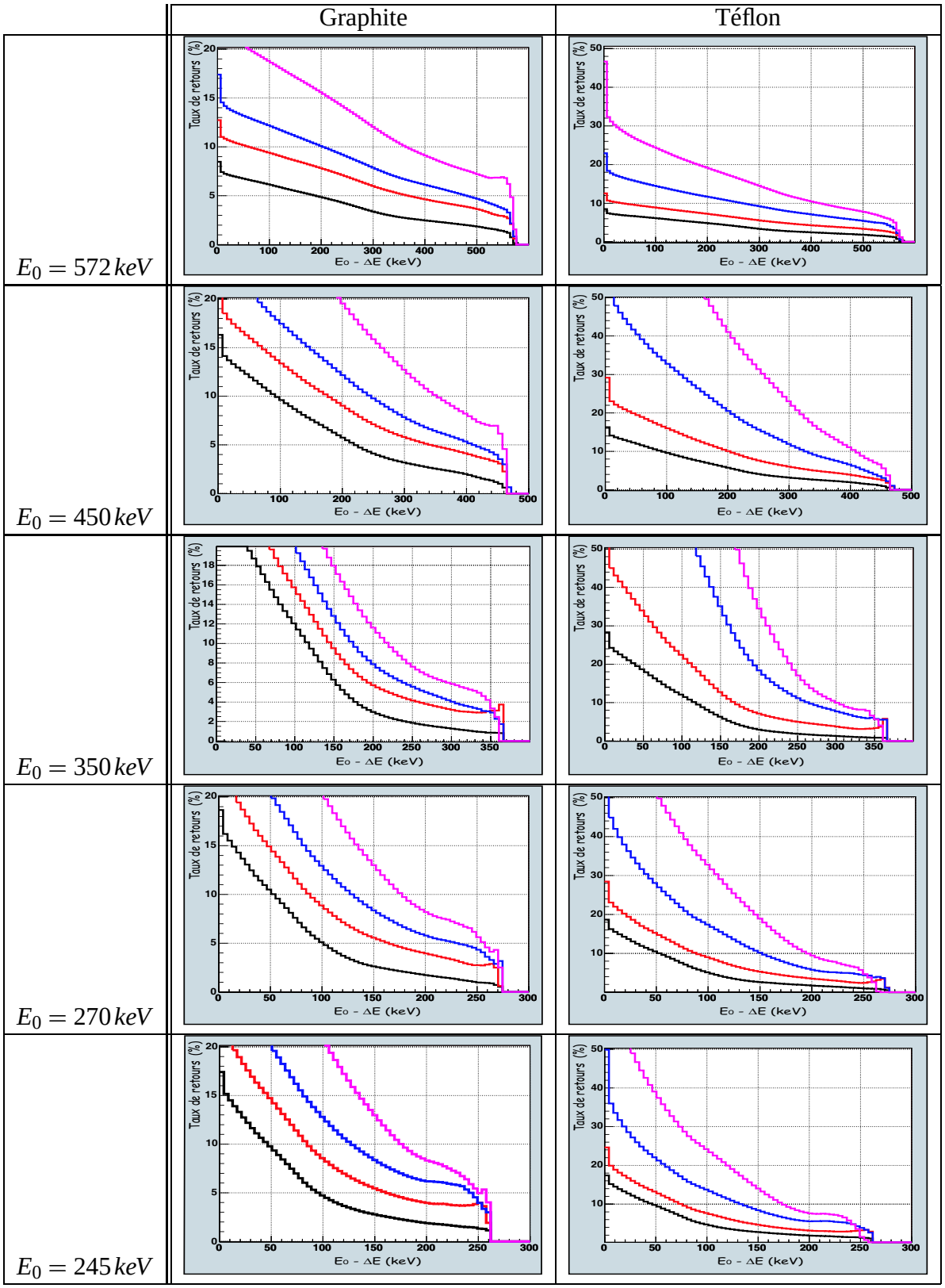


FIG. 7.23 – *Évaluation du taux de retour en pour-cent* ($100.r_{\Delta E}(L)$) *par rapport aux neutrons directs en fonction de la variable* $E_0 - \Delta E$. *Cette variable représente la borne inférieure d'intégration d'un spectre expérimental.*

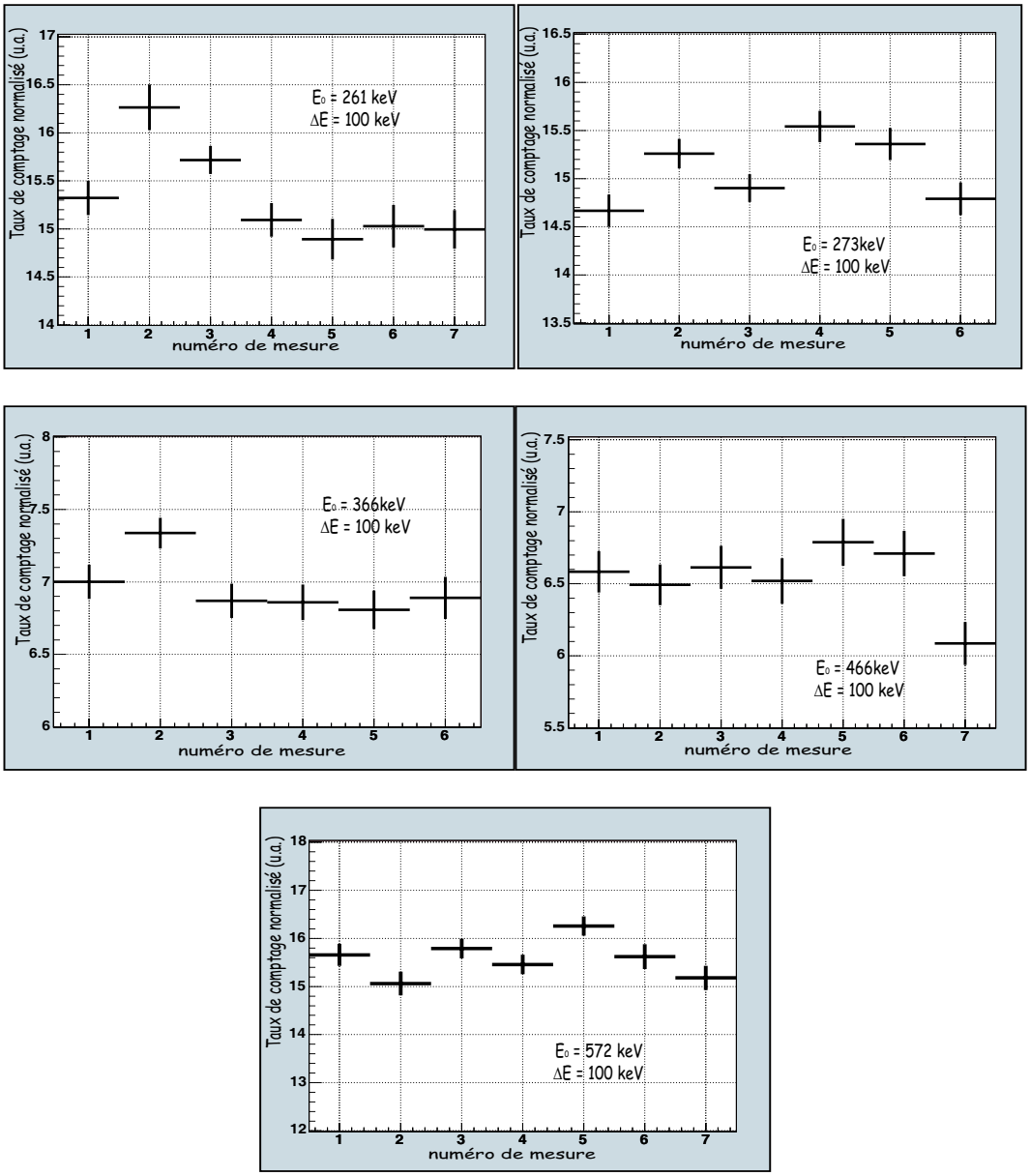


FIG. 7.24 – R*epréseintation des taux de comptage normalisés par la charge intégrée au niveau de la cible LiF (acquisitions sans échantillon) pour les cinq énergies de neutrons. Nous avons choisi arbitrairement une largeur d'intégration des spectres expérimentaux de* $100\,keV$. *Les barres d'erreurs représentées correspondent à l'erreur statistique uniquement.*

7.5.3 Erreur total sur un taux de comptage

L'erreur sur un taux de comptage dépend des incertitudes statistiques et systématiques. Ces dernières peuvent avoir différentes origines telles que :

- La normalisation par la charge intégrée qui dépend de la production de neutrons par l'intermédiaire du courant incident.
- La production des neutrons peut fluctuer en fonction de la focalisation du faisceau.
- La position de l'échantillon n'est pas rigoureusement identique d'une acquisition à une autre.

Comme nous n'avons pas accès à la quantification de ces erreurs, nous allons définir une méthode visant à déterminer une expression moyenne de l'erreur totale sur un taux de comptage.

Pour les cinq énergies de neutrons, nous avons représenté, sur la figure 7.24, les taux de comptage des mesures sans échantillon. Ces mesures étant physiquement identiques, nous pouvons alors définir une valeur moyenne du taux de comptage pour chaque énergie :

$$\langle N_{exp}(0)\rangle = \frac{1}{n}\sum_{i}^{n} N_{exp_i}(0) \tag{7.45}$$

où n représente le nombre de mesures sans échantillon effectuées à une énergie. Nous pouvons aussi définir l'écart type par :

$$\Delta N_{exp}(0) = \sqrt{\frac{1}{n}\sum_{i}^{n}\left(N_{exp_i}(0) - \langle N_{exp}(0)\rangle\right)^2} \tag{7.46}$$

Nous montrons sur la figure 7.25, pour chaque énergie de neutrons et pour un ensemble d'acquisition sans échantillon, la moyenne des erreurs statistiques et les écart-type associés en fonction de la borne d'intégration minimum des spectres expérimentaux. Nous identifierons par la suite l'écart-type expérimental des taux de comptage sans échantillon avec l'erreur totale associée à un taux de comptage sans échantillon.

Nous remarquons que les erreurs totales ne dépassent pas les 5%, valeur atteinte pour le domaine d'intégration de spectre expérimentale minimum du point à $572\,keV$. Un domaine d'intégration un peu plus grand conduit vite à des erreurs totales ne dépassant pas les 2.5%, ce qui est relativement satisfaisant.

Il nous reste maintenant à déterminer l'erreur totale à associer à un taux de comptage sur une acquisition avec échantillon pour laquelle nous n'avons qu'une seule mesure (à une énergie de neutron donnée). Nous allons donc faire l'approximation que l'erreur relative totale sur un taux de comptage de mesure avec échantillon est égale à l'erreur relative totale du taux de comptage sans échantillon :

$$\frac{\Delta N_{exp}(L)}{N_{exp}(L)} = \frac{\Delta N_{exp}(0)}{N_{exp}(0)} \tag{7.47}$$

