



Développement d'un système de mesure directe du débit d'émission de sources neutroniques

Florestan Ogheard

► To cite this version:

Florestan Ogheard. Développement d'un système de mesure directe du débit d'émission de sources neutroniques. Autre [cond-mat.other]. Université Paris Sud - Paris XI, 2012. Français. NNT : 2012PA112176 . tel-00740509

HAL Id: tel-00740509

<https://theses.hal.science/tel-00740509>

Submitted on 10 Oct 2012

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 PARIS-SUD

ÉCOLE DOCTORALE : Particules, noyaux et cosmologie (ED 517)

Laboratoire National Henri Becquerel (LNE-LNHB) - CEA Saclay

DISCIPLINE : Physique nucléaire

THÈSE DE DOCTORAT

soutenue le 11/09/2012

par

Florestan OGHEARD

Développement d'un système de mesure directe du débit d'émission de sources neutroniques

Directeur de thèse :

Dr. Philippe CASSETTE

Expert International CEA (LNE-LNHB)

Composition du jury :

Président du jury :

Rapporteurs :

Examineur :

Directeur de thèse :

Dr. Laurent TASSAN-GOT

Dr. Guy RATEL

Dr. Vincent GRESSIER

Dr. Neil ROBERTS

Dr. Philippe CASSETTE

Directeur de recherche (IPN d'Orsay)

Physicien Chercheur Principal (BIPM)

Ingénieur-Chercheur (IRSN-LMDN)

Chercheur (NPL)

Expert International CEA (LNE-LNHB)

Table des matières

Résumé	7
Remerciements	11
Introduction	13
1. Sources neutroniques	15
1.1. Sources neutroniques considérées	15
1.1.1. Sources (alpha,n)	15
1.1.2. Sources de fission spontanée	18
1.1.3. Sources (gamma,n)	19
1.2. Utilisation	21
1.3. Métrologie associée	23
1.3.1. Contexte	23
1.3.2. Mesurandes	23
1.3.3. Méthodes primaires d'étalonnage	24
1.3.3.1. Activation de feuilles d'or	24
1.3.3.2. Particule associée (modérateur graphite)	25
1.3.3.3. Calorimétrie	27
1.3.3.4. Comptage des fragments de fission	28
1.3.3.5. Bain de manganèse	28
2. La méthode du bain de manganèse	29
2.1. Principe historique	29
2.2. Mesure des paramètres expérimentaux	31
2.2.1. Activité en ^{56}Mn	31
2.2.2. Étalonnage du détecteur	31
2.2.3. Masse totale du bain	33
2.3. Calcul du rendement du bain	33
2.4. Mesure de l'anisotropie d'émission	39
2.4.1. Principe	39
2.4.2. Calcul du facteur d'anisotropie	41
2.4.3. Facteurs d'anisotropie typiques	42
2.5. Les installations existantes	43
2.5.1. L'installation au LNHB	43
2.5.1.1. Cuve cylindrique	43

2.5.1.2.	Cuve sphérique	44
2.5.1.3.	Cuve sphérique et casemate de radioprotection	45
2.5.2.	Les installations à l'étranger	47
2.5.2.1.	Royaume-Uni (NPL)	47
2.5.2.2.	États-Unis (NIST)	48
2.5.2.3.	Brésil (LNMRI)	49
2.5.2.4.	Chine (NIM)	50
2.5.2.5.	Russie (VNIIM)	52
2.6.	Voies d'amélioration	52
3.	Calcul du rendement du bain par la méthode Monte-Carlo	55
3.1.	Codes de calcul	55
3.1.1.	MCNPX	55
3.1.2.	GEANT4	56
3.1.3.	FLUKA	56
3.2.	Modélisations	56
3.2.1.	Choix de l'émission neutronique	56
3.2.2.	Choix des sections efficaces	58
3.2.3.	Différences entre les codes	60
3.2.3.1.	MCNPX	60
3.2.3.2.	GEANT4	61
3.2.3.3.	FLUKA	63
3.3.	Simulations et comparaisons des résultats	64
3.3.1.	Modèles complets	64
3.3.2.	Modèles complémentaires	67
3.3.2.1.	Géométrie simplifiée	67
3.3.2.2.	Neutrons mono-énergétiques	68
3.4.	Choix du code de calcul	69
3.4.1.	Discussion	69
3.4.2.	Suggestions pour vérifier la fiabilité des modélisations du bain de manganèse	70
4.	Développement du détecteur	73
4.1.	Principe : les coïncidences Cerenkov-gamma	73
4.1.1.	Schéma de désintégration du manganèse 56	73
4.1.2.	Effet Cerenkov	74
4.1.3.	Détection gamma	76
4.1.4.	Coïncidences	78
4.2.	Validation du principe de mesure	81
4.2.1.	Prototype	81
4.2.2.	Test et optimisation	85
4.2.2.1.	Source de ^{60}Co avec scintillateur	85
4.2.2.2.	Modélisation et simulation du prototype	86
4.2.2.3.	Mesure de la cellule de $^{60}\text{Co-MnSO}_4$	88

4.3.	Voies de détection	89
4.3.1.	Voie Cerenkov	89
4.3.2.	Voie gamma	90
4.4.	Conception mécanique	90
4.4.1.	Cellule optique	91
4.4.2.	Châssis	94
4.5.	Électronique de comptage	97
4.5.1.	Principe	97
4.5.2.	Chaîne numérique	98
4.6.	Test : mesure d'une source de ^{60}Co en scintillation liquide	102
4.6.1.	Simulation du rendement gamma dans le détecteur bêta ($\varepsilon_{\beta\gamma}$)	102
4.6.2.	Méthode de la courbe d'extrapolation	104
4.6.3.	Comparaison des résultats	105
5.	Application à la méthode du bain de manganèse	107
5.1.	Source AmBe	107
5.1.1.	Mesures de la densité et de la concentration du MnSO_4	107
5.1.2.	Mesures des masses de solution dans le système	107
5.1.3.	Modélisation et simulation	109
5.1.4.	Mesure de l'activité en ^{56}Mn	111
5.1.5.	Mesure par comptage gamma avec une source de référence	112
5.1.6.	Calcul de l'émission neutronique	113
5.1.7.	Mesure de l'anisotropie par la méthode du cône d'ombre	113
5.2.	Activation de manganèse en réacteur	116
5.2.1.	Schéma de l'exercice	116
5.2.2.	Mesure de l'activité	118
5.2.3.	Mesure complémentaire	122
5.2.4.	Étalonnage du détecteur gamma	123
5.3.	Perspectives et voies d'améliorations	124
5.3.1.	Réduction des incertitudes statistiques	125
5.3.2.	Simulation complète des coïncidences Cerenkov-gamma en ligne	126
5.3.3.	Validation des codes de calcul des facteurs correctifs	127
5.3.4.	Méthode alternative de mesure directe de l'activité	127
5.3.5.	Comparaisons internationales	128
5.3.6.	Autres méthodes d'étalonnage de sources neutroniques	128
	Conclusion	129
	A. Notions physiques	133
A.1.	Interactions neutroniques	133
A.1.1.	Diffusion élastique	133
A.1.2.	Diffusion inélastique	134
A.1.3.	Capture radiative	134
A.1.4.	Transmutation	135

A.1.5. Fission	135
A.1.6. Spallation	136
A.2. Mesurandes	136
A.2.1. Débit d'émission neutronique	136
A.2.2. Émission spectrale d'une source	136
A.2.3. Représentation graphique de l'émission spectrale	137
A.2.4. Fluence neutronique	137
A.2.5. Débit de fluence neutronique	138
B. Fichier d'entrée de la modélisation MCNPX	139
C. Schéma du code implémenté dans la carte numérique FPGA pour la gestion des coïncidences	147
Bibliographie	149

Table des figures

1.1. Spectre d'émission neutronique d'une source $^{241}\text{AmBe}(\alpha, n)$ (ISO8529-1)[1]	17
1.2. Vue en coupe d'une source de type MBe(α, n)	17
1.3. Spectre de neutrons d'une source de fission spontanée de ^{252}Cf	19
1.4. Vue en coupe d'une source de photo-neutrons typique	20
1.5. Vue d'ensemble du modérateur graphite pour la technique de la particule associée (VNIIM, Saint-Petersbourg, Russie)	26
1.6. Vue en coupe du modérateur graphite pour la technique de la particule associée (VNIIM, Saint-Petersbourg, Russie)	26
2.1. Saturation en activité du bain de manganèse	30
2.2. Émission angulaire d'une source de ^{252}Cf d'intensité élevée	40
2.3. Système de coordonnées sphériques pour le calcul de l'anisotropie d'une source neutronique	41
2.4. Schéma de principe de l'installation au LMR (LNE-LNHB) en 1964	45
2.5. Hall neutron du LNE-LNHB avant rénovation	46
2.6. Vue extérieure de la casemate actuelle de mesure neutronique du LNE-LNHB	46
2.7. Vue intérieure de la casemate du LNE-LNHB	47
2.8. Vue 3D de l'installation "bain de manganèse" au N.P.L.	47
2.9. Vue intérieure de l'installation au N.I.S.T.	49
2.10. Vue de la salle de contrôle de l'installation au N.I.S.T.	49
2.11. Vue de l'installation au L.N.M.R.I.	50
2.12. Schéma de l'installation au N.I.M.-C.I.A.E. (Chine)	51
2.13. Photo de l'installation au C.I.A.E. (Chine)	51
3.1. Facteurs d'anisotropie simulés et expérimentaux pour une source $^{241}\text{AmBe}$ de type X3	57
3.2. Comparaison des sections efficaces de capture neutronique sur l'oxygène [2]	59
3.3. Vue de dessus en coupe de la géométrie modélisée sous MCNPX	61
3.4. Vue en coupe de la sphère modélisée sous MCNPX	62
3.5. Vue en coupe de l'assemblage porte-source modélisé sous MCNPX	62
3.6. Vue extérieure de la géométrie modélisée sous GEANT4	63
3.7. Vue de l'assemblage porte-source modélisé sous GEANT4	64
3.8. Algorithme de détection des événements développé sous GEANT4	65

3.9. Fluences de fuite en dehors de la sphère simulées par MCNPX et FLUKA	66
3.10. Fluences de fuite en dehors de la sphère simulées par MCNPX et GEANT4	66
3.11. Spectre gamma à la surface de la sphère du bain de manganèse modélisée sous MCNPX	71
4.1. Schéma de désintégration du ^{56}Mn	74
4.2. Spectre Cerenkov et rendement quantique d'un photo-détecteur typique	76
4.3. Importance relative des trois grands types d'interaction gamma-matière	77
4.4. Dépendance du rendement en énergie pour un photon gamma incident, pour différents types de détecteurs	77
4.5. Schéma de principe d'un ensemble de mesure par coïncidences $4\pi\beta/\gamma$ (J. Bouchard [3])	78
4.6. Exemple de courbe d'extrapolation [4]	81
4.7. Schéma de principe du détecteur Cerenkov-Gamma	82
4.8. Vue extérieure du prototype de détecteur Cerenkov-gamma	83
4.9. Vue intérieure du prototype de détecteur Cerenkov-gamma	83
4.10. Chaîne de mesure du prototype de détecteur Cerenkov-Gamma	84
4.11. Détermination des seuils des discriminateurs pour les deux photomultiplicateurs	85
4.12. Vue de la simulation de la voie bêta du détecteur pour une cellule de $^{60}\text{Co-MnSO}_4$	87
4.13. Vue agrandie de la simulation de la voie bêta du détecteur pour une cellule de $^{60}\text{Co-MnSO}_4$	87
4.14. Rendement quantique du photomultiplicateur Hamamatsu R7056	89
4.15. Courbe de rendement intrinsèque du cristal NaI(Tl)	90
4.16. Transmittance du MnSO_4 pour différents trajets optiques	92
4.17. Mise en plan de la cellule de mesure en quartz du détecteur Cerenkov-gamma	93
4.18. Illustration du calcul de la surface de peinture réfléchissante	94
4.19. Photo de la cellule en quartz du détecteur Cerenkov-gamma	94
4.20. Vues 3D intérieures et extérieures du châssis du détecteur Cerenkov-gamma	95
4.21. Photo du détecteur Cerenkov-gamma en ligne	97
4.22. Schéma de principe de la carte numérique développée	98
4.23. Carte FPGA utilisée pour la gestion des coïncidences Cerenkov-gamma	99
4.24. Schéma d'interconnexion de la carte FPGA utilisée pour l'acquisition de données du détecteur Cerenkov-gamma	100
4.25. Carte Amptek DP5	101
4.26. Unité d'acquisition de données du détecteur à coïncidences Cerenkov-gamma	102
4.27. Vue de la géométrie modélisée : matériaux (à gauche) et corps (à droite)	103

4.28. Probabilité d'interaction Compton du gamma de 1,173 MeV du ^{60}Co : distribution de l'énergie déposée dans le liquide scintillant	103
4.29. Probabilité d'interaction Compton du gamma de 1,333 MeV du ^{60}Co	104
4.30. Taux de comptage aux 3 points de fonctionnement et courbe d'extrapolation correspondante	105
5.1. Caractéristiques de la source AmBe étalonnée	109
5.2. Courbe d'extrapolation pour les comptages Cerenkov-gamma obtenus pour la source AmBe	112
5.3. Photographie de l'ensemble de mesure de l'anisotropie par la méthode du cône d'ombre	114
5.4. Facteur d'anisotropie de la source de neutrons. Rapport du débit de fluence mesuré pour un angle donné à la moyenne des débits de fluence mesurés sur l'ensemble des 11 angles de mesure	115
5.5. Géométrie du système de mesure de l'anisotropie de la source	116
5.6. Schéma global de l'exercice ^{56}Mn	117
5.7. Fenêtres gamma large (F_L) et moyenne (F_M) utilisée pour la méthode de la courbe d'extrapolation appliquée aux coïncidences Cerenkov-gamma hors ligne	118
5.8. Courbes d'extrapolations obtenues pour la méthode des coïncidences Cerenkov-gamma hors-ligne	119
5.9. Installation utilisée lors de l'exercice ^{56}Mn pour la mesure par coïncidences Cerenkov-gamma en ligne	120
5.10. Résultats de la méthode de la courbe d'extrapolation pour les coïncidences Cerenkov-gamma en ligne lors de l'exercice ^{56}Mn	121
5.11. Photo de l'installation utilisée pour la mesure complémentaire en coïncidences Cerenkov-gamma en ligne	123
5.12. Courbe d'extrapolation pour la mesure complémentaire en coïncidences Cerenkov-gamma en ligne	124
A.1. Diffusion élastique d'un neutron	133
A.2. Diffusion inélastique d'un neutron	134
A.3. Capture d'un neutron par un atome d'hydrogène	134
A.4. Capture d'un neutron par un atome de deutérium	135
A.5. Transmutation d'un atome d'oxygène en azote	135
A.6. Transmutation d'un atome de soufre en silicium	135
A.7. Fission d'un atome d'uranium	136
C.1. Schéma du code implémenté dans la carte FPGA	148