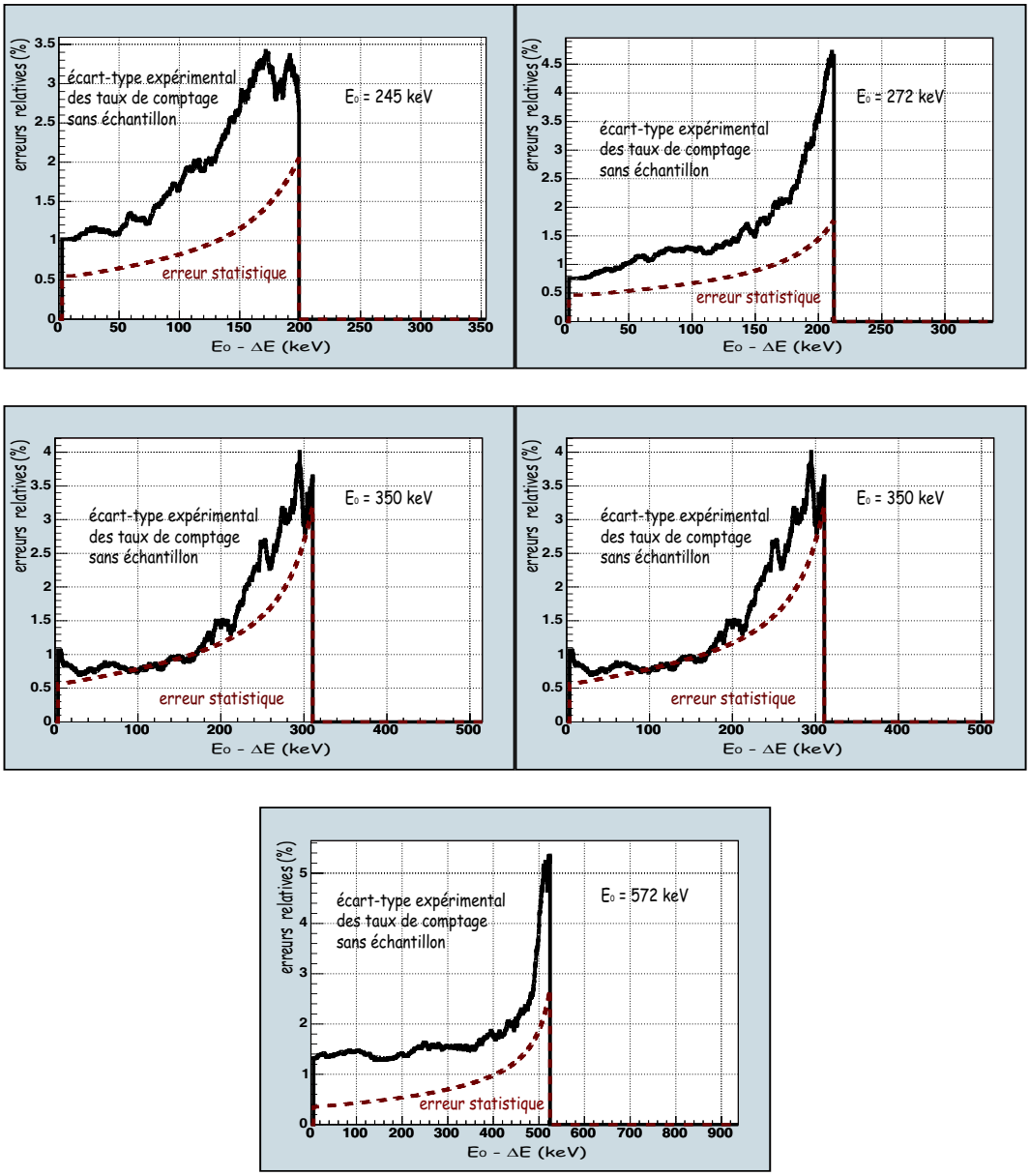


FIG. 7.25 – *Estimation de l'écart-type des distributions des taux de comptage sans échantillon (courbes en trait plein) et statistique (courbe pointillée) pour toutes les énergies expérimentées en fonction de la largeur d'intégration des spectres expérimentaux. L'erreur statistique représentée est en fait la valeur moyenne des erreurs statistiques d'un ensemble de mesures sans échantillon à une énergie de neutron donnée. Les erreurs ont été renormalisées en pour-cent.*

En déterminant la valeur des erreurs sur les taux de comptage, nous introduisant naturellement un domaine de variation sur le taux de transmission expérimental (cf. équation (7.32)) $\Gamma_{\Delta E}^{exp}(L,E_0)$ qui nous permettra de déduire l'erreur à associer aux sections efficaces que nous mesurons par la méthode définie paragraphe 7.3.8.

7.6 Détermination de la section efficace sur le carbone et le fluor

Nous allons ici développer les étapes de détermination de la section efficace définie paragraphe 7.3.7 sur un exemple précis. Puis, nous présenterons l'ensemble des résultats des mesures avec les échantillons de graphite puis de Téflon. Nous allons nous concentrer sur une mesure de transmission à travers un échantillon de graphite, pour l'énergie de neutron $E_0 = 572\,keV$ et pour une largeur d'intégration de spectre expérimental $\Delta E = 100\,keV$.

Dans ces conditions, nous trouvons expérimentalement une erreur relative sur les taux de comptage :

$$\Delta N_{exp}(L) = 2.4\% \tag{7.48}$$

Cette erreur induit une incertitude relative d'environ 3.4% sur les taux de transmission expérimentaux mesurés :

$$\Gamma_{100}^{exp}(2,572) = 0.551 \pm 0.014 \tag{7.49}$$

$$\Gamma_{100}^{exp}(4,572) = 0.300 \pm 0.007 \tag{7.50}$$

$$\Gamma_{100}^{exp}(6,572) = 0.161 \pm 0.004 \tag{7.51}$$

Toutes corrections effectuées sur l'évaluation de la transmission, nous la représentons figure 7.26 en fonction de la correction s appliquée sur la section efficace totale du carbone issue des bases de données nucléaires.

Nous pouvons donc calculer (figure 7.27) la fonction $\chi^2_{\Delta E}(E_{0,}s)$, représentative de la variation de la section efficace mesurée par rapport aux bases de données, pour les taux de transmission expérimentaux mesuré, maximisé et minimisé.

Nous obtenons donc en extrayant les trois minima des courbes représentées figure 7.27, les corrections mesurée, minimisée et maximisée sur la section efficace issus des bases de données nucléaires. Nous avons :

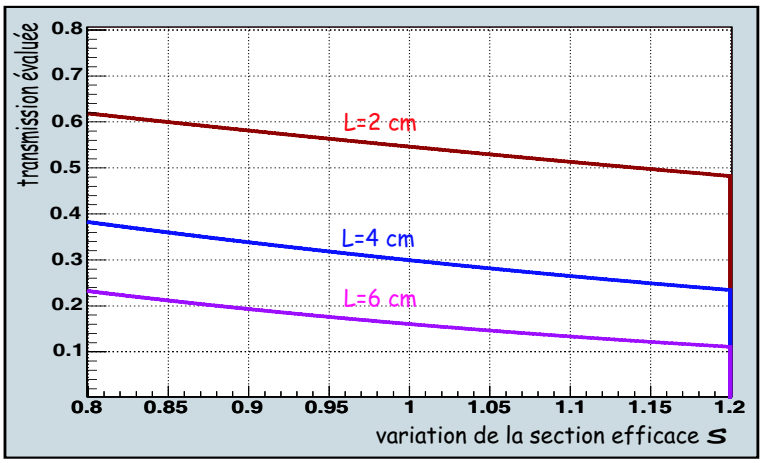


FIG. 7.26 – *Évaluation de la transmission à travers les échantillons de différentes longueurs précisées sur la figure en fonction de la variable s à l'énergie de neutron $E_0 = 572\,keV$ pour une largeur d'intégration $\Delta E = 100\,keV$. Les transmissions évaluées sont à comparer avec les taux de transmission expérimentaux explicités par les équations (7.49), (7.50) et (7.51).*

$$s_{100} = 0.996 \pm 0.024 \tag{7.52}$$

soit un écart par rapport aux bases de données nucléaires de 0.4%.

Ce qui finalement nous donne la section efficace totale du carbone mesurée entre $E_0 = 572\,keV$ et $E_0 - \Delta E_0 = 524\,keV$ ainsi que sa limite supérieure et inférieure en appliquant l'équation (7.36). La section efficace issus des bases de données, ainsi que celles mesurées sont représentées figure 7.28.

Nous trouvons donc dans ce cas de figure une section efficace totale du carbone relativement proche de celles issus des bases de données nucléaires.

Le paragraphe suivant sera la mise en pratique moins détaillée du protocole utilisé ici. En revanche, si nous avons pris un cas où la largeur d'intégration du spectre expérimentale ΔE est fixée, nous allons par la suite la faire varier et réaliser toutes les étapes décrites ici en fonction de ΔE en cherchant à représenter finalement $s_{\Delta E}$ avec ses erreurs associées.

7.6.1 Carbone

Les résultats finals sont représentés pour toutes les énergies expérimentées figure 7.29. Nous constatons qu'à toutes les énergies, en dessous d'une certaine largeur d'intégration, le coefficient $s_{\Delta E}$ tend à diminuer. En effet, les corrections dues aux retours de neutrons par diffusion sur l'environnement deviennent du même ordre de grandeur que les taux de comptage eux-même et les conditions d'applicabilités de notre méthode ne sont plus respectées. De plus, un bruit de fond γ issu de la source

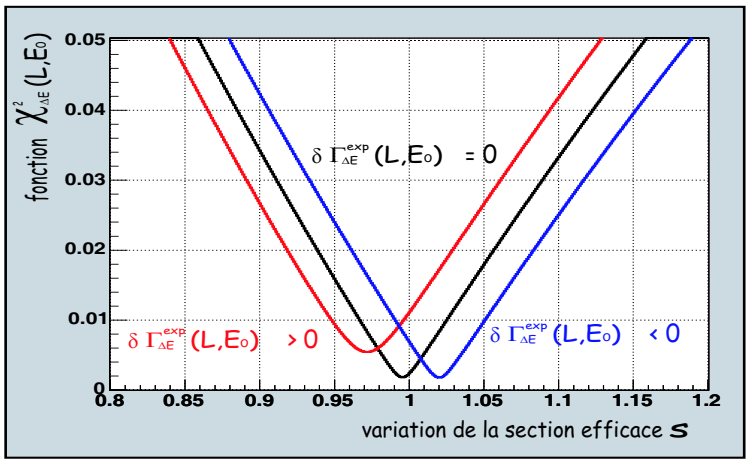


FIG. 7.27 – *Évaluation de la fonction $\chi^2_{\Delta E}$ pris pour le taux de transmission mesuré (courbe centrale), pour le taux de transmission maximisé et minimisé (courbes à gache et à droite) en fonction du facteur s appliqué à la section efficace des bases de données nucléaires. Les minimums des trois fonctions correspondent à $s_{\Delta E}$, $s^+_{\Delta E}$ et $s^-_{\Delta E}$ déterminant la section efficace totale mesurée ainsi que son erreur associée.*

est aussi envisageable pour certaines énergies. Par suite, il semble raisonnable d'extraire la correction sur la section efficace à la limite de cette zone, où $s_{\Delta E}$ est sensiblement constant.

Nous obtenons dans ces conditions, la variation sur la section efficace totale du carbone (cf tableau 7.4).

$E_0\,(keV)$	$\Delta E\,(keV)$	$s_{\Delta E}$
261	136	$0.953\pm^{0.030}_{0.028}$
273	147	$0.959\pm^{0.020}_{0.019}$
366	208	$0.954\pm^{0.020}_{0.020}$
466	284	$0.954\pm^{0.032}_{0.030}$
572	353	$0.987\pm^{0.022}_{0.021}$

TAB. 7.4 – *Correction sur la section efficace totale du carbone issus des bases de données nucléaires ainsi que ses erreurs associées. Les énergies expérimentées sont indiquées dans la colonne de gauche, ainsi que la largeur d'intégration ΔE des spectres expérimentaux utilisée pour la mesure du paramètre $s_{\Delta E}$.*

Nous pouvons alors expliciter les sections efficaces totales sur le carbone mesurées et les comparer à celles des bases de données nucléaires (cf figure 7.30).

7.6.2 Fluor

La mesure de la section efficace totale du fluor se fait de la même manière que pour le carbone. La section efficace totale du Téflon s'exprime ainsi :

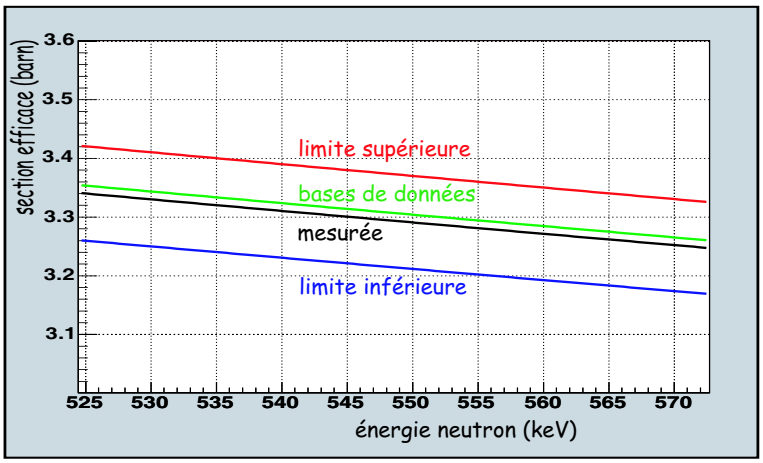


FIG. 7.28 – *La courbe verte représente la section efficace totale en fonction de l'énergie issus des bases de données nucléaires, à* 0.4% *d'écart de la courbe noire, même grandeur mesuré. Les courbes rouges et bleues permettent de visualiser l'erreur associée à la section efficace mesurée.*

$E_0\,(keV)$	$E_0 - \Delta E\,(keV)$	$s_{\Delta E}$
261	173	$0.950\pm^{0.058}_{0.053}$
273	169	$0.900\pm^{0.034}_{0.032}$
366	274	$0.986\pm^{0.043}_{0.040}$
466	303	$0.880\pm^{0.032}_{0.031}$
572	353	$0.899\pm^{0.028}_{0.027}$

TAB. 7.5 – *Corrections sur la section efficace totale du fluor des bases de données nucléaires ainsi que les erreurs associées. Les énergies expérimentées sont indiquées dans la colonne de gauche, ainsi que la largeur d'intégration* ΔE *des spectres expérimentaux utilisée pour la détermination du paramètre* $s_{\Delta E}$.

$$\sigma_T = \sigma_C + 2\sigma_F \tag{7.53}$$

En introduisant les corrections déterminées précédemment sur la section efficace du carbone, nous obtenons les spectres équivalent à la figure 7.29 pour le fluor (cf figure 7.31).