Liste des tableaux

1.1.	Caractéristiques des sources de type (alpha,n) [5]	16
1.2.	Caractéristiques des cibles pour les sources (alpha,n)	18
1.3.	Caractéristiques des principales sources de photo-neutrons	21
2.1.	Valeurs typiques de facteurs d'anisotropie $F_I(90^\circ)$ pour différents types et dimensions de sources	43
3.1.	Résultats des simulations du système complet modélisé via MCNPX, GEANT4 et FLUKA	64
3.2.	Fluences totales simulées, normalisées sur la surface de la sphère	67
3.3.	Résultats des simulations MCNPX, GEANT4 et FLUKA de la géométrie simplifiée	68
3.4.	Résultats des simulations MCNPX, GEANT4 et FLUKA du modèle avec neutrons mono-énergétiques	68
3.5.	Principe de la méthode de validation des codes de calcul Monte-Carlo	70
4.1.	Activité mesurée lors du test du détecteur Cerenkov-gamma avec une source de ^{60}Co	85
4.2.	Activité mesurée lors du test du détecteur Cerenkov-gamma avec une cellule de $^{60}\text{Co-MnSO}_4$	89
4.3.	Transmission des gamma du ^{56}Mn dans le plomb	96
4.4.	Comparaison des activités obtenues pour une source de ^{60}Co	105
5.1.	Résultats de la simulation du bain de manganèse pour la source AmBe N20	110
5.2.	Taux de comptage en coups par seconde obtenus lors des mesures par coïncidence Cerenkov-gamma et incertitude type associée	111
5.3.	Taux de comptage en coups par seconde obtenus lors des mesures par comptage gamma et incertitude type associée	113
5.4.	Facteur d'anisotropie de la source neutron. Rapport du débit de fluence mesuré pour un angle donné à la moyenne des débits de fluence mesurés sur l'ensemble des 11 angles de mesure	115
5.5.	Probabilités de capture simulées sous MCNPX pour des sphères de diamètres 10, 20, 30 et 40 cm	125

Résumé

La méthode de mesure de référence du débit d'émission de sources neutroniques se fonde sur la technique du bain de manganèse. Elle est destinée à étalonner des sources de neutrons utilisant des radionucléides ($^{241}\text{AmBe}$, $^{239}\text{PuBe}$, ^{252}Cf , ...) en termes de débit d'émission neutronique sous 4π sr. Ce dispositif est complété par un banc de mesure de l'anisotropie d'émission utilisant un support rotatif et un compteur long de type BF_3 . La source à mesurer est immergée dans une solution de sulfate de manganèse et les neutrons émis sont capturés par les constituants du bain. Dans une configuration classique (sphère de bain de manganèse de 1 m de diamètre et solution concentrée), environ la moitié de ces neutrons conduisent à la création de ^{56}Mn par réaction (n, γ) sur ^{55}Mn . Le radionucléide ^{56}Mn a une période radioactive d'environ 2,6 heures et le bain de manganèse atteint son activité de saturation en ^{56}Mn quand le nombre d'atomes radioactifs créés par unité de temps devient égal au nombre d'atomes se désintégrant pendant ce même temps. Le débit d'émission de la source peut alors être déduit de l'activité en ^{56}Mn de la solution à saturation, via une modélisation ad hoc des réactions nucléaires se produisant dans le bain.

Cette installation a été récemment rénovée au LNE-LNHB afin de respecter les règles de sécurité et de radioprotection en vigueur. Cette rénovation a été l'occasion de moderniser et de remettre à niveau les méthodes de mesure et de modélisation du bain et d'entreprendre une étude sur le développement d'un détecteur original pour la mesure directe en ligne de l'activité du manganèse. Ce détecteur est fondé sur la méthode de mesure par coïncidences β - γ . La voie bêta est constituée de deux photomultiplicateurs permettant de détecter l'émission de lumière due à l'effet Cerenkov et la voie gamma utilise un détecteur à scintillateur solide. L'intérêt de cette méthode de mesure est qu'elle permet d'avoir accès à l'activité du bain sans nécessiter d'étalonnage préalable, contrairement à la méthode classique qui utilise un compteur gamma et nécessite la fabrication d'une source de haute activité.

Le principe de mesure a été validé à l'aide d'un prototype de détecteur et d'une modélisation effectuée à l'aide du code de calcul stochastique GEANT4. Le détecteur définitif a été réalisé et les mesures obtenues ont été comparées à celles données par une méthode primaire présente au laboratoire. Par ailleurs, des modélisations du bain de manganèse effectuées sous GEANT4, MCNPX et FLUKA, ont été comparées afin de choisir le code le plus fiable. Cette comparaison a permis d'identifier des lacunes notamment dans le code GEANT4 ainsi que des facteurs d'incertitude nécessitant une attention particulière, tels que la modélisation de l'émission neutronique et le choix des sections efficaces.

Enfin, un étalonnage de source neutronique a été réalisé grâce à la méthode Cerenkov-gamma et aux facteurs correctifs donnés par la nouvelle modélisation du bain sous MCNPX. Ces mesures ont été complétées dans le cadre d'une comparaison comprenant également des mesures par l'ancienne méthode après étalonnage du couple bain/détecteur par irradiation d'une cible de manganèse en réacteur. Au terme de cette étude, plusieurs voies d'améliorations ont été proposées, dont certaines font déjà l'objet de travaux au LNHB.

Mots-clefs :

Source neutronique, bain de manganèse, étalonnage, métrologie, GEANT4,
MCNPX

Abstract

The manganese bath technique is the reference method for neutron source emission rates calibration. It is used to calibrate neutron sources using radionuclides (AmBe, PuBe, ^{252}Cf , ...) in terms of neutron emission rate under 4π sr. As a complement to this technique, the anisotropy of the source is measured using a rotating source holder and a neutron long counter.

The neutron source to be measured is immersed in a manganese sulphate solution whereby the emitted neutrons are captured within the bath contents. In a typical configuration (a 1m diameter sphere and a concentrated solution), approximately half of the neutrons lead to the creation of ^{56}Mn via the $^{55}\text{Mn}(n, \gamma)$ capture reaction. The ^{56}Mn radionuclide has a half-life of approximately 2.6 hours and the bath reaches saturation when the number of nuclei decaying is equal to the number of nuclei created per unit time. The neutron emission rate from the source can then be deduced from the ^{56}Mn activity at saturation, assuming proper modelling of the nuclear reactions occurring in the bath.

The manganese bath facility at LNE-LNHB has been recently refurbished in order to comply with appropriate safety and radioprotection regulations. This has led to the upgrading of both the measurement methodology and the modelling of the bath, and a study on the development of a new detector for the on-line measurement of the manganese activity was started. This new detector uses the β - γ coincidence measurement method. The β channel consists of two photomultiplier tubes which allow the detection of Cerenkov light, and the gamma channel uses a solid scintillation detector. The advantage of this measurement method is that it allows the determination of the bath activity without any prior calibration, unlike the former method which uses a gamma-ray detector calibrated using a high activity manganese source.

The principle of the Cerenkov-gamma coincidence measurement has been validated by a prototype of the detector and via modelling of the system using the stochastic transport code GEANT4. The final detector has also been made and the results obtained have been compared to those from a primary measurement method already in use at LNE-LNHB. Furthermore, a comparison of the results from modelling the manganese bath with GEANT4, MCNPX and FLUKA have been undertaken to find the most reliable code. This comparison led to the identification of various weaknesses, particularly in GEANT4, and several uncertainty factors, such as the modeling of the neutron emission and the choice of the cross-section library.

Finally, neutron source calibration has been carried out with the Cerenkov-gamma method and the correction factors given by the new modeling of the bath using MCNPX. These results have been complemented with a comparison with the former method simultaneously undertaken, after calibration of the detector in the bath using a ^{56}Mn source irradiated in a nuclear reactor.

At the end of this study, several improvements have been proposed, from which a number are currently under development at LNE-LNHB.

Keywords :

Neutron source, manganese bath, calibration, metrology, GEANT4, MCNPX

Remerciements

J'aimerais tout d'abord remercier mon directeur de thèse, Philippe Cassette, notamment pour sa pédagogie et la confiance qu'il m'a apporté au quotidien. Je le remercie également pour son ouverture d'esprit, et pour m'avoir permis de participer à tous les domaines que ce projet a abordé : plomberie, mécanique, électronique, optique, chimie, nettoyage, manutention, et (quelque fois tout de même) la métrologie des rayonnements ionisants. Je remercie également Jean-Louis Chartier pour sa participation aux travaux de modélisation et pour ses conseils.

J'exprime ma gratitude aux personnes m'ayant apporté leur soutien au quotidien : Isabelle Le Garrères, qui m'a gentiment accueilli dans son bureau, Carole Fréchou, pour sa bonne humeur et ses conseils, et Michel Barbier, pour m'avoir si souvent laissé l'accès au "laboratoire de préparation" et pour son suivi notamment pendant les travaux de rénovation de l'installation.

Mes remerciements vont aussi à l'équipe de direction du LMA et du LNE-LNHB, François Damoy, Thierry Branger, et Loïc Lenoir de Carlan, pour m'avoir fait confiance dès le début de la thèse. Tout comme l'ensemble du personnel du LNHB, ils ont largement contribué à la bonne ambiance qui a régné tout au long de ces trois ans. Je tiens aussi à remercier le LNE qui m'a permis de travailler dans les meilleures conditions.

Je remercie également Vincent Gressier, Guy Ratel, Laurent Tassan-Got et Neil Roberts pour avoir accepté de participer à mon jury.

Je tiens enfin à remercier ma famille : mes parents, qui ont cru en moi et m'ont donné les moyens d'arriver jusque là, Cristina, qui supporte tous les jours mon sale caractère, et mes grands-mères, Fernande et Marguerite, qui depuis tant de temps savent me transmettre leur force et dont je suis fier aujourd'hui. Pour finir, je pense à mes grands-pères, Henri et Fernand, qui m'ont donné l'ouverture d'esprit et la ténacité malgré les épreuves, et à qui je dédie cette thèse.

Introduction

L'apparition des besoins d'étalonnage de sources neutroniques solides a coïncidé avec la mise en place de procédés de fabrication reproductibles pour ce type de source, accélérée par les recherches intensives menées dans ce domaine lors de la deuxième guerre mondiale. Dès lors, la difficulté de détection “directe” des neutrons poussa la communauté scientifique vers le développement de méthodes “indirectes”, notamment par activation d'un milieu irradié par la source de neutrons à étalonner. C'est dans ce contexte que, inventée par une jeune émigrée allemande promise à une brillante carrière, Gertrude Scharff-Goldhaber, naquit en 1942 la méthode dite du “bain de manganèse”, destinée à devenir la méthode de référence dans la métrologie de l'émission neutronique.

Le principe de base peut être décrit simplement comme suit : la source à étalonner est plongée dans une cuve contenant une solution de sulfate de manganèse, les neutrons émis par la source sont thermalisés et capturés par le bain, activant ainsi le ^{55}Mn en ^{56}Mn dont l'activité résultante est mesurée. Cette méthode, toujours utilisée par la plupart des laboratoires nationaux de métrologie tels que le LNHb, comporte cependant plusieurs inconvénients, à l'origine des travaux effectués au cours de cette thèse. En effet, le principe même de l'activation neutronique nécessite de connaître la relation entre l'émission neutronique et l'activité du matériau cible, ainsi que la réponse de l'appareil de mesure à une activité du bain donnée. Il est donc impératif, d'une part de décrire précisément les interactions entre les neutrons émis et le bain, et d'autre part d'étalonner le détecteur avec une solution de $^{56}\text{MnSO}_4$ d'activité connue. Or, cette dernière condition pose des problèmes de radioprotection (nécessité d'irradier une cible de ^{55}Mn en réacteur) et fait du bain de manganèse une méthode secondaire (et non primaire), compte tenu de l'étalonnage pré-requis.

La problématique de cette thèse apparaît donc ici naturellement : développer un système de mesure directe du débit d'émission de sources neutroniques. Dans ce document, les différentes étapes ayant permis de répondre à l'objectif d'optimisation de la méthode du bain de manganèse seront progressivement abordées.

Le premier chapitre décrira les types de sources neutroniques pouvant être étalonnées par cette méthode, ainsi que la métrologie qui leur est associée et les applications pour lesquelles elles sont utilisées. Ensuite, au chapitre 2, la méthode du bain de manganèse sera décrite en suivant la chronologie de ses évolutions, pour chaque aspect de la technique. Son application dans une sélection des différents laboratoires nationaux de métrologie figure également dans ce deuxième chapitre. Les chapitres 3 et 4 traitent des travaux effectués lors de cette thèse : les aspects de modélisation

du bain ainsi que le détecteur Cerenkov-gamma développé y sont décrits en détails. Enfin, le chapitre 5 présente les différents étalonnages réalisés à l'aide du nouveau détecteur ainsi que les exercices de comparaison qui ont mené à sa qualification, et à l'identification de voies d'améliorations possibles.