Nous obtenons dans ces conditions la variation sur la section efficace totale du fluor tableau 7.5.

De la même manière que pour le carbone, nous représentons les sections efficaces totales mesurées en les comparant à celles des bases de données nucléaires (cf figure 7.32).

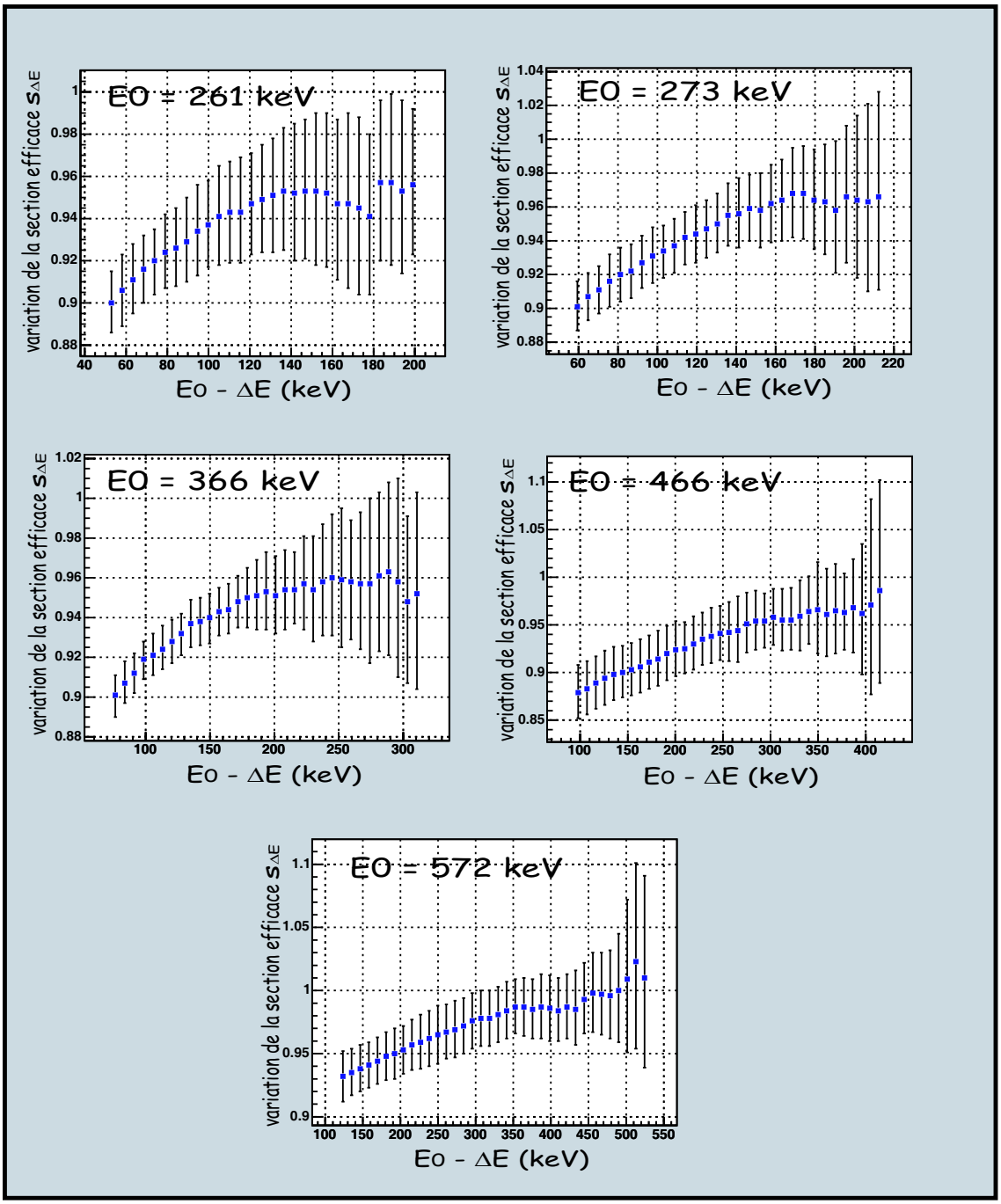


FIG. 7.29 – $s_{\Delta E}$ *en fonction de la variable* $E_0 - \Delta E$ *pour toutes les énergies de neutrons de l'expérience. La première largeur d'intégration effectuée (point le plus à droite des courbes) correspond à une intégration des spectres expérimentaux sur la largeur de la source* ΔE_0*. Les points allant de gauche à droite correspondent à une largeur d'intégration plus grande.*

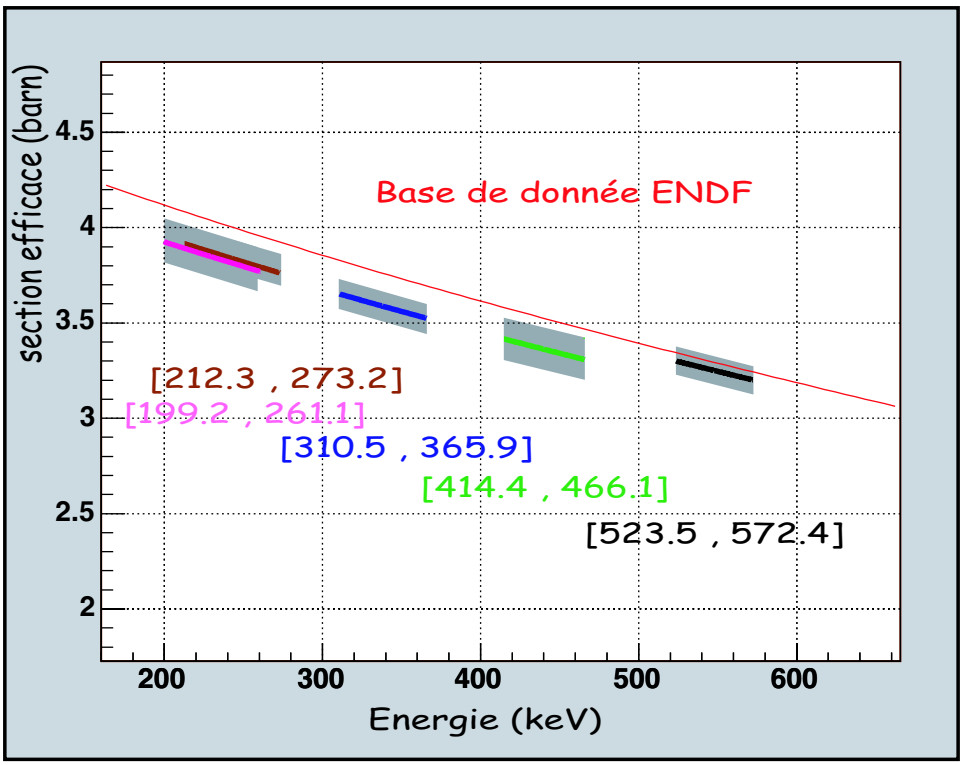


FIG. 7.30 – *Comparaison de la section efficace totale sur le carbone évaluées par ENDF et mesurées par transmission aux cinq domaines énergétiques expérimentés.*

7.7 Conclusion

Nous avons ici décrit le protocole expérimental réalisé au CENBG nous permettant de mesurer les section efficaces totales sur le carbone et le fluor entre 200 et 572 keV. Les conditions de mesures, telles que la largeur énergétique ΔE_0 de la source de neutrons, rendent impossible la mesure directe des sections efficaces en fonction de l'énergie. Nous avons donc établit un modèle permettant de réaliser une validation des bases de données nucléaires. Un écart de $4-5\%$ par rapport à $ENDF$ sur la section efficace du carbone a pu ainsi être mis en évidence pour un domaine énergétique compris entre 199 et 466 keV. Cet écart n'est plus que de 1% entre 523 et 572 keV. En ce qui concerne le fluor, les variations observées sont moins régulières et s'étendent entre 1 et 12% suivant l'énergie.

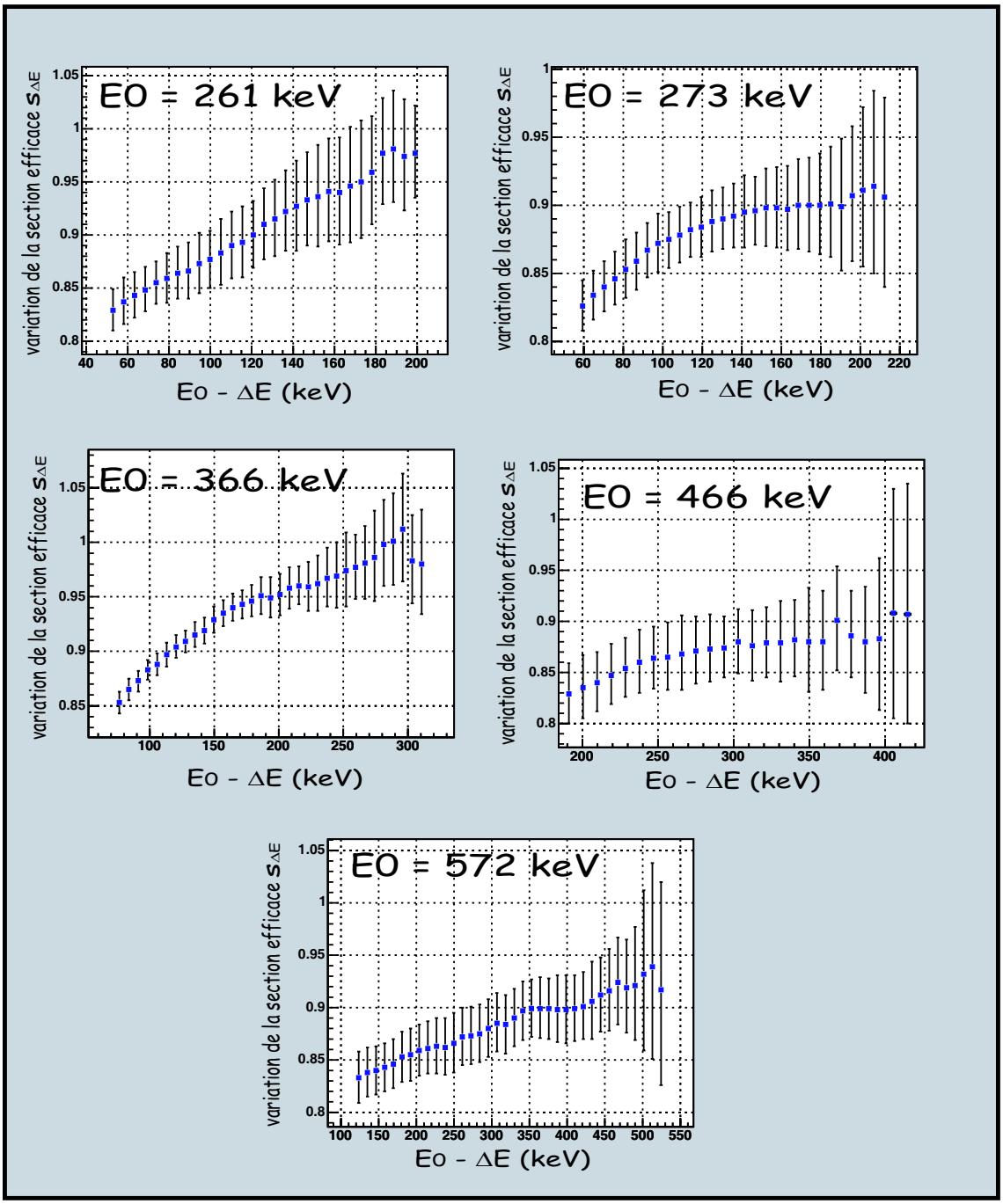


FIG. 7.31 – *$s_{\Delta E}$ appliqué au fluor en fonction de la variable $E_0 - \Delta E$ pour toutes les énergies de neutrons de l'expérience.*