1. Sources neutroniques

La méthode du bain de manganèse concerne uniquement les sources neutroniques solides (issues de matériaux radioactifs), dont on distingue trois grands types en fonction des réactions nucléaires induisant l'émission d'un neutron. Ce chapitre décrit les sources considérées dans cette étude, les applications pour lesquelles elles sont utilisées, et enfin, la métrologie qui leur est associée.

1.1. Sources neutroniques considérées

1.1.1. Sources (alpha,n)

De nombreux radionucléides se désintègrent par l'émission d'une particule alpha. Il est possible de fabriquer une source de neutrons en mélangeant un isotope émetteur alpha avec un matériau cible permettant la réaction (alpha,n). Le rendement maximum en neutrons pour cette réaction est obtenu pour une cible en béryllium. Les neutrons sont produits par la réaction suivante :



Sur 10 000 particules alpha émises, seule 1 sera absorbée par un noyau de béryllium. En pratique, le matériau émetteur de neutrons est un mélange homogène de béryllium et d'un émetteur alpha. Tous les émetteurs alpha d'intérêt sont des actinides, des études ayant montré qu'un alliage stable peut être formé avec des actinides et du béryllium, sous la forme MBe, où M représente l'actinide métal. La plupart des sources décrites ci-dessous se présentent donc sous la forme d'alliages, où chaque particule alpha a la possibilité d'interagir avec un noyau de béryllium sans perte intermédiaire d'énergie.

Les alliages d'émetteur alpha et de béryllium les plus couramment utilisés sont listés dans le Tableau 1.1 ci-dessous [5].

Plusieurs de ces isotopes, notamment ${}^{226}Ra$ et ${}^{227}Ac$, ont une longue chaîne de descendants qui contribue à l'émission alpha et gamma. Ces sources peuvent donc être inappropriées dans certaines applications où le bruit de fond gamma interfère

Source	Période	E_α (MeV)	Nb de neutrons pour 10^6 alpha primaires	% de neutrons avec $E_n < 1,5$ MeV
$^{239}\text{PuBe}$	24000 a	5,14	57	9-33
$^{210}\text{PoBe}$	138 j	5,30	69	12
$^{238}\text{PuBe}$	87,4 a	5,48	79	-
$^{241}\text{AmBe}$	433 a	5,48	70	15-23
$^{244}\text{CmBe}$	18a	5,79	100	29
$^{242}\text{CmBe}$	162 j	6,10	106	26
$^{226}\text{RaBe}$ + descendants	1602 a	Multiple	502	33-38
$^{226}\text{AcBe}$ + descendants	21,6 a	Multiple	702	38

Tableau 1.1.: Caractéristiques des sources de type (alpha,n) [5]

avec la mesure. Elles requièrent des moyens de radioprotection et de manutention plus sophistiqués.

Le reste des isotopes présentés dans le tableau n'implique qu'un seul émetteur alpha. Le choix entre ces différentes sources est principalement guidé par les critères de disponibilité, de coût, et de période radioactive.

La source de $^{239}\text{PuBe}$ est l'une des premières sources de type (alpha,n) à avoir été utilisée. Cependant, 16 g de $^{239}\text{PuBe}$ sont nécessaires pour obtenir $3,7 \cdot 10^{10}$ Bq (1 Ci) d'activité, limitant les sources de quelques centimètres de diamètre à environ 10^7 neutrons par seconde. Pour obtenir des débits d'émission neutronique plus élevés sans augmenter les dimensions de la source, les sources de $^{241}\text{AmBe}$ et $^{238}\text{PuBe}$ sont également très largement utilisées. Les sources de $^{244}\text{CmBe}$ représentent quant à elle un compromis idéal entre activité spécifique et durée de vie, mais sont plus rares.

Les spectres de distribution énergétique des neutrons émis par de telles sources alpha/Be sont relativement similaires, les différences étant dues aux variations de l'énergie des particules alpha primaires. La Figure 1.1 suivante présente le spectre d'émission neutronique d'une source $^{241}\text{AmBe}$ (alpha,n) [1].

Les différents pics présents dans cette distribution énergétique correspondent aux niveaux d'excitation du noyau de ^{12}C , et l'énergie moyenne des neutrons émis est de 4,4 MeV. Les particules alpha incidentes perdent une quantité variable d'énergie avant d'atteindre le noyau cible de béryllium, et leur distribution énergétique continue "lisse" le spectre des neutrons émis qui serait observé si les particules alpha étaient mono-énergétiques. Pour les sources qui ne contiennent que quelques grammes de matériau radioactif, la norme ISO8529-1 [1] spécifie que le spectre des neutrons qui franchissent la surface de la source est essentiellement le même que celui émis lors de la réaction (alpha,n). En réalité (et notamment pour des sources aux

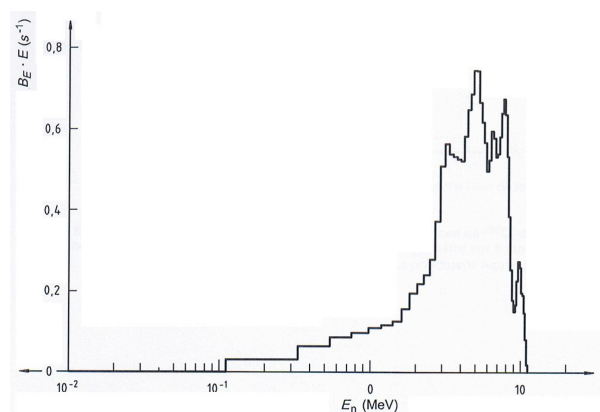


Figure 1.1.: Spectre d'émission neutronique d'une source $^{241}\text{AmBe}(\alpha, n)$ (ISO8529-1)[1]

dimensions plus importantes), les processus secondaires de diffusion des neutrons à l'intérieur de la source ainsi que les réactions (n,2n) sur le béryllium et (n,fission) sur l'élément émetteur alpha entraînent une dépendance du spectre en fonction des dimensions de la source. De plus, le matériau radioactif se présentant sous forme de poudre, la distribution énergétique des neutrons peut également varier en fonction de la taille des grains élémentaires [6].

A cause des fortes activités en actinide nécessaires pour former de telles sources neutroniques, leur fabrication requiert de s'assurer du confinement du matériau radioactif. Ainsi, l'alliage actinide-béryllium est le plus souvent scellé à l'intérieur de deux enveloppes en acier inoxydable, comme on peut le voir sur la Figure 1.2 suivante. Un espace vide peut être laissé entre le matériau et la première enveloppe pour contenir l'hélium gazeux formé par ces particules alpha.

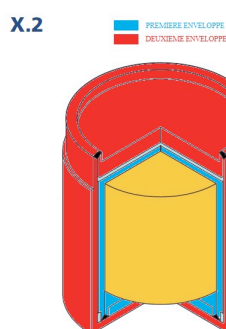


Figure 1.2.: Vue en coupe d'une source de type MBe(alpha,n)

En pratique, lorsque ces sources sont utilisées, notamment pour étalonner des détecteurs, il est nécessaire de prendre en compte la diminution du débit d'émission neutronique, proportionnellement à la décroissance de l'activité en actinide émetteur alpha. De petites quantités de contaminants émetteurs alpha peuvent influencer le

débit d'émission neutronique. Ces contaminants sont présents dans la composition isotopique de l'actinide, ou proviennent de descendants de ce dernier. Par exemple, la plupart des sources de $^{239}\text{PuBe}$ sont préparées à partir de plutonium contenant de petites quantités d'autres isotopes du Pu , tel que ^{241}Pu qui se désintègre avec une période de 14,33 ans en formant du ^{241}Am , lui-même émetteur alpha. Le débit d'émission neutronique de ces sources peut ainsi croître avec le temps, à mesure que le ^{241}Am s'accumule dans la source. Une fraction isotopique initiale de 0,7 % de ^{241}Pu mènera à un taux de croissance initial du débit d'émission neutronique de 2% par an [7].

D'autres éléments cibles pour la réaction (alpha,n) ont été employés pour la fabrication de sources de neutrons, avec pour chacun d'entre eux une quantité de neutrons par particules alpha primaires émises toujours plus faible qu'avec le béryllium. Différents éléments cibles sont utilisés afin d'obtenir des énergies moyennes différentes en fonction des applications. Les principaux éléments cibles et les caractéristiques des sources associées sont présentés dans le Tableau 1.2 suivant [8, 9].

Cible	Réaction	Q-value	Quantité de neutrons pour 10^6 particules alpha primaires
Bore	$^{10}\text{B}(\alpha, n)$	+1,07 MeV	13 avec ^{241}Am
	$^{11}\text{B}(\alpha, n)$	+0,158 MeV	
Fluor	$^{19}\text{F}(\alpha, n)$	-1,93 MeV	4,1 avec ^{241}Am
^{13}C (isotope pur)	$^{13}\text{C}(\alpha, n)$	+2,2 MeV	11 avec ^{238}Pu
Lithium naturel	$^7\text{Li}(\alpha, n)$	-2,79 MeV	
Béryllium	$^9\text{Be}(\alpha, n)$	+5,71 MeV	70 avec ^{241}Am

Table 1.2.: Caractéristiques des cibles pour les sources (alpha,n)

1.1.2. Sources de fission spontanée

La plupart des radionucléides transuraniens de nombre de masse pair ont une probabilité de fission spontanée conséquente. Plusieurs neutrons rapides sont émis à chaque fission, ce qui constitue une source de neutrons simple et relativement facile à réaliser. Lors du processus de fission, il y a également émission de rayons gamma, auxquels les émissions bêta et gamma des produits de fission doivent être ajoutées. La source neutron de fission est donc encapsulée dans une enveloppe telle que la plupart des neutrons rapides et les gammas émergent de la source.

La source de fission spontanée la plus commune est constituée de ^{252}Cf . Sa période radioactive est de 2,647 ans. Le processus dominant au sein du ^{252}Cf est la désintégration alpha, qui est 32 fois plus probable que la fission spontanée. Le débit d'émission neutronique associé est de 0,116 neutron par seconde pour un becquerel

de ^{252}Cf . Le débit d'émission massique est de $2,30 \cdot 10^6$ neutrons par seconde par microgramme. La Figure 1.3 suivante présente le spectre d'émission neutronique d'une source de ^{252}Cf telle que définie dans la norme [1].

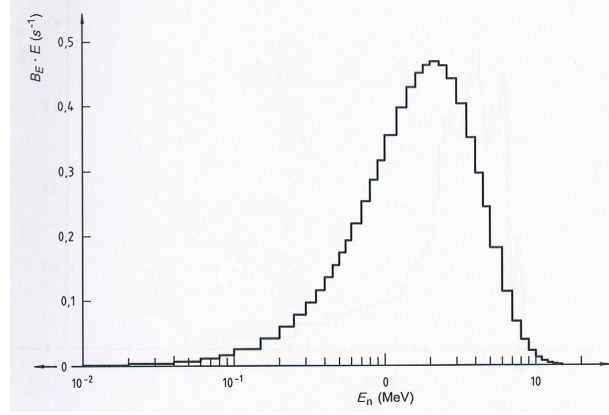


Figure 1.3.: Spectre de neutrons d'une source de fission spontanée de ^{252}Cf

1.1.3. Sources (gamma,n)

Certains radionucléides émetteurs gamma peuvent être utilisés pour produire des neutrons lorsqu'ils sont associés à un élément cible approprié. Les sources de "photo-neutrons" se basent sur l'excitation suffisante du noyau cible par absorption du photon gamma pour émettre un neutron. Seuls deux éléments cibles, ^9Be et ^2H sont utilisés en pratique pour former des sources neutrons de type (gamma,n). Les réactions correspondantes sont les suivantes :



Un photon gamma d'énergie au moins égale à la valeur absolue de Q est requis pour rendre chaque réaction possible. Pour les gammas dont l'énergie excède ce minimum, l'énergie du neutron produit peut être déterminée par l'équation suivante :

$$E_n(\theta) \cong \frac{M(E_\gamma + Q)}{m + M} + \frac{E_\gamma [(2mM)(m + M)(E_\gamma + Q)]^{1/2}}{(m + M)^2} \cos\theta \quad (1.4)$$

où θ est l'angle entre la direction du photon gamma et celle du neutron produit,

E_γ est l'énergie du gamma,

M est la masse du noyau cible $\times c^2$,

m est la masse du neutron $\times c^2$.

Un des avantages des sources de photo-neutrons est que les gammas étant mono-énergétiques, les neutrons produits sont également mono-énergétiques. La faible dispersion observée de l'équation précédente en faisant varier θ de 0 à 90° n'élargit le spectre énergétique des neutrons que de quelques pour-cents. Pour des sources non ponctuelles, le spectre est aussi dégradé par la diffusion des neutrons à l'intérieur de la source. De plus, ces sources peuvent être "rechargées" par irradiation en pile.

Le principal inconvénient des sources de photo-neutrons est que des activités gamma très importantes sont nécessaires si l'on veut obtenir des débits d'émission neutronique exploitables. Pour le type de source présenté dans la figure suivante, environ 1 gamma sur 10^5 à 10^6 va produire un neutron, le bruit de fond gamma va donc être particulièrement intense. Une vue en coupe de l'agencement interne d'une source de photo-neutrons est présentée en Figure 1.4 suivante [5].

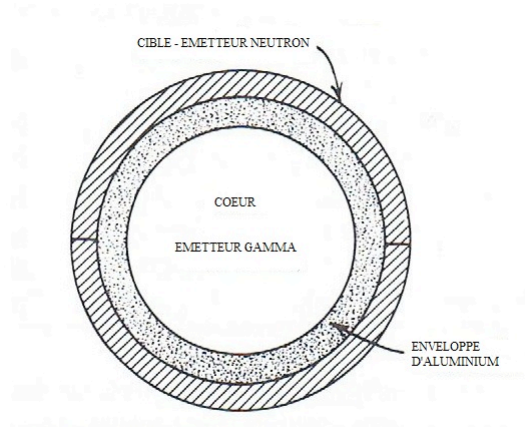


Figure 1.4.: Vue en coupe d'une source de photo-neutrons typique

Le Tableau 1.3 ci-dessous résume les caractéristiques des sources de photo-neutrons [5].