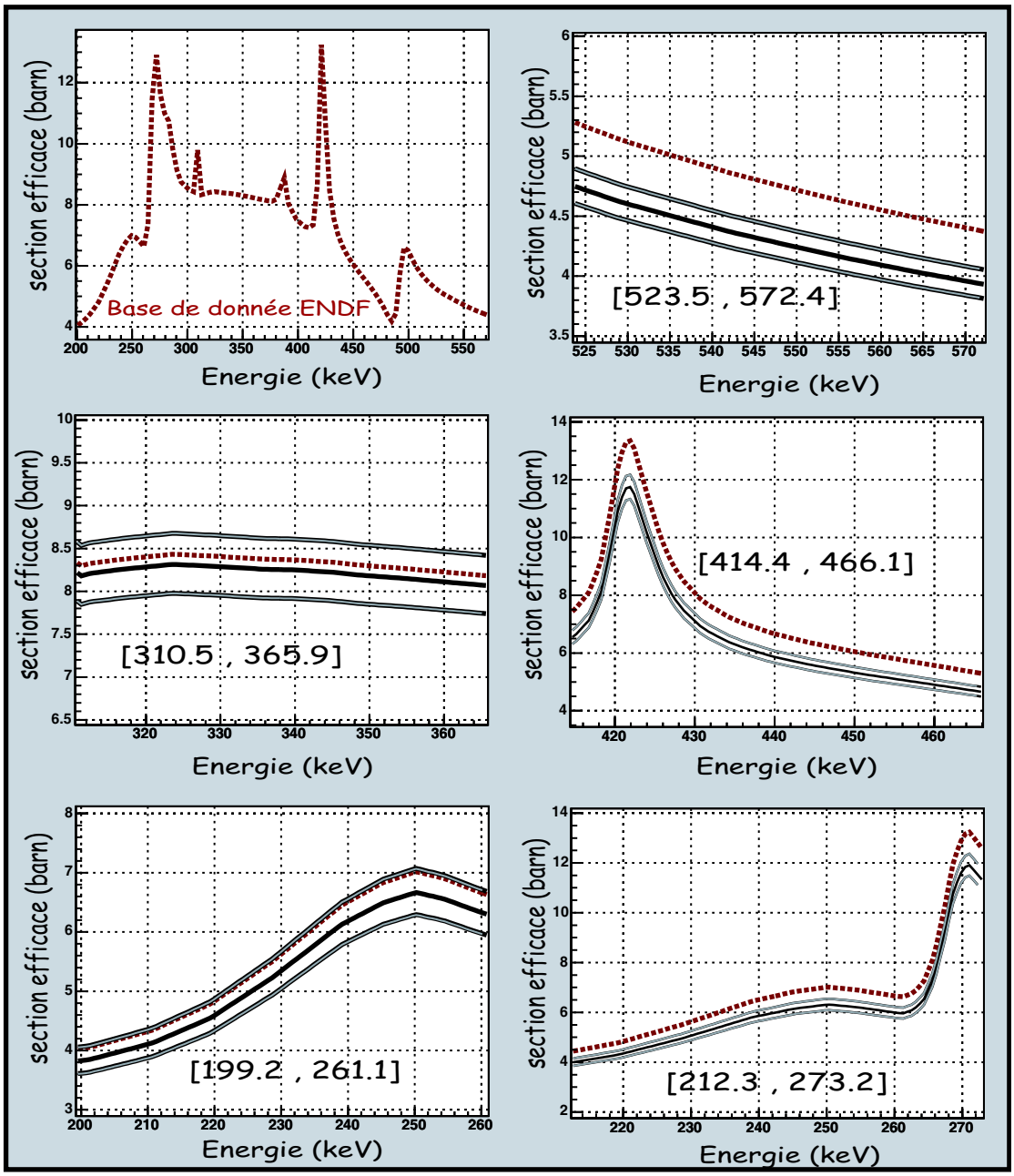


FIG. 7.32 – *Comparaison de la section efficace totale sur le Fluor évaluée par ENDF, représentée sur tout le spectre énergétique en haut à gauche, et mesurées par transmission aux cinq domaines énergétiques expérimentés (les cinq autres spectres).*

Conclusion

Une partie des études actuelles sur les potentialités des réacteurs nucléaires de Génération IV, au CNRS en général et dans le groupe Physique des Réacteurs du LPSC en particulier, porte sur les Réacteurs à Sels Fondus (RSF). Certaines grandeurs physiques extraites des simulations numériques sont sensiblement dépendantes des sections efficaces de diffusion élastique du carbone (matériau de structure d'un RSF type), du fluor et du lithium 7 (constituants de base du sel fondu étudié) fournies par les bases de données nucléaires. Les quelques pour-cents d'écart mis en évidence, dans ce travail, entre les évaluations et les mesures récentes, sur le carbone et le fluor, ainsi que les désaccords notables entre les données expérimentales et évaluées de la section efficace du lithium 7, justifient le programme de mesures qui a mené à la création, au LPSC, de la plate-forme d'Etude et de Recherche sur l'Electro-Nucléaire (PEREN) auprès de laquelle cette thèse a été effectuée.

Nous avons décrit précisément les aspects de la plate-forme PEREN en développant les caractéristiques du générateur de neutrons pulsé (GENEPI II), produisant des neutrons d'une énergie moyenne de $2.5\,MeV$ au centre des massifs ralentisseurs composés des matériaux à étudier. Ainsi, des mesures ont été réalisées dans un massif de graphite pour la mesure de la section efficace du carbone. Un bloc de Téflon (CF_2) a été utilisé pour la détermination de la section efficace du fluor en s'appuyant sur les mesures du carbone. Initialement, un bloc de fluorure de lithium 7 devait être disponible durant ce travail de thèse, mais un retard dans son élaboration a conduit au report de cette expérience.

La condition première rendant nos mesures réalisables est la constance de la section efficace de diffusion élastique entre l'eV et la centaine de keV. Cette caractéristique a pu être vérifiée par l'étude des données existantes et s'explique simplement dans le cadre du modèle optique. De plus, les milieux que nous étudions sont peu absorbants, ce qui constitue la deuxième condition à la base de la faisabilité de nos mesures. Ces hypothèses conduisent, comme il a été démontré dans ce travail, à l'existence d'une corrélation entre l'énergie moyenne des neutrons et leur temps de ralentissement à l'intérieur des massifs.

En nous appuyant sur cette relation $E - t$, nous avons alors pu développer notre méthode qui consiste à mesurer des temps de ralentissement de neutrons générés à un instant initial connu. Ces mesures ont été réalisées à l'aide d'un détecteur de photons gammas, constitué d'un photo-multiplicateur et d'un scintillateur de type $YAP(Ce)$ auquel nous avons accolé successivement différentes cibles minces constituées de noyaux (Au, Ag, Mo et In) sélectionnés pour leurs résonances isolées de cap-

ture radiative à des énergies connues avec précision. Nous avons ainsi pu observer des résonances temporelles, relativement bien résolues, correspondant aux énergies de résonance de la cible utilisée.

Les modélisations complètes et exhaustives des expériences ont ensuite été effectuées, afin de reproduire numériquement ces résonances temporelles. La possibilité de modifier les sections efficaces intégrées aux simulations numériques a permis une étude comparative, de type paramétrique, entre l'expérience et la simulation numérique.

L'extraction des sections efficaces recherchées a consisté à déterminer l'écart minimum entre l'expérience et la simulation numérique. Deux méthodes indépendantes ont pu être testées et la cohérence entre les valeurs obtenues avec les différentes cibles utilisées a ainsi permis de mesurer la section efficace du carbone, entre l'eV et la centaine de keV, avec une précision de 1%. Cette mesure, en léger désaccord avec les évaluations, est cependant parfaitement compatible avec une série de mesures récentes, confortant ainsi la validité de l'utilisation d'un spectromètre à temps de ralentissement comme outil de mesure de la section efficace de diffusion élastique du matériau constituant le spectromètre lui-même.

La propagation de l'erreur sur la section efficace du carbone a imposé 2% d'incertitude sur la section efficace du fluor, mesurée de manière identique par l'intermédiaire du massif ralentisseur en Téflon, dont la valeur expérimentale s'écarte d'environ 3% des évaluations et des mesures antérieures. Cependant, la mesure du plateau du fluor est compatible avec les mesures existantes si l'on prend en compte l'erreur totale, statistique et systématique, sur ces mesures.

La cohérence et la précision des valeurs expérimentales obtenues rendent optimiste quant à la faisabilité de la mesure de la section efficace de diffusion élastique du lithium 7 par l'utilisation d'un bloc de fluorure de lithium. Celle-ci sera réalisée fin 2005 et pourra bénéficier de l'ensemble des outils expérimentaux, numériques et informatiques, conçus et utilisés tout au long de ce travail.

Enfin, des mesures par transmission à travers des échantillons de graphite et de Téflon effectuées au CENBG, dont le domaine en énergie ($200\,keV \leq E \leq 600\,keV$) correspond à la borne supérieure des mesures réalisées sur la plate-forme PEREN, ont permis de tester la validité des bases de données nucléaires concernant le carbone et le fluor. Après avoir corrigé les phénomènes gênants induits notamment par la largeur énergétique du faisceau de protons de l'accélérateur Van de Graaff, nous avons pu mettre en évidence des écarts, par rapport aux bases de données, proches de 5% et de 9% pour la section efficace totale du carbone et du fluor respectivement.

Annexe A

Propagation d'erreurs

Soit deux variables aléatoires indépendantes x et y de densités de probabilité respectives normées $p(x)$ et $q(x)$ de type gaussiennes :

$$p(x) = \frac{1}{\sigma_x\sqrt{2\pi}} exp\left(-\frac{1}{2}\left(\frac{x-x_o}{\sigma_x}\right)^2\right) \tag{A.1}$$

$$q(y) = \frac{1}{\sigma_y\sqrt{2\pi}} exp\left(-\frac{1}{2}\left(\frac{y-y_o}{\sigma_y}\right)^2\right) \tag{A.2}$$

Nous allons ici chercher à déterminer l'erreur propagée par x et y sur la grandeur :

$$U = \left(1-\frac{x}{y}\right)^2 \tag{A.3}$$

Il convient d'abord de découper le problème et de passer par l'intermédiaire d'une variable aléatoire V de la forme :

$$U = V^2 \tag{A.4}$$

d'où l'expression de V :

$$V = 1-\frac{x}{y} \tag{A.5}$$

La densité de probabilité de V, si $\frac{\sigma_y}{y_o} \ll 1$, est quasi-gaussienne dont les paramètres caractéristiques s'obtiennent par la formule de propagation des erreurs classique [Le84-3] :

$$V_o \simeq 1-\frac{x_o}{y_o} \tag{A.6}$$

$$\sigma_V \simeq \sqrt{\left(\frac{\sigma_x}{y_o}\right)^2 + \left(\frac{x_o}{y_o^2}\sigma_y\right)^2} \tag{A.7}$$

Nous pouvons alors faire l'approximation que la densité de probabilité de V est de la forme :

$$f(V) = \frac{1}{\sigma_V\sqrt{2\pi}} exp\left(-\frac{1}{2}\left(\frac{V - V_o}{\sigma_V}\right)^2\right) \tag{A.8}$$

cette relation est d'autant plus vrai que la condition $\frac{\sigma_y}{y_o} \ll 1$ l'est.