émetteur gamma	période	énergie des gamma (MeV)	cible	énergie des neutrons (keV)	quantité de neutrons par seconde pour 10^{10} Bq
^{24}Na	15 h	2,7541	Be	967	340 000
		2,7541	D	263	330 000
^{28}Al	2,24 min	1,7787	Be	101	32 600
^{38}Cl	37,3 min	2,1676	Be	446	43 100
^{56}Mn	2,58 h	1,8107	Be	129	91 500
		2,1131		398	91 500
		2,9598		1149	91 500
		2,9598	D	365	162
^{72}Ga	14,1 h	1,8611	Be	174	64 900
		2,2016		476	64 900
		2,5077		748	64 900
		2,5077	D	140	25 100
^{76}As	26,3 h	1,7877	Be	109	3050
		2,0963		383	3050
^{88}Y	107 j	1,8361	Be	152	229 000
		2,7340		949	229 000
		2,7340	D	253	160
$^{116\text{m}}\text{In}$	54,1 min	2,1121	Be	397	15 600
^{124}Sb	60,2 j	1,6910	Be	23	210 000
^{140}La	40,3 h	2,5217	Be	760	10 200
		2,5217	D	147	6600
^{144}Pr	17,3 min	2,1856	Be	462	690

Tableau 1.3.: Caractéristiques des principales sources de photo-neutrons

1.2. Utilisation

Les sources neutroniques solides telles que décrites dans les paragraphes précédents sont utilisées dans une grande variété d'applications. Une liste non-exhaustive de ces applications est donnée ci-dessous :

- Prospection géologique (par “diagraphie”) : la source de neutrons est placée dans un trou de forage, à la profondeur de la couche géologique à analyser. Dans le cas

de neutrons rapides incidents, les réactions les plus importantes sont la diffusion et la capture. Il se produit une diffusion élastique lorsque les neutrons de grande vitesse initiale sont progressivement ralentis. Le ralentissement est très prononcé dans un milieu contenant de l'hydrogène. Ainsi, en mesurant le flux de neutrons thermiques au cours de l'irradiation de la roche par des neutrons rapides, on peut connaître la teneur en hydrogène. Cette méthode de radio-carottage peut aussi servir à la prospection du pétrole, du gaz et de l'eau. Elle est d'ailleurs d'un usage courant dans la prospection du pétrole et du gaz [10].

- Analyse par activation neutronique : c'est une méthode d'analyse exclusivement élémentaire. Sa mise en oeuvre consiste à irradier l'échantillon à analyser dans un flux de neutrons thermiques, et à identifier, après irradiation, les isotopes radioactifs créés à partir des éléments à doser. Par son principe même, la méthode est unique parmi les méthodes d'analyse : l'excitation concerne le noyau de l'atome et les mesures portent sur les isotopes radioactifs artificiels ainsi créés. Il en résulte un certain nombre d'avantages : l'analyse est non seulement multi-élémentaire et très sensible, mais de plus sa réponse est indépendante de la forme chimique de l'élément [11].
- Démarrage de réacteur : les sources de démarrage les plus courantes sont des sources de type (α, n) ou (γ, n) . Des sources d'émission neutronique très faible sont théoriquement suffisantes pour faire démarrer une réaction en chaîne dans un réacteur. En pratique, on introduit une source beaucoup plus intense, de façon à pouvoir suivre la divergence par mesure de flux neutronique jusqu'à ce qu'une puissance significative soit atteinte. La source peut alors être indifféremment ôtée ou laissée en place, puisque la réaction en chaîne de fissions induites devient prépondérante [12].
- Instrumentation dans le cycle du combustible nucléaire : les sources de référence et d'étalonnage sont couramment employées par les exploitants de réacteurs de puissance et d'installation nucléaire en général. Elles permettent l'étalonnage et le contrôle des détecteurs neutroniques utilisés in-situ et des détecteurs mobiles des services de radioprotection.
- Détection d'explosifs et de narcotiques : les méthodes d'interrogation neutronique ont connu un essor notable depuis le début des années 2000, notamment dans le domaine de la lutte anti-terroriste. Plusieurs techniques utilisant des sources neutroniques telles que le ^{252}Cf ont vu le jour. Parmi elles, l'analyse à neutrons thermiques, utilise le fait que toutes les matières explosives contiennent une importante quantité d'azote. La capture d'un neutron thermique par un noyau d'azote entraîne l'émission d'un rayon gamma dont l'énergie est de 10,8 MeV. Comme c'est le rayon gamma d'énergie maximale émis par un isotope naturel, il indique très clairement la présence d'azote. D'autres détecteurs commerciaux utilisent la rétrodiffusion des neutrons émis par la source pour détecter la présence de matériaux illicites [13, 14].
- Contrôle non destructif : les sources neutrons sont également d'utilité dans l'industrie, notamment grâce à la neutronographie. La radiographie aux neutrons est une technique d'imagerie par transparence qui fournit des résultats similaires aux

radiographies par rayons X. Les différences entre les modes d'interactions avec la matière produisent des résultats spécifiques et souvent complémentaires. Contrairement à ce qui est observé avec les rayons X, l'absorption des neutrons ne croît pas avec la densité de la matière traversée. Par exemple, les matériaux organiques ou l'eau sont parfaitement visualisés sur les neutronographies grâce aux atomes d'hydrogène qu'ils contiennent alors que certains métaux comme l'aluminium, le plomb ou l'acier sont relativement transparents. Cette technique est couramment utilisée dans l'industrie aérospatiale [15, 16].

1.3. Métrologie associée

1.3.1. Contexte

En métrologie, la métrologie fondamentale et la métrologie légale peuvent être distinguées. La métrologie fondamentale, coordonnée par le Bureau international des poids et mesures (BIPM), s'attache au Système international d'unités (SI) et aux étalons de mesure associés. La métrologie légale est l'ensemble des procédures législatives, administratives et techniques permettant de spécifier et d'assurer la qualité et la crédibilité des mesures relatives aux contrôles officiels, au commerce, à la santé, à la sécurité et à l'environnement. La métrologie légale, qui s'appuie sur la métrologie fondamentale, est coordonnée par l'Organisation Internationale de Métrologie Légale (OIML) [17].

En France, le Laboratoire national de métrologie et d'essais (LNE) a pour mission de préparer et de mettre en œuvre la politique nationale de métrologie. Le Laboratoire National Henri Becquerel (LNE-LNHB) du CEA, au sein duquel a été effectuée cette thèse, est le laboratoire en charge de la métrologie des rayonnements ionisants. A ce titre, il développe les références primaires nationales et assure leur transfert aux utilisateurs. Son périmètre inclut la radioactivité et la dosimétrie des photons et particules chargées. Dans le domaine des neutrons, le LNHB développe les références de débit d'émission pour les sources issues de matériaux radioactifs. L'IRSN (DRPH/SDE/LMDN) est en charge des références dosimétriques pour ces particules.

1.3.2. Mesurandes

Dans le cadre de la métrologie des neutrons associée à la radioactivité, le débit d'émission neutronique constitue le mesurande de première importance (voir chapitre 1). Le débit d'émission neutronique, B , représente le nombre de neutrons émis par seconde sous 4π sr d'angle solide. Si la source est de forme sphérique, ou si ses dimensions sont suffisamment petites pour qu'elle soit considérée comme une source ponctuelle, le débit de fluence dans le vide $\dot{\Phi}(cm^{-2}s^{-1})$ à la distance r (cm) peut

être facilement déterminé à partir du débit d'émission neutronique par la formule suivante :

$$\dot{\Phi} = \frac{B}{4\pi r^2} \quad (1.5)$$

En pratique, les sources sphériques sont très rares, la majorité des sources étant de forme cylindrique. Une symétrie sphérique ne pouvant pas être considérée, il est nécessaire de déterminer les variations de la fluence neutronique par rapport à la position de la source. Cette caractéristique est appelée anisotropie, et on lui attribue le paramètre “anisotropie source”, $F_I(\theta)$ que l'on introduit dans l'équation précédente pour obtenir la fluence idéale dans la direction θ par rapport à l'axe de symétrie de la source :

$$\dot{\Phi} = \frac{B}{4\pi r^2} \cdot F_I(\theta) \quad (1.6)$$

Depuis le début des années 1950, de nombreuses méthodes primaires d'étalonnage de sources neutroniques ont été développées, parmi lesquelles trois sont actuellement utilisées dans les instituts nationaux de métrologie [18, 19, 20] :

- Mesure de l'activité induite en ^{56}Mn d'une solution aqueuse de MnSO_4 (utilisée au LNE-LNHB),
- Mesure de l'activité induite dans des feuilles d'or immergées dans de l'eau,
- Mesure de la fluence neutronique dans un modérateur graphite.

La section suivante présente la totalité des méthodes développées au cours de ces 60 dernières années pour l'étalonnage des sources neutroniques en terme de débit d'émission neutronique et/ou d'anisotropie.

1.3.3. Méthodes primaires d'étalonnage

1.3.3.1. Activation de feuilles d'or

La méthode d'étalonnage de source neutronique par activation d'une cible en or date du début des années 1950. A l'origine, plusieurs variantes furent développées, principalement en ex-URSS [21] : activation de la cible en réacteur puis comparaison de l'activité induite dans le cas d'une activation par la source à étalonner, dispersion d'une poudre d'or pur dans un bain de sulfate de manganèse, etc. Mais la méthode la plus pertinente et encore existante à l'heure actuelle, consiste en l'immersion de feuilles d'or dans un volume d'eau. Les neutrons émis par une source plongée au centre de ce volume sont thermalisés et en partie capturés par les feuilles d'or.

Le récipient, en acier inoxydable et le plus souvent de forme sphérique ou cylindrique, est rempli d'eau distillée deux fois. Un système mécanique permet de positionner la

source au centre du récipient ainsi que la mise en place précise des feuilles d'or. Celles-ci sont placées dans des réceptacles étanches, généralement en verre. Le protocole classique consiste en l'irradiation de quatre feuilles d'or à la fois, dont deux sont recouvertes de cadmium pour soustraire la réponse des feuilles aux neutrons épi-thermiques. Chaque irradiation dure une dizaine de jours, les feuilles étant retournées au bout de quelques jours afin de permettre une activation homogène. On procède généralement à deux voire trois irradiations successives en fonction de la précision désirée. Après irradiation, l'activité induite dans les feuilles d'or est déterminée par la technique des coïncidences $4\pi\beta\text{--}\gamma$ [3]. L'incertitude statistique sur le comptage de l'activité dans les feuilles est le facteur limitant la gamme des sources neutroniques pouvant être étalonnées par cette méthode. Typiquement, cette méthode s'applique à des sources de 10^5 à 10^8 neutrons par seconde, avec une incertitude globale de 1% [18, 20].

1.3.3.2. Particule associée (modérateur graphite)

Le principe général de cette méthode se base sur la connaissance du ratio entre les nombres de neutrons et de particules chargées émis lors de la réaction primaire d'une part (ici la particule alpha lors de la réaction $T(d, n)^4H$), et sur la distribution spatiale des produits de la réaction d'autre part [20, 18, 19]. A partir de ces deux paramètres, il est possible de déterminer le débit d'émission neutronique en mesurant le débit de fluence de la particule associée dans un angle solide Ω . La fluence neutronique peut alors être calculée grâce à l'équation suivante :

$$\Phi = \frac{N}{\Omega \epsilon k} \eta \quad (1.7)$$

ou N est le taux de comptage de la particule associée,

ϵ est le rendement du détecteur de la particule associée,

k est le coefficient d'asymétrie d'émission de la particule associée,

Ω est l'angle solide de détection de la particule associée,

et η le ratio entre le nombre de neutrons et de particules associées émis lors de la réaction primaire.

Cependant, cette technique ne permet pas de déterminer directement le débit d'émission neutronique d'une source : elle est déterminée en la comparant à la réponse à un générateur de neutrons dont la fluence est connue. Une installation de ce type existe au VNIIM (laboratoire national de métrologie, Saint-Petersbourg, Russie), dont on peut voir une vue d'ensemble et une vue en coupe dans les Figure 1.5 et Figure 1.6 ci-dessous.