Il reste alors à déterminer la densité de probabilité de la variable aléatoire U définie par la relation (A.4). Si la condition $\frac{\sigma_V}{V_o} \ll 1$ est respectée, la distribution de probabilité de la variable U est quasi-gaussienne et ses paramètres s'extrait de la même manière que précédemment :

$$U_o \simeq V_o^2 \tag{A.9}$$

$$\sigma_U \simeq 2V_o\sigma_V \tag{A.10}$$

En revanche, si la condition $\frac{\sigma_V}{V_o} \ll 1$ n'est pas justifiée, l'approximation quasi-gaussienne de la densité de probabilité n'est plus respectée. L'exemple le plus représentatif consiste à prendre $V_o = 0$ avec $\sigma_V > 0$ quelconque. Dans ces conditions, la valeur moyenne $U_o = 0$ obtenue est absurde car pour toutes les valeurs de V, U est forcément positif ou nul et ne peut avoir en conséquent de valeur moyenne nulle. Par ailleurs, l'erreur propagée sur U_o est nulle aussi, ce qui n'a pas de sens physiquement.

Pour un cas général, c'est à dire qu'aucune condition n'est supposée sur $\frac{\sigma_V}{V_o}$, il est nécéssaire de déterminer la densité de probabilité de U, qu'on appelle $g(U)$, pour avoir accès à sa valeur moyenne ainsi qu'à sa variance. La fonction $g(U)$, en considérant la relation (A.4) et la densité de probabilité de V sous la forme donnée par l'équation (A.8), s'écrit [Pr99] :

$$g(U) = \frac{f(V^+) + f(V^-)}{2\,|V|} \tag{A.11}$$

où les termes V^+ et V^- correspondent respectivement à la variable V imposée positive et négative. La détermination de la valeur moyenne et de la variance de U consiste a calculer les équations suivantes :

$$U_o = \int_{\Re} V^2 f(V) dV \tag{A.12}$$

$$\sigma_U^2 = \int_{\Re} V^4 f(V) dV \; - \; U_o^2 \tag{A.13}$$

La résolution analytique de ces deux équations conduisent à :

$$U_o = \sigma_V^2 + V_o^2 \tag{A.14}$$

$$\sigma_u = \sqrt{2\sigma_V^4 + 4\sigma_V^2 V_o^2} \tag{A.15}$$

Les conditions aux limites, lorsque $V_o \gg \sigma_V$, sont cohérentes avec les équations (A.9) et (A.10). Nous remarquons de plus que si la densité de probabilité qui gère la variable aléatoire V est une gaussienne centrée en 0, la valeur moyenne ainsi que l'erreur sur le terme U ($U_o = \sigma_V^2$ et $\sigma_u = \sqrt{2}\sigma_V^2$) s'écarte notablement des valeurs déterminées par la méthode usuelle de propagation des erreurs.

Bibliographie

[Al87] V.P.Alfimenkov, S.B.Borzakov, Vo-Van-Tkhuan, Yu.D.Mareev, L.B.Pikelner, G.Rubin, A.S.Khrykin, E.I.Sharapov. SPIN DEFENDENCE OF S-WAVE NEUTRON SCATTERING CROSS-SECTION OF LI-7. Journ. : Yadernaya Fizika Vol.35, Issue.3, p.542. (1987)

[Al97] Yu.A.Alexandrov, I.S.Guseva, A.B.Laptev, N.G.Nikolenko, G.A.Petrov, O.A.Shcherbakov. Measurement of the Neutron Total Cross Sections For Bi, C, Si, Pb. Conf.Rep. : Joint Inst. for Nucl. Res., Dubna Reports No.213, p.255. (1997)

[Be64] K.H.Beckurts, K.Wirtz. Neutrons Physics. Springer Verlag (1964). p 145.

[Be05] M.J. Berger, J.S. Coursey, M.A. Zucker and J. Chang. National Institut of Standards and Technology (site web : http ://physics.nist.gov/PhysRefData/contents.html) (2005)

[Bi03] A. Billebaud. Sytème d'acquisition de données sur SUN. rapport interne (2003)

[Bl67] D. Blanc. G. Ambrosino, Elements de Physique Nucléaire. Masson (1967). p 137.

[Br-97] J.F. Briesmeister MCNP - A general Monte-Carlo N Particle Transport Code. Los Alamos Laboratory report LA-12625-M (1997).

[Br-97-2] J.F. Briesmeister MCNP - A general Monte-Carlo N Particle Transport Code. Los Alamos Laboratory report LA-12625-M (1997). p 2-28.

[Br97] R. Brun and F. Rademakers. ROOT - An Object Oriented Data Analysis Framework. (site web : http ://www.root.cern.ch/). Nucl. Inst. and Meth. in Phys. Res., A 389 :81-86, (1997).

[By94] J. Byrne, Neutrons, Nuclei and Matter (1994). p 44.

[CT73] C. Cohen-Tannoudji, B. Diu, F. Laloë. Mécanique quantique. Vol. 2. Hermann (1973).

[De05] R. Delmas, B. Berthier. Communication privée.

[EXF] Experimental Nuclear Reaction Data (EXFOR / CSISRS). (site web : http ://www.nndc.bnl.gov/exfor/exfor00.htm)

[Ge03] GENEPI II. Rapport Interne. (2003)

[GEN4] Generation IV International Forum : "A Technology Roadmap fo Generation IV Nuclear Energy Systems", Report GIF-002-00 (2002)

[Go56] G.V.Gorlov,B.M.Gokhberg,V.M.Morozov, G.A.Otroshchenko. The Total Cross Sections For the Interaction of Neutrons with Li-6 and Li-7 from 10 to 450 KeV. Journ. : Doklady Akademii Nauk Vol.110, p.963.

[GT05] GrafTech International Ltd (site web : http ://www.graftech.com)

[Gr05] Cédric Grosjean. Thèse de doctorat. Mesure de la section efficace de fission de 233U et des actinides mineurs induite par neutrons rapides. CENBG (4 mars 2005)

[Gu05] B. Guillon. Communication privée.

[Ha74] J.A.Harvey,D.C.Larson. Private communication Name.Harvey.

[Ha78] J.A.Harvey,N.W.Hill,K.Rush. LI-7 NEUTRON TOTAL CROSS SECTION. Report : U.S. D.O.E. Nuclear Data Committee Reports No.12, p.229.

[Ha99] G. Hale. d-d reaction evaluation, based on 4He system R-matrix analysis. T2 Nuclear Information Service. Los Alamos (site web : http ://t2.lanl.gov/data/data.html) (1999)

[He75] H.T.Heaton Ii,J.L.Menke,R.A.Schrack, R.B.Schwartz. Total Neutron Cross Section of Carbon from 1 keV to 15 MeV. Journ. : Nuclear Science and Engineering Vol.56, p.27.

[He05] M. Heusch. Le Volet Chimie de PEREN. Rapport Interne (2005).

[Hi53] C.T.Hibdon. Prog.Rep. : Argonne National Laboratory report series No.4963, p.3.

[Hi54] C.T.Hibdon,A.Langsdorf Jr. Total neutron cross sections in the keV region. Prog.Rep. : Argonne National Laboratory report series No.5175, p.7.

[Hi68] C.T.Hibdon,F.P.Mooring. TOTAL NEUTRON CROSS SECTIONS OF LI-6, LI-7 AND LITHIUM FROM 10 TO 1236 KEV. Conf. : Nuclear Cross-Sections Techn. Conf., Washington 1968 Vol.1, p.159.

[Ke87] Kenneth S. Krane, Introductory Nuclear Physics (1987). p 380.

[Kn89] Glenn F. Knoll, Radiation Detection and Measurement (1989). p 120.

[Ko79] L.Koester,K.Knopf,W.Waschkowski. THERMAL NEUTRON SCATTERING PARAMETERS FOR LIGHT NUCLEI (A= 12 TO 27). Journ. : Zeitschrift fuer Physik, Section A Vol.292, Issue.1, p.95.

[Ko90] L.Koester,W.Waschkowski,J.Meier. CROSS SECTIONS FOR NEUTRONS OF 1970 EV AND CONTRIBU- TIONS TO FUNDAMENTAL NEUTRON INTERACTIONS. Journ. : Zeitschrift fuer Physik, Section A Vol.337, p.341.

[La76] D.C.Larson,C.H.Johnson,J.A.Harvey, N.W.Hill. MEASUREMENT OF THE NEUTRON TOTAL CROSS SECTION OF FLUORINE FROM 5 EV TO 20 MEV. Report : Oak Ridge National Lab. technical memo No.5612.

[Le84] W.R. Leo, Techniques for nuclear particle physics and experimentation (1984). p 31.

[Le84-2] W.R. Leo, Techniques for nuclear particle physics and experimentation (1984). p 114.

[Le84-3] W.R. Leo, Techniques for nuclear particle physics and experimentation (1984). p 95.

[Ly89] D.I.Lyapin, L.V.Mitsina, A.B.Popov, I.M Salamatin,G.S.Samosvat. Scattering of KeV Neutrons by be, B, C Niclei. Report : Joint Inst. for Nucl. Res., Dubna Reports No.89, p.408.

[MA05] M. Mattes. J. Keinert. Thermal Neutron Scattering Data for the Moderator Materials H_2O, D_2O and ZrH_xin ENDF-6 Format and ACE Library for MCNP(X) codes. Institute for Nuclear Technology and Energy Systems (IKE) - Universtity of Stuttgart Pfaffenwaldring 31, P.O.Box 801140, D-70550, Stuttgart, Germany (2005).

[Ma05] L. Mathieu . Thèse de doctorat. Cycle Thorium et Réacteur à Sels Fondus. Institut National Polytechnique de Grenoble (2005).

[Me05] O. Méplan et al. MCNP Utility for Reactor Evolution. (Documentation and Download : http ://lpsc.in2p3.fr/gpr/MURE/html/MURE/MURE.html)

[Mi64] Michalowicz A., Cinématique des réactions nucléaires (1964). p 33.

[Mo76] H. Morimnaga, T. Yamazaki. In-Beam gamma-ray spectrometry. North-Holland Publishing Company, (1976).

[MU04] R.Soule, W. Assal, P. Chaussonnet, C. Destouches, C. Domergue, C. Jammes, J.M. Laurens, J.F. Lebrat, F. Mellier, G. Perret, G. Rimpault, H. Servière, G. Imel, G.M. Thomas, D. Villamarin, E. Gonzales-Romero, M. Plaschy, R. Chawla, J.L. Kloosterman, Y. Rugama, A. Billebaud, R. Brissot, D. Heuer, M. Kerveno, C. Le Brun, E. Liatard, O Méplan, E. Merle-Lucotte, F. Perdu, J. Vollaire, P. Baeten. Neutronic studies in support of ADS : The MUSE experiments in the MASURCA facility. Nuclear Science and Engineering, 148 (2004) 124.

[MW05] Material Property Data. A Division of Automation Creations, Inc. (ACI) of Blacksburg, Virginia. (site web : http ://www.matweb.com)

[Ng88] H. Ngô. C. Ngô. Physique Statistique, Introduction. (1988). p 211.

[Ni77] K.Nishimura, Y.Yamanouchi, S.Kikuchi, T.Nakagawa. TOTAL CROSS-SECTION MEASUREMENT FOR CARBON, LANTHANUM AND PRASEODYMIUM. Report : JAERI Tokai Reports No.6883.

[Ni03] H. Nifenecker, O. Méplan, S. David, Accelerator Driven Subcritical Reactors (2003). p 53.

[NJ98] NJOY 97.0. Code System for Producing Pointwise and Multigroup Neutron and Photon Cross Sections from ENDF/B-VI Data, RSICC CODE PACKAGE PSR-368 (1998)

[NNDC] National nuclear Data Center. Brookhaven National Laboratory. (site web : http ://www.nndc.bnl.gov/index.jsp)

[Nu02] A. Nuttin. Thèse de doctorat. Potentialités du concept de réacteur à sels fondus pour une production durable d'énergie nucléaire basée sur le cycle thorium en spectre épithermique. Université Joseph Fourrier Grenoble (2002).

[Nu05] A. Nuttin et al. : Potential of Thorium Molten Salt Reactors : Detailled Calculations and Concept Evolution With a View to Large Scale Energy Production, Progress in Nuclear Energy, vol. 46, no. 1, pp. 77-79 (2005).

[Pe01] L. Perrot. Thèse de doctorat. Validation des bases de données de sections efficaces par l'utilisation d'un spectromètre à temps de ralentissement au plomb entre 0,1 eV et 30 keV. Méthodologie-Résultats. Thèse de doctorat, Université Joseph Fourier - Grenoble I. ISN 01-121, (décembre 2001).