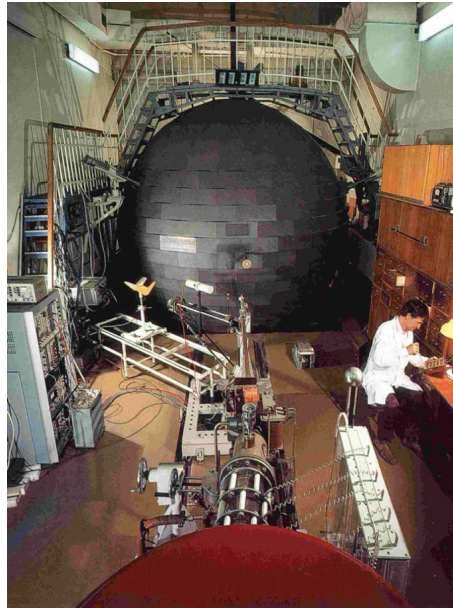


Figure 1.5.: Vue d'ensemble du modérateur graphite pour la technique de la particule associée (VNIIM, Saint-Pétersbourg, Russie)

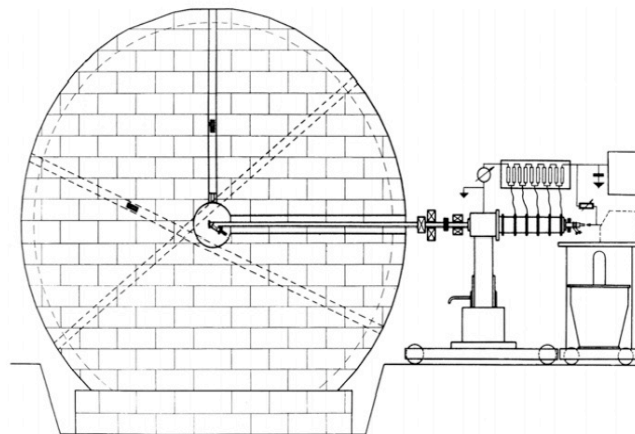


Figure 1.6.: Vue en coupe du modérateur graphite pour la technique de la particule associée (VNIIM, Saint-Pétersbourg, Russie)

La source placée au centre du modérateur en graphite émet principalement des neutrons rapides qui sont thermalisés en interagissant avec les atomes de carbone. La longueur de diffusion des neutrons thermiques (jusqu'à $1,5 \cdot 10^{-7}$ MeV) dans le carbone étant d'environ 52 cm, un modérateur d'un rayon de 2 m peut être considéré comme quasi-infini. La distribution spatiale des neutrons thermiques dans le modérateur peut être étudiée en déplaçant un détecteur de neutrons thermiques selon l'axe du modérateur. Ce détecteur présente un rendement constant de $0,1 \text{ s}^{-1} \text{ cm}^{-2}$ à 10^5

$\text{s}^{-1} \text{ cm}^{-2}$. La mesure de la distribution spatiale des neutrons thermique de la source et de la cible dure environ deux jours. Au VNIIM, le flux neutronique de référence est produit par un générateur (à droite sur la Figure 1.6) dont la chambre cible (tritium) est placée, avec le détecteur de particules alpha associées, au centre du modérateur.

Le nombre total de neutrons dans le modérateur étant proportionnel à l'intégrale S du taux de comptage $N(r)$ du détecteur de neutrons thermiques sur le volume du modérateur, r étant le rayon de la sphère :

$$S = \int N(r) r^2 dr \quad (1.8)$$

Le débit d'émission neutronique de la source peut être calculé à partir du débit d'émission neutronique B_0 du générateur mesurée par la méthode de la particule associée et les intégrales S_0 et S des taux de comptage neutronique du détecteur de neutrons thermiques dans les deux cas :

$$B = B_0 \frac{S}{S_0} \frac{k_{(n,\alpha)}}{k_{0(n,\alpha)}} \quad (1.9)$$

Avec $k_{(n,\alpha)}$ et $k_{0(n,\alpha)}$ les facteurs correctifs calculés par la méthode de Monte-Carlo pour la perte de neutrons dans le graphite due aux réactions (n,α) dans les deux cas.

1.3.3.3. Calorimétrie

La méthode par calorimétrie est une alternative beaucoup moins utilisée par les laboratoires nationaux de métrologie. Comme son nom l'indique, cette méthode est basée sur la mesure de la puissance thermique délivrée par une source de neutrons. Cependant, cette méthode ne s'applique qu'aux sources de fission spontanée, et plus particulièrement à celles qui ne sont pas fissiles par des neutrons thermiques et qui peuvent être purifiées par les méthodes radiochimiques modernes, telles que les sources ^{252}Cf et ^{244}Cm . Le taux de fission spontanée peut être calculé à partir de la puissance thermique mesurée par désintégration, et le débit d'émission neutronique de la source est alors obtenue en multipliant l'activité par la probabilité de fission et par le nombre moyen de neutrons émis par fission, ν . Des corrections sont nécessaires afin de prendre en compte l'énergie dégagée lors de la désintégration α et par la fission spontanée des autres isotopes. Cette technique nécessite des données nucléaires fiables et des informations précises sur la composition isotopique [20, 18, 22].

Un système de ce type existe au VNIIM, constitué de deux calorimètres en tungstène possédant chacun plusieurs centaines de thermocouples. La source de neutrons

à mesurer est placée dans l'un des calorimètres alors qu'une bobine de chauffage électrique est installée dans l'autre. Les températures des calorimètres sont égalisées en ajustant la puissance fournie à la bobine de chauffage. A l'équilibre thermique, la puissance délivrée à la bobine est égale à la puissance thermique de la source. La durée de la mesure dépend de l'émission neutronique de la source, et peut varier entre 5 et 10 jours. Ce système peut être utilisé pour des sources allant de 10^6 n.s^{-1} à 5.10^8 n.s^{-1} avec une incertitude type relative de 0,8 %.

1.3.3.4. Comptage des fragments de fission

Cette méthode est complémentaire aux autres techniques de mesure du débit d'émission neutronique, mais n'est applicable qu'aux sources de fission spontanée non-scellées, afin de permettre aux fragments de fission d'atteindre le détecteur.

Le principe de base de cette méthode est de déterminer le taux de fission en comptant les fragments de fission dans une géométrie connue. Le débit d'émission neutronique peut alors être calculé en multipliant le taux de fission par le nombre moyen de neutrons émis par fission. Les sources d'incertitudes sont principalement le nombre de neutrons par fission, la composition isotopique de la source, ainsi que le rendement du détecteur (dépendant de l'angle solide de détection).

Cette méthode est utilisée au PTB (Allemagne), notamment pour étalonner les sources de ^{252}Cf . L'incertitude sur l'émission neutronique est de 0,4 % pour cet exemple, pour lequel une comparaison avec le bain de manganèse du NPL a été réalisée avec succès [23, 20, 18].

Une méthode alternative a été développée au NIST (USA), dans le but de vérifier la validité des mesures effectuées avec le bain de manganèse : une source de ^{252}Cf est placée à l'intérieur d'une chambre à vide et un détecteur à barrière de surface est utilisé pour compter les fragments de fission [24].

1.3.3.5. Bain de manganèse

Depuis son invention en 1942, le bain de sulfate de manganèse est la méthode la plus utilisée par les laboratoires nationaux de métrologie. C'est également la méthode présente au LNE-LNHB depuis le début des années 1960. Le chapitre suivant est consacré à la description de cette méthode, dont l'optimisation est l'objet de cette thèse.

2. La méthode du bain de manganèse

2.1. Principe historique

La méthode dite du “bain de manganèse” fut inventée en 1942 par R. O’Neal et G. Scharff-Goldhaber (qui découvrit quelques mois plus tard l’émission de neutrons lors de fissions spontanées, et dont le mari, pour qui elle travaillait en temps qu’assistante “bénévole”, fabriqua la première source étalon de neutrons reproductible) [25].

Le principe de la méthode consiste à plonger la source à étalonner au centre d’un récipient rempli d’une solution de sulfate de manganèse. Les neutrons émis par la source sont diffusés, thermalisés et capturés par le liquide, notamment par réaction (n,gamma) sur les atomes de manganèse. On mesure ensuite l’activité en ^{56}Mn grâce à un détecteur préalablement étalonné. Le rendement du bain (c’est à dire le pourcentage de neutrons émis capturés par les atomes de ^{55}Mn) est déterminé soit par comparaison avec une source de référence, soit par calcul.

Les dimensions du bain ont varié au cours du développement de la méthode, partant d’un récipient cylindrique dont le diamètre était environ égal à sa hauteur, pour tendre vers une géométrie sphérique utilisée par la plupart des laboratoires actuels. La source de neutrons est donc placée au centre d’une sphère d’un diamètre généralement égal à un mètre, permettant une activation isotrope du bain. Certains laboratoires (comme le LNE-LNHB) utilisent des agitateurs plongés dans le liquide afin de s’assurer de l’homogénéité de l’activité dans la sphère.

La mesure de l’activité en ^{56}Mn se fait généralement à l’équilibre d’activation, lorsque le nombre d’atomes de ^{56}Mn se désintégrant égale le nombre de neutrons capturés par les atomes de ^{55}Mn . L’équilibre d’activation est également appelé “saturation”. La durée typique permettant d’atteindre la saturation est de 25 h (la période radioactive du ^{56}Mn est de 2,58 heures), quel que soit le débit d’émission de la source à étalonner. La figure suivante illustre ce phénomène.

Certains laboratoires procèdent au retrait de la source dès l’obtention de la saturation, prenant alors en compte la perte d’activité due à la décroissance du ^{56}Mn lors de la mesure de l’activité. Cependant, il est communément admis qu’une mesure à activité constante, en gardant la source au centre du système, simplifie l’étalonnage et réduit les sources d’incertitudes.

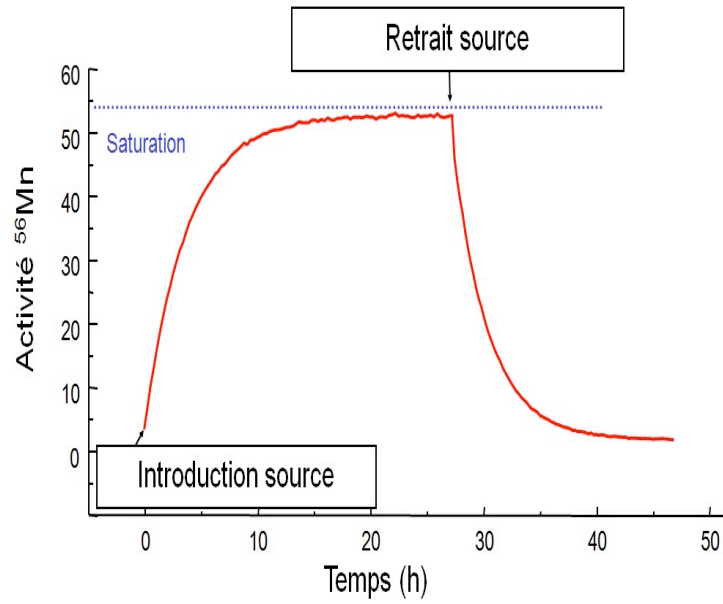


Figure 2.1.: Saturation en activité du bain de manganèse

L'application de la méthode peut donc se décomposer en cinq grandes étapes : activation du bain, étalonnage du détecteur, mesure de l'activité induite en ^{56}Mn , calcul du rendement du bain, et enfin calcul du débit d'émission de la source neutronique. L'équation utilisée pour relier le débit d'émission neutronique recherché à l'activité en ^{56}Mn mesurée a la forme suivante :

$$B = \frac{A_m M}{f(1 - \sigma)} \quad (2.1)$$

avec A_m l'activité massique en ^{56}Mn , en becquerel par kilogramme,

M la masse totale du bain, en kilogramme,

f la probabilité de capture des neutrons par le bain,

σ la probabilité de capture des neutrons par des éléments du bain autres que ^{55}Mn .

Cette équation peut varier suivant les méthodes employées pour déterminer l'activité spécifique de l'absorbeur neutronique ainsi que pour le calcul du rendement du bain.

On peut scinder cette équation en deux groupes de facteurs nécessaires au calcul de l'émission neutronique de la source à étalonner. En effet, les termes formant le numérateur sont exclusivement expérimentaux, alors qu'au dénominateur figurent les résultats du calcul du rendement de capture neutronique de la solution de sulfate de manganèse.

Les paragraphes suivants présentent les différentes techniques utilisées pour l'obtention de ces termes, permettant d'établir depuis plus de cinquante ans la méthode du

bain de manganèse comme la référence pour l'étalonnage de sources neutroniques.

2.2. Mesure des paramètres expérimentaux

2.2.1. Activité en ^{56}Mn

Comme on l'a vu, l'étalonnage d'une source neutronique par la méthode du bain de manganèse passe par la mesure de l'activité en ^{56}Mn de la solution activée par les neutrons. Dès 1942 et lors des premières années de développement de la méthode, l'activité en ^{56}Mn était déterminée à l'aide d'un compteur Geiger-Müller immergé au centre de la solution activée [25, 26]. Ce détecteur permettait, à l'époque, un bon rendement de détection, une relative stabilité lors de la mesure ainsi qu'un temps mort relativement faible.

A partir des années 1960, l'utilisation d'un scintillateur couplé à un photomultiplicateur fut couramment admise et recommandée par le Bureau International des Poids et Mesures [27]. L'utilisation de ce détecteur sensible aux émissions gammas dues à la désexcitation du ^{56}Fe , rendit possible l'utilisation de volumes actifs plus importants, améliorant ainsi les statistiques de comptage et élargissant la gamme de mesure. La géométrie de l'ensemble de détection diffère selon que tout ou partie du volume actif est mesuré. En effet, le détecteur est soit plongé dans la totalité du bain (la source est alors retirée), soit installé au centre d'un récipient de type "Marinelli" dans lequel une partie du volume actif circule. Les premières mesures effectuées à l'aide d'un scintillateur NaI ont mis en évidence l'un des inconvénients de ce type de détecteur : son rendement varie en fonction de la température du scintillateur. Cependant, des solutions pour contrer ces fluctuations ont rapidement vu le jour, soit en contrôlant la tension appliquée aux dynodes du photomultiplicateur, soit en régulant la température de la solution active [28]. Certains des laboratoires utilisant ce type de détecteur ont amélioré la méthode en modifiant la position du détecteur en fonction de l'émission de la source neutronique à étalonner. L'activité en ^{56}Mn peut ainsi être déterminée avec une statistique de comptage constante sur une gamme d'émission neutronique étendue allant de 10^5 à 10^{10} s^{-1} , limitée d'une part par l'activité minimale mesurable, d'autre part les dimensions de la protection radiologique nécessaire [29, 30]. Une méthode alternative a également été développée, pour laquelle ce n'est pas la position du détecteur qui change en fonction du débit d'émission de la source, mais les dimensions du bain, le principe de la mesure restant le même [31, 32].

2.2.2. Étalonnage du détecteur

L'étalonnage d'une source neutronique devant être réalisé avec une faible incertitude, l'étalonnage du détecteur permettant la mesure de l'activité en ^{56}Mn est effectué systématiquement avant chaque campagne de mesures.