[Pe04] F. Perdu. Thèse de doctorat. Contributions aux études de sureté pour des filières innovantes de réacteurs nucléaires. Université Joseph Fourrier Grenoble (dec. 2003).

[PH05] PHOTONIS. Photomultiplier tubes, catalogue (2005).

[PH05-2] PHOTONIS. Communication Privée.

[Po81] W.P.Poenitz,J.F.Whalen,A.B.Smith. TOTAL NEUTRON CROSS SECTIONS OF HEAVY NUCLEI. Journ. : Nuclear Science and Engineering Vol.78, p.333.

[Pr99] K. Protassov. Probabilités et Incertitudes dans l'analyse des données expérimentales. (1999). p 53.

[Re03] P. Reuss. Précis de neutronique. EDP Sciences (2003). p 191.

[Re03-2] P. Reuss. Précis de neutronique. EDP Sciences (2003). p 170.

[SG05] YAP(Ce) Yttrium Aluminium Perovskite. Saint-Gobain CRYSTALS. 3113(01-05) 2005.

[Si74] U.N.Singh,H.I.Liou,J.Rainwater, G.Hacken,J.B.Garg. Neutron resonance spectroscopy : Fluorine. Journ. : Physical Review, Part C, Nuclear Physics Vol.10, p.2147.

[SO03] SODERN. Communication privée.

[So62] M. Soutif, Physique neutronique (1962). p 14.

[TA99] TARC Collaboration. Project report : Neutron-driven nuclear transmutationby adiabatic resonance crossing. European commission, EURATOM, EUR 19117-EN. (1999).

[Ts95] N. Tsoulfanidis, Measurement and Detection of Radiation. (1995)

[Vo04] J. Vollaire. Thèse de doctorat. L'Expérience Muse 4 : Mesure des paramètres cinétiques d'un système sous-critique. Thèse de doctorat, Institut National Polytechnique de Grenoble - LPSC 04-67, (octobre 2004).

Table des figures

1.1 *Schéma du coeur d'un Réacteur à Sels Fondus.* 3

1.2 *Sections efficaces expérimentales totales et de diffusion élastiques du carbone répertoriées dans la base EXFOR.* 7

1.3 *Sections efficaces expérimentales totales du fluor répertoriées dans la base EXFOR. Les courbes de gauche sont en échelle logarithmique pour les ordonnées et celle de droite, en linéaire.* 9

1.4 *Sections efficaces expérimentales totales et de diffusion élastiques du lithium-7 répertoriées dans la base EXFOR.* 10

1.5 *Superposition des évaluations de la section efficace totale du carbone.* 12

1.6 *Superposition des évaluations de la section efficace totale du fluor.* 13

1.7 *Superposition des évaluations de la section efficace totale du lithium 7.* 14

2.1 *Distribution spatiale des neutrons en fonction de la distance r par rapport à la source des neutrons d'énergie initiale* $E_o = 2.5\,MeV$ *ralentis jusqu'à* $E = 1\,keV$, $E = 1\,eV$ *et* $E = 0.025\,eV$. 19

2.2 *Photo d'un des deux cylindres composant le massif de graphite.* 19

2.3 *Superposition sur un large spectre énergétique de toutes les grandeurs calculées* $N_i\sigma_i$ *pour la cinquantaine d'impuretés présentes comparées à la grandeur équivalente pour le graphite. Le spectre de gauche est en échelle log et celui de droite, en linéaire.* 20

2.4 *Photo du massif de graphite sous sa forme définitive lorsqu'il est couplé au générateur de neutrons.* 21

2.5 *Superposition sur un large spectre énergétique de toutes les grandeurs calculées* $N_i\sigma_i$ *pour la centaine d'impuretés mesurées dans le Téflon comparées aux grandeurs équivalentes pour le graphite et le fluor. Le spectre de gauche est en échelle log et celui de droite, en linéaire.* 22

2.6 *Photo d'une partie du générateur de neutrons GENEPI II dans une configuration le couplant au massif de plomb.* 24

2.7 *Schéma du générateur de neutrons GENEPI II et ses différentes possibilités de couplage.* 25

2.8 *Schéma de principe du monitorage de la source de neutrons. Une fraction des protons générés au niveau de la cible TiD est détectée par le semi-conducteur silicium.* . . . 27

2.9 *Sections efficaces des voies neutron et proton en fonction de l'énergie du deuton dans le référentiel du laboratoire.* 28

2.10 *Ensemble de détection constitué par le scintillateur YAP, le photo-multiplicateur et le support en Téflon.* 30

2.11 *Réponse en amplitude du détecteur Photo-multiplicateur couplé à un scintillateur YAP soumis à un faisceau de gamma mono-énergétique.* 31

2.12 *Montage électronique de l'expérience.* 32

2.13 *Mise en place d'une cible résonante de manière à entourer au mieux le scintillateur.* . . 33

2.14 *Sections efficaces de capture radiative de l'or (en haut à gauche), de l'argent (en haut à droite), du molybdène (en bas à gauche) et de l'indium (en bas à droite). Nous avons inséré sur les graphiques les énergies des résonances que nous allons exploiter et les épaisseurs des cibles utilisées.* 34

3.1 *Aspect définitif de la géométrie intégrée à la simulation numérique pour le Téflon ou le graphite. La vue représentant une coupe horizontale par rapport au plan Ox (l'axe Oz coïncidant avec l'axe du faisceau incident), les géométries graphite et Téflon se confondent.* 39

3.2 *Distributions spatiales* $q_E(\vec{r})$ *dans une sphère infinie de graphite (à gauche) et de Téflon (à droite) à trois énergies de neutrons,* $E = 1\,keV$, $E = 1\,eV$ *et* $E = 0.025\,eV$. . 40

3.3 *Distributions spatiales* $q_E(\vec{r})$ *dans le cylindre de graphite (à gauche) et le cube de Téflon (à droite) à trois énergies de neutrons,* $E = 1\,keV$, $E = 1\,eV$ *et* $E = 0.025\,eV$. . 41

3.4 *Modélisation du système de détection tel qu'il a été introduit dans la simulation numérique. Les spécifications des différentes cellules ont été mises en évidence.* 42

3.5 *Modélisation du doigt de gant GENEPI avec ses constituants.* 43

3.6 *Représentation du taux de retour au niveau du détecteur exprimant l'influence sur les taux de comptage de l'environnement expérimental avec ou sans protection cadmium entourant le massif de graphite (courbes du haut) et du Téflon (courbes du bas). Les courbes de gauche s'étendent temporellement jusqu'à* $1\,ms$ *tandis que celles de droite, jusqu'à* $100\,\mu s$. 44

3.7 *Représentation de l'énergie du neutron émis en fonction du cosinus de son angle d'émission dans le référentiel du laboratoire et de l'énergie du deuton incident.* . . . 45

3.8 *Représentation (équation 3.4) de l'énergie du proton émis en fonction du cosinus de son angle d'émission dans le référentiel du laboratoire et de l'énergie du deuton incident.* 46

3.9 *Distribution angulaire de l'émission de neutrons. L'angle θ est exprimé dans le centre de masse tandis que l'énergie du deuton incident est exprimée dans le référentiel du laboratoire.* 47
3.10 *Distributions angulaires de l'émission de neutrons dans le référentiel du laboratoire pour différentes énergies de deutons superposées à la distribution dans le centre de masse pour un deuton de 250 keV.* 47
3.11 *Distribution temporelle de la source de protons associée aux acquisitions réalisées dans le massif de graphite. La variance de la distribution est indiquée.* 48
3.12 *Distribution temporelle de la source de protons associé aux acquisitions réalisées dans le massif de Téflon. La forme temporelle de l'émission de neutron est identique. La variance de la distribution par rapport à la valeur moyenne est indiquée.* 49
3.13 *Distribution énergétique des deutons qui crées les neutrons dans la cible TiD entre 0 et 300 keV d'énergie cinétique.* 50
3.14 *Distributions énergétiques de l'émission de gammas induits par une absorption neutronique en fonction de l'énergie pour différentes valeurs du nombre de masse A du noyau cible considéré.* 52
3.15 *Rapport des flux dans deux sphères de 3 cm de diamètres distantes d'une cinquantaine de centimètres situées dans le massif de graphite. Un ajustement linéaire est représenté en pointillé.* 54

4.1 *Représentation de la cinématique du choc élastique d'un neutron sur un noyau dans le référentiel du laboratoire et du centre de masse. Nous considérons que le noyau cible a une vitesse initiale non nulle, l'interaction entre les deux particules ayant lieu à l'origine du référentiel.* 56
4.2 *Population neutronique en fonction de l'énergie et du temps superposée à la relation $E-t$ tracée à partir des coefficients K et t_0 calculés pour le massif de graphite dans une petite cellule cylindrique proche du système de détection.* 61
4.3 *Population neutronique en fonction de l'énergie et du temps superposée à la relation $E-t$ tracée à partir des coefficients K et t_0 calculé pour le massif de Téflon.* 63
4.4 *Illustration de la relation énergie-temps en fonction de l'énergie et de la variable $\sqrt{K}=\sqrt{E}\,(t+t_0)$ dans le cas du massif de graphite.* 65
4.5 *Projection sur l'axe $\sqrt{K}$ des coupures en énergie de la population neutronique en fonction de E et de $\sqrt{K}$ dans une cellule du massif de graphite.* 66
4.6 *Représentation du paramètre K en fonction de l'énergie dans le cas du massif de graphite.* 67
4.7 *Illustration de la relation énergie-temps en fonction de l'énergie et de la variable $\sqrt{K}=\sqrt{E}\,(t+t_0)$ dans le cas du massif de Téflon.* 68

4.8 *Projection sur l'axe $\sqrt{K}$ des coupures en énergie de la population neutronique en fonction de E et de $\sqrt{K}$ dans une cellule du massif de Téflon.* 69
4.9 *Représentation du paramètre K en fonction de l'énergie dans le cas du massif de Téflon.* 69

5.1 *Distribution type des différences temporelles des événements successifs pour les acquisitions dans le massif de graphite à gauche, et de Téflon à droite.* 72
5.2 *Signal du détecteur Silicium pour une acquisition réalisée dans le massif de graphite. La figure du haut est en échelle logarithmique en z afin d'observer toutes les contributions non nulles dans le détecteur, tandis que celle du bas, en échelle linéaire, met en évidence les contributions majoritaire du signal.* 74
5.3 *Projection sur l'axe des amplitudes du spectre Silicium. Le spectre a été normalisé par le nombre d'impulsion GENEPI de l'acquisition correspondante (de l'ordre de 40.10^6dans ce cas).* 75
5.4 *Projection sur l'axe des amplitudes du spectre Silicium. Nous avons représenté les zones d'intégration ainsi que l'expression de la somme des événements compris dans cette zone. La zone i correspond à une multiplicité de détection de i protons. N_{pSi} est le nombre total de protons détectés par impulsion GENEPI.* 76
5.5 *Schématisation du moniteur.* 76
5.6 *Nombre total moyen de neutrons émis par la source de TiD par impulsion GENEPI dans l'ensemble des acquisitions graphite (figure de gauche) et de Téflon (figure de droite). Les erreurs représentées sont uniquement statistiques.* 78
5.7 *Visualisation du VETO (à gauche) et d'une acquisition sans VETO , à droite.* 79
5.8 *Impulsions GENEPI (les deux spectres en trait plein à gauche et à droite) comparée au flash gamma généré à l'instant du pulse GENEPI et détecté par le scintillateur YAP (courbes pointillées à gauche et à droite). La courbe de gauche n'est pas corrigée du temps mort, contrairement à celle de droite.* 80
5.9 *Taux de comptages en fonction du temps pour les différentes cibles utilisées dans le massif de graphite. Le spectre du bas montre la somme des acquisitions sans cible, représentatives du bruit de fond au cours d'une acquisition.* 81
5.10 *Taux d'événements empilés en pour-cent dans le photo-multiplicateur (massif de graphite).* 82
5.11 *Représentation de la fonction de correction de temps mort exprimant le rapport entre le taux de comptage corrigé à celui non corrigé en fonction du temps.* 83
5.12 *Taux de comptages en fonction du temps dans les différentes cibles utilisées pour l'ensemble des acquisitions dans le massif de Téflon. Le spectre du bas montre la somme des acquisitions sans cible, représentative du bruit de fond au cours d'une acquisition.* 84