Dans la publication fondatrice de la méthode, le détecteur (un compteur Geiger-Müller) est étalonné en comparant les taux de comptage obtenus d'une part avec une quantité connue de manganèse activé par une source neutronique, d'autre part avec une quantité d'uranium d'activité spécifique et de masse connue [25]. Bien que relativement adéquate pour l'époque, la méthode d'étalonnage du détecteur gamma (que ce soit un compteur Geiger-Müller ou un scintillateur NaI(Tl)) n'a cessé d'évoluer. En 1956, le laboratoire soviétique chargé de l'étalonnage des sources neutroniques utilisait une source de radium [21]. Trois ans plus tard, K. W. Geiger et G. N. Whyte apportèrent une amélioration sensible en utilisant la méthode des coïncidences $4\pi\beta\text{-}\gamma$ pour la mesure de l'activité d'un échantillon de ^{56}Mn , préalablement irradié par une source de RaBe [26]. Afin d'obtenir une activité mesurable, les auteurs ont utilisé le procédé de Szilard-Chalmers (séparation isotopique) qui permet d'augmenter l'activité en ^{56}Mn d'un facteur 5000. Une fois l'activité en ^{56}Mn de l'échantillon connue (à $\pm 1\%$), une quantité précise était pipetée et mélangée au bain de manganèse, et permettait ainsi de connaître le rendement du détecteur gamma placé au centre de la sphère. Cette procédure était appliquée avant chaque étalonnage de source neutronique.

Dès lors, la méthode des coïncidences $4\pi\beta\text{-}\gamma$ fut recommandée par le Bureau International des Poids et Mesures pour la détermination de l'activité spécifique en ^{56}Mn [27]. En effet, le ^{56}Mn étant un radionucléide se désintégrant par voie β sur un état excité du ^{56}Fe , il est aisé de mesurer l'activité en détectant ces deux rayonnements en coïncidences. Un rapport de 1967 préconise cette méthode en utilisant un compteur proportionnel en voie β et un détecteur à scintillation pour la voie gamma. Quelques gouttes de MnSO_4 activé sont déposées sur un film mince placé dans le détecteur $4\pi\beta\text{-}\gamma$. Pour le comptage en voie gamma, il y est conseillé pour la première fois de sélectionner le pic d'absorption totale de 0,85 MeV de dés-excitation du ^{56}Fe (d'une probabilité d'émission de 98,85 %), afin de réduire les corrections à appliquer. L'étalonnage du détecteur permet alors d'obtenir des activités massiques en ^{56}Mn avec une incertitude de $\pm 0,1\%$ [19].

Depuis 1967, la méthode d'étalonnage du détecteur gamma n'a quasiment pas évolué. Dans la plupart des cas, elle peut être décomposée en 5 étapes :

1. Irradiation en réacteur (ou toute source intense de neutrons) d'une cible de manganèse métal.
2. Dissolution de la cible en milieu sulfurique et dilution en 2 aliquotes (A & B).
3. Détermination de l'activité massique de l'aliquote A par la méthode des coïncidences $4\pi\beta\text{-}\gamma$.
4. Ajout quantitatif de l'aliquote B dans le bain de manganèse et homogénéisation.
5. Étalonnage du détecteur gamma : taux comptage en fonction de l'activité massique en ^{56}Mn du bain.

2.2.3. Masse totale du bain

La masse totale du bain de sulfate de manganèse est le deuxième terme à mesurer dans l'équation qui relie l'activité massique en ^{56}Mn au débit d'émission neutronique de la source à étalonner.

Elle est déterminée par pesée de tout ou partie de la solution à l'aide d'une balance étalonnée. Généralement, cette pesée est effectuée lors de la mise en service du bain de manganèse par pesée successive des récipients (à vide et pleins) servant au transfert de la solution du récipient de stockage vers la sphère. La masse totale de liquide étant très importante (supérieure à 500 kg dans la plupart des cas), l'incertitude associée à la mesure est très faible et ne contribue que très peu à l'incertitude globale sur le débit d'émission.

2.3. Calcul du rendement du bain

Pour relier l'activité en ^{56}Mn du bain au débit d'émission neutronique recherché, il est nécessaire de connaître la probabilité de capture des neutrons par les atomes de manganèse présents dans la solution. Cette probabilité de capture est également appelée "rendement" du bain. A l'invention de la méthode, la source à étalonner était placée à l'intérieur d'un "absorbeur" lui-même situé au centre du volume rempli de sulfate de manganèse [25]. Cet absorbeur était constitué de manganèse métal en poudre. Le rapport de capture des neutrons par l'absorbeur était ainsi obtenu par comptage des émissions gamma au contact de la solution, avec et sans l'absorbeur. A partir de ce rapport, le débit d'émission neutronique de la source était alors calculé grâce à l'équation :

$$N = \frac{N_a}{(1 - R)} \quad (2.2)$$

Avec N le débit d'émission neutronique de la source, en neutrons par seconde,

N_a l'activité totale de l'absorbeur, en becquerels,

et R le rapport des activités mesurées au contact de la solution avec et sans absorbeur.

La fuite des neutrons en dehors du bain n'était alors qu'estimée, et les différentes interactions neutroniques pouvant altérer le rendement du bain étaient négligées. Quelques années plus tard, un laboratoire soviétique utilisa un matériau absorbeur en or purifié (99,99 %), qui était directement mélangé avec la solution irradiée [21]. L'étalonnage du couple bain-détecteur fut effectué par la méthode décrite au para-

graphe 2.2.2 [26]. L'équation alors utilisée pour calculer le débit d'émission neutronique était la suivante :

$$Q = [\{(1 + a) N_{Mn} \sigma_{Mn} + N_S \sigma_S + N_H \sigma_H\} / \{(1 + a) N_{Mn} \sigma_{Mn}\}] Q_{Mn} \quad (2.3)$$

Avec Q le débit d'émission neutronique de la source en neutrons par seconde,

$(1+a)$ la correction due à la non-linéarité de la section efficace du manganèse dans la zone épithermique, aussi appelée paramètre de Westcott [33],

N_{Mn} , N_S , et N_H les nombres d'atomes de manganèse, soufre et hydrogène, par centimètre cube,

σ_{Mn} , σ_S , et σ_H les sections efficaces thermiques de capture neutronique sur les atomes de manganèse, soufre et hydrogène,

et Q_{Mn} le taux de capture neutronique par les atomes de manganèse du bain.

Au delà de l'application de cette équation, les auteurs suggèrent, pour la première fois, l'estimation et la prise en compte de plusieurs facteurs correctifs, tels que l'absorption des neutrons par la source, les fuites neutroniques en dehors du bain, et les captures par réactions (n, α) et (n, p) sur l'oxygène, qui furent calculées à l'aide de codes Monte-Carlo dès 1965 [34].

Le formalisme de Westcott, permettant une correction de la section efficace en prenant en compte les non-linéarités de celle-ci en fonction de l'énergie du neutron (notamment à cause des captures par résonance) apparaît pour la première fois dans le contexte de la méthode du bain de manganèse [33]. Dans un rapport du Bureau International des Poids et Mesures de 1967 concernant une comparaison internationale d'une source de RaBe, plusieurs méthodes d'obtention des facteurs correctifs sont décrites [27]. Le facteur de fuite neutronique en dehors de la solution, notamment, peut être soit estimé par calcul en fonction de la distance à la source, soit déterminé par mesure directe avec un long compteur de type BF_3 . Les facteurs d'auto-absorption neutronique dans la source et de captures par réactions (n, α) et (n, p) sur l'oxygène et le soufre sont calculés grâce aux sections efficaces correspondantes.

A l'époque, les seules sections efficaces disponibles sont les valeurs (en barns) pour des neutrons thermiques ayant une vitesse de 2200 mètres par seconde (0,0253 eV). Les sections efficaces pour les captures des neutrons rapides par résonance sont extrapolées à partir de ces valeurs.

Dès lors, la nécessité d'obtenir des sections efficaces précises et fiables est soulignée [19, 28, 35]. Une publication datant de 1979 étudie en détail, et pour la première fois de façon critique, la validité d'une section efficace de capture neutronique utilisée dans la méthode du bain de manganèse (il s'agit de la section efficace de capture neutronique du soufre) [36]. L'auteur compare les différentes valeurs disponibles

et décrit quantitativement et qualitativement les causes d'écart entre ces valeurs. Entre autres, le manque de documentation, de validation expérimentale, et d'inter-comparaison sur ces valeurs de section efficace est mis en exergue. L'impact sur le calcul du débit d'émission neutronique de la source à étalonner est également quantifié. A la suite de cette publication, cette source d'incertitude qui apparaît donc pour la première fois dans le bilan des incertitudes liées à la méthode du bain de manganèse, ne sera malheureusement pas pris en compte dans nombre de publications sur le sujet.

Afin de réduire le bilan des incertitudes liées aux facteurs menant au calcul du rendement du bain et du débit d'émission neutronique, plusieurs efforts notables ont dès lors été entrepris. En 1982, E. J. Axton et A. G. Bardell procèdent à une ré-évaluation des débits d'émission neutronique mesurés jusqu'alors au National Physical Laboratory (Royaume-Uni) [37]. En effet, prenant en compte les causes d'incertitudes identifiées précédemment et dans le but d'obtenir un calcul du débit d'émission neutronique plus proche de la réalité, les auteurs réécrivent l'expression précédente sous la forme :

$$Q = A / [Ef (1 - L - S)] \quad (2.4)$$

où A est le taux de comptage à saturation en ^{56}Mn du bain,

E est le rendement du détecteur,

L est la fraction des neutrons qui s'échappent du bain,

S est la fraction des neutrons capturés par la source et le porte-source,

f est la fraction des neutrons capturés par le manganèse, définie telle que :

$$\frac{1}{f} = 1 + \frac{\sigma_S}{\sigma_{Mn} (1 + Grs)_{Mn}} + \frac{N_H}{N_{Mn}} \frac{\sigma_H}{\sigma_{Mn} (1 + Grs)_{Mn}} \quad (2.5)$$

où s est le "paramètre de Westcott" représentant la forme intégrale des activations par résonance normalisée à la section efficace de capture radiative,

r est le paramètre de Westcott pour le flux épithermique moyenné sur le système,

G est le facteur d'auto-atténuation par résonance.

Il est à noter que dans cette formulation, donnée comme valable en l'absence d'impureté, l'influence de l'oxygène est omise car considérée comme négligeable.

L'équation reliant l'activité en ^{56}Mn mesurée au débit d'émission neutronique recherché a ainsi évolué : le facteur de correction dû à la non-linéarité de la section

efficace du manganèse dans la zone épithermique est devenu plus précis, prenant en compte les diffusions et captures par résonances. La fuite des neutrons en dehors du bain ainsi que les captures dans l'ensemble source et porte-source sont également prises en compte.

L'influence des impuretés est également étudiée en détails dans cette publication. Grâce à une analyse chimique réalisée par deux laboratoires différents, il est fourni une liste quasi-exhaustive des éléments présents à l'échelle de traces dans la solution de sulfate de manganèse avec leurs incertitudes correspondantes. De ces données, il est ainsi déduit que les débits d'émission neutronique précédemment mesurés étaient sous-évalués de 0,5 %. Cette correction provient uniquement de l'absorption des neutrons par les impuretés, et non de leur activation, considérée, après calcul par l'auteur, comme négligeable.

L'article d'E. J. Axton et A. G. Bardell introduit une troisième avancée majeure pour la technique du bain de manganèse. Partant du constat que l'incertitude sur les sections efficaces, notamment sur le manganèse et l'hydrogène, constitue le facteur le plus sensible du bilan d'incertitudes sur le débit d'émission neutronique, les auteurs proposent et mettent en oeuvre une technique permettant d'obtenir un ratio des sections efficaces de l'hydrogène et du manganèse indépendant de la concentration.

En effet, en mesurant l'émission neutronique pour différentes concentrations du bain, et en traçant la courbe $y = ax + b$, avec, pour la i -ème concentration :

$$y_i = E_i (1 - L_i - S_i) / A_i \quad (2.6)$$

$$x_i = (N_H / N_{Mn})_i / (1 + G \cdot r \cdot s)_{Mn} \quad (2.7)$$

$$b = [1 + \sigma_S / (\sigma_{Mn} (1 + G \cdot r \cdot s)_{Mn})] / Q \quad (2.8)$$

$$a = (\sigma_H / \sigma_{Mn}) / Q \quad (2.9)$$

on détermine un rapport des sections efficaces de l'hydrogène et du manganèse dépendant uniquement de l'émission neutronique de la source.

Il est également exposé dans la publication une définition plus précise des équations ci-dessus, incluant notamment les termes liés aux impuretés mises en évidence expérimentalement.

Cette suite d'améliorations apportées à la méthode a permis de corriger les étalonnages précédents et d'affiner le bilan des incertitudes associées [38].

En 1987, un rapport présentant une inter-comparaison effectuée de 1979 à 1984 décrit le premier effort de "normalisation" des sections efficaces et des corrections à appliquer lors du calcul du rendement du bain [39]. Bien que parfois inapplicable (à cause du manque d'information ou de l'utilisation de méthodes différentes), cette normalisation permet de réduire les écarts entre les différents participants. Une unification des méthodes de calcul fut également introduite, notamment en généralisant l'utilisation du formalisme de Westcott pour la correction des captures neutroniques par résonance dans la zone épithermique.

A partir de ces avancées significatives pour la méthode du bain de manganèse, les efforts ont été concentrés sur deux axes d'amélioration : la mesure de la concentration et des impuretés présentes dans le bain, et le calcul des facteurs correctifs, notamment à l'aide de codes de calcul probabilistes s'appuyant sur la méthode dite de "Monte-Carlo".

La mesure de la concentration du bain a principalement été réalisée à l'aide de deux méthodes : par chromatographie ionique, et par gravimétrie [40, 41]. La teneur en impuretés a, dans la plupart des cas, été analysée par spectrométrie d'émission couplée à torche à plasma [40, 42, 41]. En 2010, une étude du Laboratório De Nêutrons (LNMRI, Brésil) permet de relier les paramètres physiques du bain (densité, concentration, et rapport hydrogène/manganèse) grâce à un système de deux équations :

$$Conc.H_2O = \frac{(N_H/N_{Mn}).Conc.MnSO_4.18}{302} \quad (2.10)$$

$$\rho = Conc.H_2O + Conc.MnSO_4 \quad (2.11)$$

où $Conc.MnSO_4$ et $Conc.H_2O$ sont les concentrations en eau et sulfate de manganèse dans le bain, en g/cm³,

N_H/N_{Mn} est le ratio des nombres d'atomes d'hydrogène et de manganèse dans la solution,

ρ est la masse volumique de la solution, en g/cm³.