5.13 *Taux d'événements empilés en fonction du temps en pour-cent dans le photo-multiplicateur dans le cas du massif de Téflon.* 85
5.14 *Représentation de la fonction de correction de temps mort pour une acquisition avec une cible d'or dans le massif de Téflon exprimant le rapport entre le taux de comptage corrigé sur celui non corrigé en fonction du temps.* 86
5.15 *Sections efficaces de réaction* (n,γ) *du samarium* 147 *(en pointillé) et du tungstène naturel avec l'origine des résonances dues au tungstène 186, 183 et 182 (trait plein). La résonance principale du tungstène se trouve à* $E = 18.8\,eV$*, celle du samarium à* $E = 18.3\,eV$ *tandis que les secondaires sont respectivement à* $E = 4.2\,eV$ *et* $E = 3.4\,eV$*.* 87
5.16 *Comparaison entre les taux de comptage issus d'une acquisition avec la cible de molybdène avec le spectre bruit de fond.* 88
5.17 *Spectre en temps de l'impulsion de protons détectés dans le Silicium, donc de neutrons émis par la cible TiD (courbe pointillé). La courbe noire est l'impulsion détectée par le P.M. lorsque le VETO sur l'impulsion GENEPI n'est pas activé. Les deux voies sont indépendantes d'où le décalage en temps arbitraire entre les deux distributions.* 88
5.18 *Représentation graphique des valeurs expérimentales des temps de référence mesurés avec leurs erreurs absolues lorsque le VETO sur l'impulsion initiale est désactivé. Les acquisitions dans le massif de Téflon sont à gauche, celles dans le graphite à droite.* . . 91
5.19 *Taux de réaction dans les différentes cibles utilisées simulés dans le massif de graphite.* 92
5.20 *Flux de neutrons dans une cible résonnante en fonction du temps de ralentissement.* . . 93
5.21 *Taux de réaction des différentes cibles simulés dans le massif de Téflon.* 94
5.22 *Taux de réaction simulés des principaux matériaux pour le cas des massif de graphite (à gauche) et de Téflon (à droite).* 95
5.23 *Contributions renormalisées issues de la simulation numérique dont sont extraites les principales sources de gammas superposées à la courbe en traits gras qui représente le spectre temporel de l'impulsion GENEPI tel qu'il a été introduit dans le calcul numérique.* 95
5.24 *Superposition de l'impulsion GENEPI expérimentale (trait plein) avec le taux de réaction simulé (n,γ) dans la cible TID (histogramme en pointillé).* 96

6.1 *Taux de comptage de bruit de fond expérimentaux dans le massif de graphite (en haut à gauche) et de Téflon (en bas à gauche) avec les reconstitutions simulées. Les contributions individuelles à la simulation numérique sont représentées à droite.* . . 102
6.2 *Géométrie de la simulation MCNP contenant des sphères utilisées pour la mise en évidence de l'auto-absorption. La sphère n°1 est à 2 cm du centre du YAP et les sphères voisines sont également distantes de 2 cm.* 103

6.3 *Écarts relatifs en fonction du temps entre les flux avec et sans cible d'or dans les différentes petites sphères utilisées dans le cylindre entourant le système de détection.* 104

6.4 *Reconstitution des spectres mesurés dans le massif de graphite avec les cibles d'argent (en haut), d'or (deuxième ligne), d'indium (troisième ligne) et de molybdène (en bas). La colonne de droite montre les contributions de la reconstitution simulée, le bruit de fond étant imposé tel qu'il a été déterminé dans le paragraphe 6.1.2.* 106

6.5 *Reconstitution des spectres mesurés dans le massif de Téflon avec les cibles d'argent (en haut), d'or (deuxième ligne), d'indium (troisième ligne) et de molybdène (en bas). La colonne de droite montre les contributions de la reconstitution simulée, le bruit de fond étant imposé tel qu'il a été déterminé dans le paragraphe 6.1.2.* 107

6.6 *Reconstitution des spectres mesurés dans le massif de graphite avec les cibles d'argent (en haut), d'or (deuxième ligne), d'indium (troisième ligne) et de molybdène (en bas). La colonne de droite montre les contributions de la reconstitution simulée, le bruit de fond est déterminé par la procédure de minimisation sans contrainte sur les coefficients.* 108

6.7 *Reconstitution des spectres mesurés dans le massif de Téflon avec les cibles d'argent (en haut), d'or (deuxième ligne), d'indium (troisième ligne) et de molybdène (en bas). La colonne de droite montre les contributions de la reconstitution simulée, le bruit de fond est déterminé par la procédure de minimisation sans contrainte sur les coefficients.* 109

6.8 *Fonctions $R(t)$ déterminées par la simulation numérique pour les cibles d'argent, d'or, d'indium et de molybdène dans le graphite.* 111

6.9 *Représentation des taux de réaction simulés (courbes pointillées) et expérimentaux obtenus par normalisation Silicium (courbes pleines) dans le massif de graphite.* . . 112

6.10 *Représentation des taux de réaction simulés (courbes pointillées) et expérimentaux obtenus par normalisation Silicium (courbes pleines) dans le massif de Téflon.* . . . 112

6.11 *Taux de réaction simulés (courbes pointillées) et expérimentaux (courbes pleines) dans le graphite. La normalisation des spectres expérimentaux a été réalisée par la méthode de minimisation de χ^2.* 114

6.12 *Taux de réaction simulés (courbes pointillées) et expérimentaux (courbes pleines) dans le Téflon. La normalisation des spectres expérimentaux a été réalisée par la méthode de minimisation de χ^2.* 114

6.13 *Fonction f(t) et valeurs numériques des coefficients utilisés. La partie à droite des pointillés est la partie de la courbe qui va servir à ajuster les résonances expérimentales et simulées.* 118

6.14 *Grandeur χ^2 en fonction de l'écart imposé sur la section efficace de diffusion élastique σ_b du carbone dans les bases de données nucléaires (la section efficace utilisée dans la simulation numérique est σ_s). Les quatre graphiques en haut à gauche sont relatifs à la cible d'argent, l'or est représenté en haut à droite, le molybdène en bas à gauche et enfin, les courbes en bas à droite représentent l'indium.* 120

6.15 *Fonction $t_r = f(t)$ pour l'ensemble des cibles utilisées dans le graphite avec mise en évidence de l'intersection avec le temps de résonance expérimental et qui conduit à la section efficace mesurée indiquée sur les différents graphes.* 122

6.16 *Superposition entre le spectre expérimental (trait plein) et la simulation numérique (trait pointillé) pour la cible d'indium avec (courbes de gauches) et sans traitement thermique (courbes de droite).* 123

6.17 *Grandeur χ^2 en fonction de l'écart imposé sur la section efficace de diffusion élastique σ_b du fluor pour une variation nulle sur la section efficace du carbone. Les quatre graphiques en haut à gauche sont relatifs à la cible d'argent, l'or est représenté en haut à droite, le molybdène en bas à gauche et enfin, les courbes en bas à droite représentent l'indium.* 125

6.18 *Grandeur χ^2 en fonction de l'écart imposé sur la section efficace de diffusion élastique σ_b du fluor pour une variation de 3% sur la section efficace du carbone. Les quatre graphiques en haut à gauche sont relatifs à la cible d'argent, l'or est représenté en haut à droite, le molybdène en bas à gauche et enfin, les courbes en bas à droite représentent l'indium.* 126

6.19 *Fonction $t_r = f(t)$ pour l'ensemble des cibles utilisées dans le Téflon, pour une variation nulle sur la section efficace du carbone, avec la mise en évidence de l'intersection avec le temps de résonance expérimental.* 128

6.20 *Fonction $t_r = f(t)$ pour l'ensemble des cibles utilisées dans le Téflon, pour une variation de 3% sur la section efficace du carbone, avec la mise en évidence de l'intersection avec le temps de résonance expérimental.* 129

6.21 *Variation du temps de résonance en pour-mille par rapport au temps de résonance théorique, pour deux énergies ($E = 5\,eV$ et $E = 45\,eV$) en fonction de l'énergie limite à partir de laquelle nous avons imposée 5% de variation sur la section efficace de diffusion élastique du carbone. Les sections efficaces modifiées par rapport à la base ENDF sont représentée telles qu'elles induisent 1 pour-mille de variation sur le temps de résonance.* 131

6.22 *Superposition de la mesure du plateau de la section efficace du carbone effectuée sur la plate-forme PEREN avec les données évaluées et expérimentales récentes. La courbe du haut s'étend de 0 à 200 eV et l'erreur associée à la mesure est représentée par la zone grisée. La courbe du bas montre l'ensemble du domaine énergétique de validité des mesures.* 132
6.23 *Superposition de la mesure du plateau de la section efficace du fluor effectuée sur la plate-forme PEREN avec les données évaluées et expérimentales existantes. La courbe du haut s'étend de 0 à 200 eV et l'erreur associée à la mesure est représentée par la zone grisée. La courbe du bas montre l'ensemble du domaine énergétique de validité des mesures.* 133

7.1 *Sections efficaces du Carbone (courbe bleue) et du Fluor (courbe violette) issues de la base de données ENDF. Les courbes du haut sont représentées sur un large spectre énergétique, tandis que celles du bas montrent notre domaine de mesure.* 136
7.2 *Schéma du montage expérimental.* 137
7.3 *Schéma de principe de la transmission de particules à travers un matériau. Le taux de transmission se définit comme le rapport du flux entrant $N(L,E)$ au flux sortant $N(0,E)$; il illustre l'atténuation du flux incident dans le matériau.* 138
7.4 *Énergie des neutrons émis à $0°$ en fonction de l'énergie des protons incidents dans le référentiel du laboratoire.* 140
7.5 *Schéma détaillé du détecteur à protons de recul.* 141
7.6 *Parcours moyen des protons dans l'hydrogène à $4\,bars$ de pression en fonction de leur énergie.* 142
7.7 *Réponse attendue du détecteur où est représenté en noir le cas idéal (résolution parfaite et sans effet de bord). La courbe en violet prend en compte l'effet de bord, d'où un déplacement des hautes énergies vers les plus basses, tandis que la courbe grisée montre l'effet d'une résolution énergétique d'une dizaine de %.* 143
7.8 *Schéma de la chaîne d'acquisition.* 143
7.9 *Rapport entre la charge intégrée corrigée du temps mort et le taux de comptage corrigé du temps mort du détecteur ^3He pour une série de six mesures sans échantillon à l'énergie de neutron $366\,keV$. Les erreurs statistiques sont représentées. Le rapport a été renormalisé à l'unité pour la première acquisition. L'écart est au plus de l'ordre de 0.8%.* 145
7.10 *Spectres expérimentaux normalisés par la charge corrigée du temps mort pour une mesure sans échantillon (courbe noire), et respectivement en rouge, bleu et violet les acquisitions avec les échantillons de carbone de $2\,cm$, $4\,cm$ et $6\,cm$ de longueur. Le pic à l'extrémité du spectre correspond au signal du générateur d'impulsion.* 146

7.11 *Bruit de fond (courbe claire) mesuré avec l'échantillon de polyéthylène comparé à une acquisition sans échantillon (courbe noire) pour une énergie de neutron maximum de* $E_0 = 200\,keV$. 147
7.12 *Section efficace de la réaction p sur* ^7Li *issue de la base de données nucléaires ENDF [Ha99]. La voie neutron est en trait plein, comparée à une voie alpha, en pointillé.* 149
7.13 *Section efficace de la voie neutron issue des bases de données nucléaires et son ajustement dans la zone d'intérêt par un polynôme d'ordre 4 d'équation* $\sigma_{p,n}(Ep) = -3.57.10^3 + 6.92.10^3 Ep - 5.02.10^3 Ep^2 + 1.62.10^3 Ep^3 - 1.95.10^2 Ep^4$. 150
7.14 *Distribution de l'angle d'émission dans le référentiel du centre de masse des neutrons en fonction de leur énergie incidente dans le laboratoire.* 151
7.15 *Reconstruction de la distribution angulaire des neutrons dans le référentiel du laboratoire. La courbe en haut à gauche représente l'énergie des neutrons en fonction de l'angle d'émission dans le laboratoire pour différentes énergies de protons* Ep *(cf équation (7.8)). Nous avons aussi représenté en haut à droite la reconstruction de l'équation (7.22). Les distributions angulaires dans le centre de masse (projection des courbes de la figure 7.14 sur l'axe des cosinus) ainsi que la transformée dans le référentiel du laboratoire sont représentées respectivement en bas à gauche puis à droite. Cinq énergie différentes explicitées sur la figure ont été tracées.* 152
7.16 *Fonction* $\Sigma(E)$ *et les trois fonctions qui la composent. Ces fonctions ont été renormalisées afin de pouvoir comparer plus facilement leurs influences respectives sur* Σ. *Le taux de transmission* $\Gamma(L,E)$ *s'exprimant comme un rapport, est inchangé par renormalisations.* 154
7.17 *Illustration des processus de diffusions dominants dans l'expérience. Les parcours schématisés en vert sont les processus de base pour la mesure par transmission tandis que les autres représentent l'ensemble des processus parasites à prendre en compte dans les corrections.* 156
7.18 *Illustration de la variation de la fonction* $\chi^2_{\Delta E}(E_{0,}s)$ *lorsque l'on impose une variation sur le taux de transmission expérimental. Lorsque cette variation est positive, la fonction tend à se décaler sur la gauche et inversement.* 159
7.19 *Représentation à l'échelle de la géométrie MCNP. Nous avons appelé surface virtuelle de séparation neutrons directs-retours un cône de sommet situé au niveau de la source de neutrons et dont les limites coïncident avec le volume actif du détecteur.* . 160
7.20 *Reconstitution des spectres expérimentaux pour une énergie de neutron* $E_0 = 466\,keV$. *Les courbes noire, rouge, bleue et violette représentent respectivement les simulations numériques relatives aux mesures sans échantillon et avec échantillons de* $2\,cm$, $4\,cm$ *et* $6\,cm$ *de longueur.* 162

7.21 *Taux de comptage en unité arbitraire des neutrons dans le volume actif du détecteur en fonction de l'énergie. La courbe pointillée représente la totalité des neutrons ayant traversé le détecteur, tandis que la courbe en trait plein représente les neutrons qui ont atteint le détecteur après avoir franchi la surface conique. À partir du canal d'énergie* $400\,keV$*, les deux courbes sont confondues.* 163

7.22 *Réponse totale simulée du détecteur à* $E_0 = 466.1\,keV$ *et contribution des neutrons marqués pour une simulation numérique d'une mesure sans échantillon (courbes noires) et avec échantillon de* $2\,cm$ *de longueur (courbes rouges), de* $4\,cm$ *(courbes bleues) et de* $6\,cm$ *(courbes violettes).* 164

7.23 *Évaluation du taux de retour en pour-cent (*$100.r_{\Delta E}(L)$*) par rapport aux neutrons directs en fonction de la variable* $E_0 - \Delta E$*. Cette variable représente la borne inférieure d'intégration d'un spectre expérimental.* 165

7.24 R*eprésentation des taux de comptage normalisés par la charge intégrée au niveau de la cible LiF (acquisitions sans échantillon) pour les cinq énergies de neutrons. Nous avons choisi arbitrairement une largeur d'intégration des spectres expérimentaux de* $100\,keV$*. Les barres d'erreurs représentées correspondent à l'erreur statistique uniquement.* 166

7.25 *Estimation de l'écart-type des distributions des taux de comptage sans échantillon (courbes en trait plein) et statistique (courbe pointillée) pour toutes les énergies expérimentées en fonction de la largeur d'intégration des spectres expérimentaux. L'erreur statistique représentée est en fait la valeur moyenne des erreurs statistiques d'un ensemble de mesures sans échantillon à une énergie de neutron donnée. Les erreurs ont été renormalisées en pour-cent.* 168

7.26 *Évaluation de la transmission à travers les échantillons de différentes longueurs précisées sur la figure en fonction de la variable s à l'énergie de neutron* $E_0 = 572\,keV$ *pour une largeur d'intégration* $\Delta E = 100\,keV$*. Les transmissions évaluées sont à comparer avec les taux de transmission expérimentaux explicités par les équations (7.49), (7.50) et (7.51).* 170

7.27 *Évaluation de la fonction* $\chi^2_{\Delta E}$ *pris pour le taux de transmission mesuré (courbe centrale), pour le taux de transmission maximisé et minimisé (courbes à gache et à droite) en fonction du facteur s appliqué à la section efficace des bases de données nucléaires. Les minimums des trois fonctions correspondent à* $s_{\Delta E}$*,* $s^+_{\Delta E}$ *et* $s^-_{\Delta E}$ *déterminant la section efficace totale mesurée ainsi que son erreur associée.* 171

7.28 *La courbe verte représente la section efficace totale en fonction de l'énergie issus des bases de données nucléaires, à* 0.4% *d'écart de la courbe noire, même grandeur mesuré. Les courbes rouges et bleues permettent de visualiser l'erreur associée à la section efficace mesurée.* 172

7.29 *$s_{\Delta E}$ en fonction de la variable $E_0 - \Delta E$ pour toutes les énergies de neutrons de l'expérience. La première largeur d'intégration effectuée (point le plus à droite des courbes) correspond à une intégration des spectres expérimentaux sur la largeur de la source ΔE_0. Les points allant de gauche à droite correspondent à une largeur d'intégration plus grande.* 173
7.30 *Comparaison de la section efficace totale sur le carbone évaluées par ENDF et mesurées par transmission aux cinq domaines énergétiques expérimentés.* 174
7.31 *$s_{\Delta E}$ appliqué au fluor en fonction de la variable $E_0 - \Delta E$ pour toutes les énergies de neutrons de l'expérience.* 175
7.32 *Comparaison de la section efficace totale sur le Fluor évaluée par ENDF, représentée sur tout le spectre énergétique en haut à gauche, et mesurées par transmission aux cinq domaines énergétiques expérimentés (les cinq autres spectres).* 176

Liste des tableaux

2.1 *Fractions atomiques en ppm d'atomes de carbone des impuretés pouvant être considérées comme non-négligeables dans le graphite. Les chiffres entre parenthèses représentent l'isotope concerné.* 21

2.2 *Fractions atomiques en ppm de molécules de Téflon des impuretés pouvant être considérées comme non-négligeable dans le massif. Les chiffres entre parenthèses représentent l'isotope concerné.* 22

4.1 *Correspondance entre les énergies de résonance des cibles utilisées et les temps de résonance associés théoriques et calculés à partir de la simulation.* 67

4.2 *Correspondance entre les énergies de résonances des cibles utilisées et les temps de résonance associés théoriques et calculés à partir de la simulation.* 68

5.1 *Tableau explicitant les probabilités de détection d'un, deux ou trois protons déterminées par le calcul (équation (5.6)) et par la mesure.* 77

5.2 *Détermination expérimentale des temps de référence ainsi que de leurs erreurs absolue et relative pour l'ensemble des mesures réalisées avec les massifs de graphite et de Téflon.* 90

6.1 *Valeurs numériques du χ^2 réduit associé à des ajustements des résonances des cibles d'or, d'argent, d'indium et de molybdène par trois fonctions différentes. Le tableau de gauche est relatif à des simulation réalisées avec la section efficace du carbone des bases de données nucléaires tandis que celui de droite correspond à une section efficace supérieure de 2% à celle des bases.* 118

7.1 *Caractéristiques des échantillons de graphite et de Téflon.* 140

7.2 *Valeurs numériques des paramètres énergétiques de l'émission de neutrons. Nous avons indiqué sur la première ligne les énergies des protons des différentes expériences et l'énergie des neutrons produits dans l'axe du faisceau.* 144

7.3 *Perte d'énergie des protons $\Delta E\,p_0$ dans les $400\,\mu g.cm^{-2}$ de Fluorure de Lithium et perte d'énergie ΔE_0 des neutrons associés pour les énergies de protons $E\,p_0$ utilisées produisant des neutrons d'énergie E.* 148
7.4 *Correction sur la section efficace totale du carbone issus des bases de données nucléaires ainsi que ses erreurs associées. Les énergies expérimentées sont indiquées dans la colonne de gauche, ainsi que la largeur d'intégration ΔE des spectres expérimentaux utilisée pour la mesure du paramètre $s_{\Delta E}$.* 171
7.5 *Corrections sur la section efficace totale du fluor des bases de données nucléaires ainsi que les erreurs associées. Les énergies expérimentées sont indiquées dans la colonne de gauche, ainsi que la largeur d'intégration ΔE des spectres expérimentaux utilisée pour la détermination du paramètre $s_{\Delta E}$.* 172

Résumé

Le Réacteur à Sels Fondus (RSF) en cycle Th/U est un des concepts de nouvelle génération pour la production d'énergie nucléaire. Un RSF type se compose d'une structure en graphite, servant de modérateur, percé de canaux dans lesquels circule le sel fondu ($^7LiF + ThF_4 + UF_4$). Les données neutroniques fondamentales pour les simulations numériques sont les sections efficaces de diffusion élastique d'un neutron sur des noyaux de carbone (σ_C), de fluor (σ_F) et de lithium 7 (σ_{Li}) dans le domaine épithermique.

Le but de ce travail est de déterminer précisément σ_C et σ_F entre 1 eV et 100 keV. Ces mesures ont été réalisées auprès de la plate-forme d'Etude et de Recherche sur l'Electro-Nucléaire (PEREN) du Laboratoire de Physique Subatomique et de Cosmologie de Grenoble. Elle comprend un GEnérateur de NEutrons Pulsé Intense (GENEPI) produisant des neutrons de 2.5 MeV au centre de massifs ralentisseurs (C et CF_2). Des taux de capture sont obtenus, pour des échantillons composés de matériaux de référence (Au, Ag, Mo et In) placés dans les massifs, à l'aide d'un scintillateur YAP couplé à un photo-multiplicateur.

Des simulations précises des expériences, avec le code MCNP, ont été réalisées et la comparaison entre la simulation et l'expérience a permis de déterminer σ_C et σ_F avec des précisions de 1% et 2% respectivement, mettant en évidence des écarts avec les données nucléaires évaluées (ENDF).

Des mesures complémentaires des sections efficaces totales σ_C et σ_F à plus haute énergie (200 - 600keV) ont été effectuées au Centre d'Etudes Nucléaires de Bordeaux par une méthode de transmission. Un faisceau de neutrons mono-énergétique est produit par des protons accélérés, dans un accélérateur Van De Graaff, sur une cible de LiF. Les neutrons transmis sont comptés par un détecteur proportionnel à hydrogène. Des écarts de 5% (C) et de 9% (F) par rapport à ENDF ont été mis en évidence.

MOTS-CLÉS

Réacteur à sels fondus, Carbone, Fluor, Neutrons épithermique, Diffusion élastique, Spectromètre à temps de ralentissement, Section efficace, MCNP

TITLE

Neutron elastic scattering cross-sections measurement on carbon and fluorine in epithermal energy range using PEREN platform.

ABSRACT

Molten Salt Reactor (MSR) based on Th/U cycle is one of the new generation concepts for nuclear energy production. A typical MSR is a graphite-moderated core with liquid fuel ($^7LiF + ThF_4 + UF_4$). Many numerical studies based on Monte-Carlo codes are currently carried out but the validity of these numerical result relies on the precise knowledge of neutron cross sections used such as elastic scattering on carbon (σ_C), fluorine (σ_F) and lithium 7 (σ_{Li}).

The goal of this work is to obtain σ_C and σ_F between 1 eV and 100 keV. Such measurements have been performed at the Laboratoire de Physique Subatomique et de Cosmologie (LPSC) de Grenoble on the experimental platform PEREN using slowing-down time spectrometers (C and CF_2) associated to a pulsed neutron generator (GENEPI). Capture rates are obtained for reference materials (Au, Ag, Mo and In) using YAP scintillator coupled to a photo-multiplier.

Very precise simulations (MCNP code) of the experimental setup have been performed and comparison with experiments has led to the determination of σ_C and σ_F with accuracies of 1% and 2% respectively. These results show a small discrepancy to evaluated nuclear data file (ENDF).

Measures of total cross-sections σ_C and σ_F at higher energy ($200 - 600\,keV$) were also carried out at Centre des Etudes Nucléaires de Bordeaux using a transmission method. Mono-energetic neutrons were produced by protons accelerated by a Van de Graaff accelerator on a LiF target and transmitted neutrons are counted in a proportional hydrogen gaseous detector. Discrepancies of 5% and 9% for σ_C and σ_F respectively with ENDF have been shown.

KEY-WORDS

Molten Salt Reactor, Carbon, Fluorine, Epithermal neutrons, Elastic scattering, Time-of-flight spectrometer, Cross section, MCNP.