Ces équations, obtenues grâce aux mesures de la concentration en MnSO₄ pour différentes valeurs du ratio N_H/N_{Mn} , présentent des facteurs (les nombres 18 et 302) spécifiques au système présent au LNMRI. Une comparaison entre les valeurs obtenues par ces équations et les valeurs expérimentales a montré un écart inférieur à 0,08 % [43].

En ce qui concerne le calcul des facteurs correctifs sous la forme communément admise (décrite plus haut), Lee et al. utilisèrent un premier programme appelé "EAS-

CAL” afin de déterminer les sections efficaces effectives (prenant en compte les paramètres de Westcott) en les intégrant au calcul global [40]. Les auteurs annoncent ainsi une incertitude de $\pm 3\%$ sur le facteur f (fraction des neutrons capturés par le manganèse du bain).

Au LNE-LNHB, la première utilisation d’un code de calcul pour la méthode du bain de manganèse date de 1977, où Andrée Capgras utilisa le code déterministe APOLLO (développé au SERMA, CEA) afin de vérifier le pourcentage de neutrons absorbés par le manganèse en comparant les résultats à ceux obtenus par la formule “classique” [44, 45].

Bien que développée depuis quelques années déjà, ce n’est qu’en 2001 que l’utilisation systématique des codes Monte-Carlo apparaît. En effet, cette année là, N. J. Roberts, pour le National Physical Laboratory (Royaume-Uni), présente un rapport décrivant la modélisation du bain de sulfate de manganèse par le code MCNP [46]. Ce code a été choisi car il présente plusieurs avantages, dont la possibilité de modéliser précisément des géométries complexes en intégrant un grand nombre d’interactions particule-matière, dont les interactions neutroniques. Bien que permettant de réduire les incertitudes sur le calcul, notamment en utilisant des sections efficaces sur une gamme énergétique allant des neutrons thermiques aux neutrons rapides, certaines précautions sont toujours nécessaires. En effet, l’utilisation de sections efficaces plus précises ne dispense pas du calcul des incertitudes sur ces dernières, car le choix parmi les différentes bibliothèques de données disponibles est relativement arbitraire, en fonction des critères orientant ce choix dans toute étude (traçabilité, validation expérimentale, etc.) [47].

La modélisation du bain de manganèse décrite par N. J. Roberts permet d’affiner le calcul du rendement du bain en apportant les améliorations suivantes :

- modélisation précise des différentes pièces mécaniques présentes (source, porte-source, etc.) susceptibles de diffuser les neutrons,
- description de la source intégrant le spectre de référence recommandé par la norme ISO8529-1 (pour les sources de ^{252}Cf et AmBe),
- utilisation des sections efficaces définies sur tout le spectre d’énergie des neutrons émis par la source,
- détermination directe des facteurs correctifs en utilisant les “Tallies” (détecteurs virtuels) correspondant.

Il est à noter que plusieurs approximations, dont l’influence sur le résultat final a été étudiée par l’auteur, ont été admises (sphère placée dans un vide infini, émission isotrope à la surface de la cavité porte-source, etc.).

L’auteur compare les résultats obtenus par la simulation MCNP avec les facteurs correctifs calculés par la méthode classique. Pour les points où les écarts sont significatifs, une étude des causes potentielles est présentée et permet de mettre en évidence plusieurs points critiques tels que la normalisation des sections efficaces, notamment sur le soufre et l’oxygène, l’importance de la modélisation de tous les éléments mécaniques présents dans le bain, et la mesure des fuites de neutrons en

dehors du bain. A l'occasion de la rénovation de l'installation du NPL, une modélisation complète du système (ensemble sphère-source-porte-source, murs et éléments mécaniques présents dans la pièce) a été simulée, amenant de légères modifications des facteurs correctifs dues principalement à la diffusion par les murs des neutrons s'échappant de la sphère.

Une méthode de validation expérimentale de la modélisation est également décrite dans cette publication. Deux feuilles d'or de masses connues sont placées à l'intérieur du bain et irradiées par une source neutronique modélisée précédemment. En comparant l'activité massique de l'or irradié avec le taux de capture neutronique par l'or simulé par le code, il est obtenu une différence de 5 % entre le modèle et la mesure. Le bilan détaillé des incertitudes montre que la contribution la plus importante provient des incertitudes sur les sections efficaces, notamment sur le soufre et l'oxygène pour les réactions de transmutation.

Concernant le choix des sections efficaces et leur impact sur le bilan des incertitudes, une approche alternative a été développée par le Korea Research Institute of Standards and Science (KRISS). Lors de la simulation du système par une modélisation MCNP, chaque facteur correctif est calculé comme étant la moyenne des résultats obtenus pour quatre bibliothèques différentes [31]. D'après les auteurs, cette méthode est supposée réduire de 0,5 % l'incertitude due aux sections efficaces.

Entre 1999 et 2005, cinq des huit laboratoires participant à la dernière comparaison internationale (CCRI(III)-K9.AmBe) utilisèrent une modélisation par MCNP pour le calcul des facteurs correctifs, les autres utilisant l'équation basée sur le formalisme de Westcott. Les résultats obtenus lors de cette inter-comparaison ne présentent pas de tendance générale menant à une recommandation quant à l'utilisation d'une méthode particulière. Cette constatation est principalement due aux incertitudes sur le rendement du bain, liées en grande partie au choix des sections efficaces utilisées dans le calcul.

2.4. Mesure de l'anisotropie d'émission

2.4.1. Principe

En plus du débit d'émission neutronique, il est souvent nécessaire de déterminer l'anisotropie d'émission de la source neutronique. En effet, dans certaines applications, la source neutronique est utilisée dans un ensemble collimateur dans lequel seule une portion de la fluence neutronique est utilisée par le procédé. Dans le cas où l'émission neutronique serait isotrope, elle seule permettrait de déterminer le débit de fluence neutronique. Or, cela n'est généralement pas le cas. Les dimensions de la source et son assemblage interne conduisent à dégrader l'isotropie d'émission du cas idéal : le débit de fluence neutronique n'est plus constant selon une symétrie centrale, mais axiale, dans le cas d'une source où la forme globale est cylindrique.

On donne donc, en complément de l'émission neutronique sous 4π sr, une représentation graphique donnant l'émission angulaire de la source par rapport à l'axe de symétrie [1]. Dans les cas plus complexes où il n'y a pas de symétrie axiale, on donne systématiquement l'anisotropie sous 2 axes. La figure suivante, tirée de la norme ISO8529-1, illustre ce propos par l'exemple d'une source de ^{252}Cf d'intensité élevée et de symétrie axiale.

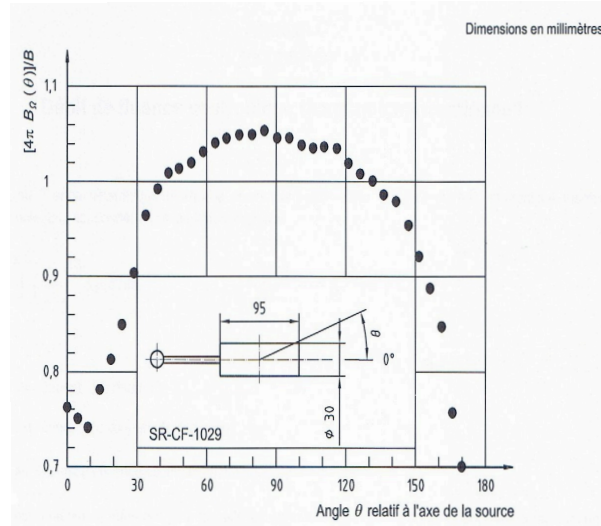


Figure 2.2.: Émission angulaire d'une source de ^{252}Cf d'intensité élevée

En pratique, pour mesurer l'anisotropie, la source est placée au centre d'un volume le moins diffusant possible. Le débit de fluence neutronique de la source est mesuré en utilisant un long compteur (ou tout autre détecteur de neutrons) et en tournant la source (ou le détecteur autour de la source) de 0° à 180° par rapport à son axe de symétrie, généralement par pas de 10° ou 15° .

La diffusion des neutrons dans l'air et les murs de la pièce peut être déterminée en réalisant des mesures avec un "cône d'ombre". En effet, en interposant un objet obstruant l'angle solide de détection des neutrons provenant directement de la source, et en soustrayant les mesures avec et sans cône d'ombre, on obtient une image directe de la fluence de la source en rejetant la plupart des neutrons diffusés.

La part de diffusion ne variant pas significativement avec l'angle, certains opérateurs choisissent de ne mesurer la diffusion que pour un angle donné. Il est également possible de corriger la part des neutrons diffusés par l'air en utilisant un coefficient d'atténuation correspondant au spectre énergétique de la source à mesurer.

Le choix de la distance entre la source et le détecteur est influencé par un certain nombre de facteurs :

- débit d'émission neutronique de la source,
- rendement du détecteur,
- rayon efficace du détecteur,

– temps mort du détecteur.

Un compromis entre l'optimisation de ces facteurs et l'incertitude statistique de comptage permet d'établir une distance source-détecteur optimale de 2 m, même si des distances allant de 30 cm à 5 m peuvent convenir selon les situations [18].

2.4.2. Calcul du facteur d'anisotropie

Le débit d'émission neutronique B d'une source peut être décrit en terme de débit de fluence neutronique $\dot{\Phi}(r, \theta, \alpha)$ à une distance r et d'angle $\Omega(\theta, \alpha)$ à l'aide de la double intégrale suivante :

$$B = \iint \dot{\Phi}(r, \theta, \alpha) r^2 \sin\theta d\theta d\alpha \quad (2.12)$$

basée sur le système de coordonnées sphériques définies dans la norme ISO 8529-1 [1] tel que représenté dans la figure ci-dessous :

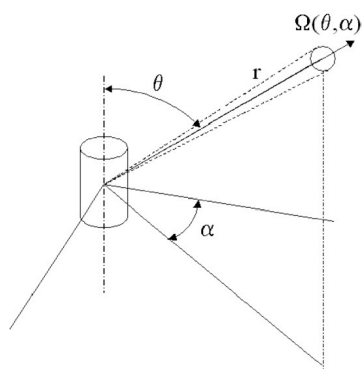


Figure 2.3.: Système de coordonnées sphériques pour le calcul de l'anisotropie d'une source neutronique

Si la source présente une symétrie de rotation autour de son axe, alors l'équation précédente peut être simplifiée ainsi :

$$B = 2\pi \int \dot{\Phi}(r, \theta) r^2 \sin\theta d\theta \quad (2.13)$$

Le facteur d'anisotropie $F_I(\theta)$ a été défini pour la première fois par Bardell et al. comme le rapport de la fluence neutronique en un point placé sur une droite passant par le centre de la source et faisant un angle θ par rapport à l'axe de la source cylindrique, sur la fluence moyennée sur tous les points placés à la même distance

du centre de la source [48]. Le débit de fluence neutronique au point (r, θ) est alors donné par l'équation :

$$\dot{\Phi}(r, \theta) = \frac{BF_I(\theta)}{4\pi r^2} \quad (2.14)$$

En remplaçant B par son expression développée on obtient :

$$F_I(\theta) = \frac{2\dot{\Phi}(r, \theta)}{\int \dot{\Phi}(r, \theta) \sin\theta d\theta} \quad (2.15)$$

Cette expression peut être réécrite en termes de taux de comptage $C(r, \theta)$ et par discrétisation l'intégrale peut être remplacée par une somme sur le nombre d'angles de mesure menant à l'expression du facteur d'anisotropie $F_I(\theta)$ pour chaque angle θ :

$$F_I(\theta) = \frac{2C(r, \theta)}{\sum C(\theta_i) [\cos(\theta_{i-1} + \theta_i)/2) - \cos((\theta_{i+1} + \theta_i)/2)]} \quad (2.16)$$

où $C(\theta_i)$ est le taux de comptage à l'angle θ_i à une distance r , corrigé des effets de la diffusion et du temps mort du détecteur.

2.4.3. Facteurs d'anisotropie typiques

Depuis les premières mesures, dans les années 1960, un grand nombre de sources de dimensions et de types différents ont vu leur facteur d'anisotropie caractérisé. En général, les sources de ^{252}Cf de faibles dimensions sont les plus isotropes, alors que les sources de $^{241}\text{AmBe}$ de dimensions relativement grandes sont particulièrement anisotropes. De manière conventionnelle, il est recommandé d'utiliser $F_I(90^\circ)$ lorsque l'on veut comparer l'anisotropie de deux sources différentes. Le tableau 3.1 suivant présente des valeurs typiques pour $F_I(90^\circ)$, tirées de la publication de Bardell et al. [48].

Type de source	Activité nominale ou masse	Code de la capsule	Diamètre (mm)	Longueur (mm)	$F_I(90^\circ)$
^{252}Cf	10 μg	X1	7,8	10,0	$1,0176 \pm 0,0022$
^{252}Cf	0,1 μg	X224	9,4	32,5	$1,0198 \pm 0,0034$
$^{241}\text{AmBe}$	3,7 GBq	X2	17,4	19,4	$1,0112 \pm 0,0037$
$^{241}\text{AmBe}$	37 GBq	X3	22,4	31,0	$1,0276 \pm 0,0028$
$^{241}\text{AmBe}$	111 GBq	X4	22,4	48,5	$1,0436 \pm 0,0025$
$^{241}\text{AmBe}$	185 GBq	X14	30,0	60,0	$1,0464 \pm 0,0023$
$^{241}\text{AmBe}$	370 GBq	X14	30,0	60,0	$1,0436 \pm 0,0013$
$^{241}\text{AmBe}$	555 GBq	X14	30,0	60,0	$1,0407 \pm 0,0026$
^{241}AmB	37 GBq	X3	22,4	31,0	$1,0345 \pm 0,0054$
^{241}AmF	37 GBq	X3	22,4	31,0	$1,0224 \pm 0,0050$
$^{241}\text{AmLi}$	185 GBq	X14	30,0	60,0	$1,0760 \pm 0,0057$

Tableau 2.1.: Valeurs typiques de facteurs d'anisotropie $F_I(90^\circ)$ pour différents types et dimensions de sources

2.5. Les installations existantes

La méthode du bain de manganèse est utilisée, dès les années 1960, dans plus d'une quinzaine de pays. Au fil de son évolution, elle a été intégrée, dans la plupart des cas, à un institut de métrologie national tel que le LNE-LNHB en France. Le nombre des laboratoires réalisant des étalonnages de sources neutroniques à l'aide de la méthode du bain de manganèse a cependant diminué : en 2011, on en dénombrait huit, parmi lesquels ceux présentés dans cette section, qui représentent les variantes les plus significatives de la méthode.

2.5.1. L'installation au LNHB

Au LNE-LNHB, la méthode du bain de manganèse a connu trois évolutions majeures, décrites ci-dessous par ordre chronologique.

2.5.1.1. Cuve cylindrique

Le premier dispositif d'étalonnage de sources neutroniques par intégration physique fut développé dès le début des années 1960, notamment par Andrée Capgras qui permit au LNHB de devenir un laboratoire de premier rang dans le domaine de la métrologie de l'émission neutronique.

Le système originel était constitué d'une cuve d'irradiation cylindrique (pour des raisons pratiques) d'un mètre de diamètre et de 1,15 mètre de hauteur contenant la

solution de sulfate de manganèse [49]. Pour des raisons de fluctuation du mouvement propre (présence de sources gamma entreposées à proximité de la cuve), l'ensemble de comptage comprenant un détecteur NaI, ne put être placé directement dans la cuve d'irradiation. Après avoir déterminé le volume optimal pour lequel la mesure d'activité massique devint reproductible, 30 litres de sulfate de manganèse activé étaient extraits de la cuve puis placés dans un récipient en polyéthylène (enfermé dans un château de plomb de 5 cm d'épaisseur) dans lequel était plongé le détecteur. Après agitation de la solution pendant deux heures, plusieurs mesures étaient effectuées toutes les quinze minutes afin de suivre la décroissance du manganèse actif et d'effectuer la correction nécessaire sur l'activité. Afin d'assurer la reproductibilité du volume de la solution irradiée, le niveau de la cuve était réajusté pour compenser l'évaporation entre chaque mesure (de l'ordre de 100 ml). La concentration en manganèse était déterminée par une série de peroxydation-réduction du manganèse puis potentiométrie. La densité était mesurée par pesée.

L'étalonnage du détecteur était réalisé grâce au manganèse métal irradié au sein d'une pile, mis en solution puis compté par un ensemble $4\pi\beta\text{-}\gamma$ construit et mis au point spécialement pour ce type d'étalonnage. Une partie de la solution obtenue était également pesée et mélangée à la solution de sulfate de manganèse inactive contenue dans la cuve et mesurée en suivant le même processus que lors d'un étalonnage de source.

Dès le développement de la méthode au LNHB, plusieurs facteurs correctifs étaient pris en compte. D'une part, le taux de fuite des neutrons hors de la cuve était mesuré via un compteur long du type de De Pangher placé contre la cuve. Le rapport des mesures avec et sans la solution (la source restant au centre de la cuve) donna, après déduction du mouvement propre, le pourcentage de neutrons non absorbés par la solution, en assimilant le volume à une sphère. D'autre part, les taux de capture des neutrons rapides par le soufre et l'oxygène, ainsi que l'absorption des neutrons dans la source, étaient issus de la littérature, notamment les valeurs obtenues par Axton et al et Whyte et al [50].

Enfin, un bilan complet des incertitudes (prenant en compte les incertitudes sur chaque section efficace) était réalisé à chaque étalonnage. Le premier étalonnage réalisé au LNE-LNHB (anciennement LMR, Laboratoire de Métrologie des Rayonnements), dans le cadre de la première comparaison internationale organisée par le BIPM en 1962 pour une source de RaBe, donna une émission neutronique à 1,5 % près.

2.5.1.2. Cuve sphérique

En 1964, plusieurs améliorations ont été apportées au système. Le remplacement de la cuve cylindrique par une cuve sphérique d'un mètre de diamètre permit une meilleure intégration de l'émission neutronique sous 4π . Une pompe aspirante et refoulante à débit réglable (5 à 6 litres par minute) fut également installée afin

d'amener la solution de sulfate de manganèse de la cuve au dispositif de comptage, en circuit fermé. Le détecteur (NaI(Tl) de 4 pouces) était placé au centre d'un récipient de type Marinelli et l'ensemble de comptage était logé dans une cellule blindée de dix centimètres d'épaisseur et dont la température était maintenue constante à un degré près par passage de la solution dans un serpentin plongé dans un bain thermostatique (Figure 2.4 et Figure 2.5). L'étalonnage du détecteur était réalisé comme précédemment. Une seconde sphère de cinquante centimètres de diamètre pouvait être utilisée pour les sources de faible débit d'émission neutronique.

Le bilan des incertitudes liées à ce nouveau dispositif fut ainsi amélioré en passant de 1,5 % à 1,1 % pour l'incertitude globale (en moyenne sur les différents étalonnages réalisés à l'époque) [50].

A partir de 1977, on note l'utilisation du code déterministe APOLLO afin de vérifier les facteurs correctifs calculés par la formule "classique" [44].

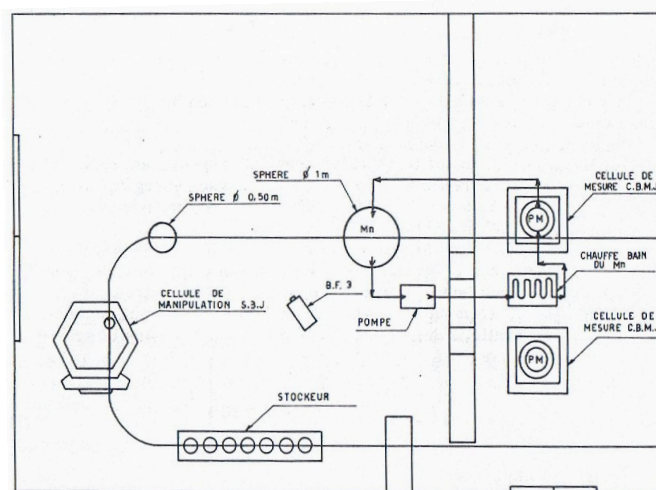


Figure 2.4.: Schéma de principe de l'installation au LMR (LNE-LNHB) en 1964

2.5.1.3. Cuve sphérique et casemate de radioprotection

A partir de 1964, l'installation n'a guère évolué jusqu'en 2009, date à laquelle le laboratoire fut rénové. A cette occasion, le LNE-LNHB décida de procéder à une amélioration de l'installation du bain de manganèse en la dotant d'une casemate de radioprotection (en orange sur la Figure 2.6). Cette dernière a été dimensionnée de façon à pouvoir accueillir des sources de débit d'émission neutronique maximal de 10^9 s^{-1} . La sphère est placée à l'intérieur de la casemate où des bras télémanipulateurs ainsi qu'un palan permettent la préparation et l'installation de la source neutronique au centre de la sphère (voir Figure 2.7). Le compteur long de mesure des fuites de neutrons en dehors du bain est placé à proximité immédiate de la cuve et peut



Figure 2.5.: Hall neutron du LNE-LNHB avant rénovation

être déplacé à distance pour être positionné dans l'axe d'un support (à ± 5 mm) permettant la mesure de l'anisotropie par la méthode du cône d'ombre (Figure 2.7 et Figure 2.9).

L'ensemble de mesure de l'activité du bain, identique à celui utilisé précédemment, est placé à l'extérieur de la casemate de façon à réduire le mouvement propre.



Figure 2.6.: Vue extérieure de la casemate actuelle de mesure neutronique du LNE-LNHB

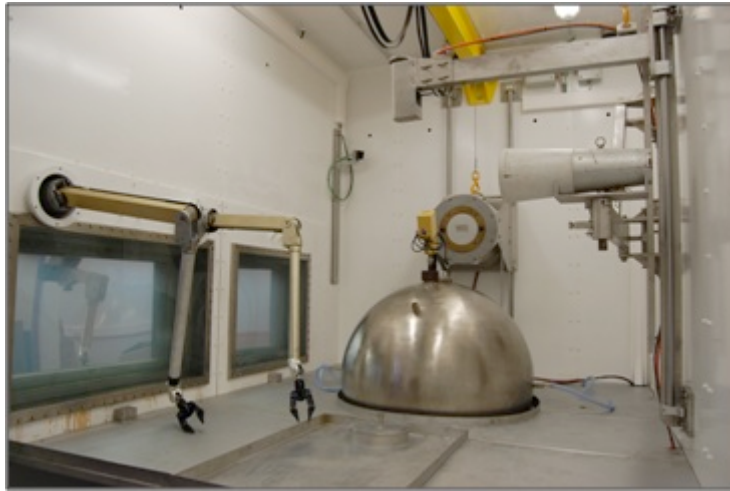


Figure 2.7.: Vue intérieure de la casemate du LNE-LNHB

2.5.2. Les installations à l'étranger

2.5.2.1. Royaume-Uni (NPL)

L'installation "bain de manganèse" du National Physical Laboratory est utilisée pour étalonner les débits d'émission neutronique des sources appartenant au laboratoire ou à des clients extérieurs. Le système comprend deux sphères (de diamètre 98 cm et 50 cm) remplies de sulfate de manganèse, ainsi qu'un système de circulation du liquide et de deux réservoirs contenant chacun deux détecteurs à scintillation (NaI(Tl)) [47]. La plupart des mesures sont effectuées avec la sphère la plus large, alors que les sources de faible débit d'émission neutronique sont étalonnées avec la petite sphère (voir figure ci-dessous).

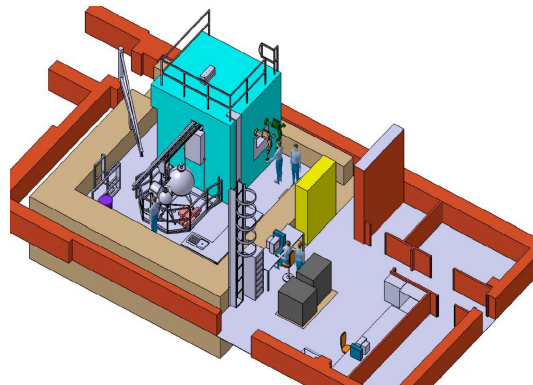


Figure 2.8.: Vue 3D de l'installation "bain de manganèse" au N.P.L.

Le NPL possède une installation de ce type depuis les années 1960 et a récemment (2007) procédé à sa rénovation. Ces travaux ont permis plusieurs améliorations signi-

ficatives telles qu'une pièce blindée permettant la manipulation de sources avec des débits d'émission allant jusqu'à 10^9 neutrons par seconde (Figure 2.8). Les sources sont transférées dans la sphère grâce à un système commandé à distance et l'agencement de la pièce blindée permet la réception et la manutention des châteaux de radioprotection (généralement en polyéthylène) en toute sécurité et en évitant la pré-irradiation du bain. La nouvelle installation a été caractérisée et comparée à l'ancienne à l'aide de trois sources connues dont l'étalon national NASTRABE [41]. Une nouvelle analyse des impuretés et de la concentration du bain a également été réalisée en août 2007. Comme pour la majorité des laboratoires appliquant cette technique, le rendement des détecteurs NaI est déterminé en utilisant une solution active de MnSO_4 étalonnée soit par une chambre d'ionisation soit par comptage $4\pi\beta\text{-}\gamma$.

Afin d'améliorer la précision globale, la baisse de radioactivité due au passage du liquide dans les tuyaux (zone non-irradiante) est également prise en compte. Pour ce faire, le temps de circulation dans la boucle a été mesuré en surveillant l'augmentation du taux de comptage du détecteur gamma pour une source de fort débit d'émission neutronique.

Le passage au calcul des facteurs correctifs par un code Monte-Carlo (MCNP) a induit une augmentation des débits d'émissions neutroniques de 0,75 % à 1,23 % selon les sources [46]. L'étude de cette augmentation a montré qu'une des causes provient de changements dans les bibliothèques de sections efficaces, notamment pour la réaction (n,α) sur l'oxygène (voir paragraphe 3.2.2).

2.5.2.2. États-Unis (NIST)

Le National Institute of Standards and Technology (N.I.S.T.) est l'un des premiers laboratoires nationaux de métrologie à avoir utilisé la méthode du bain de manganèse pour l'étalonnage des sources neutroniques, et reste le seul aux U.S.A. Cette installation permet de couvrir des débits d'émission neutronique allant de 5.10^5 à 1.10^{10} neutrons par seconde [30]. La méthode du bain de manganèse est ici appliquée par comparaison de l'activité en ^{56}Mn après irradiation par la source à étalonner avec celle induite par une source de référence (l'étalon NBS-1), mesurées dans la même configuration expérimentale. L'installation est constituée d'une sphère en fibre de verre de 1,3 m de diamètre contenant la solution de sulfate de manganèse ainsi que d'un système de contrôle à distance pour le positionnement de l'ensemble porte-source au centre de la sphère (Figure 2.9 et Figure 2.10).

L'ensemble de comptage de l'activité en ^{56}Mn est alimenté en continu par un système permettant la circulation de la solution provenant de la sphère. Il est constitué de deux détecteurs NaI : l'un est placé à l'intérieur d'un récipient de type Marinelli et l'autre à un mètre de ce dernier, de façon à s'adapter aux taux de comptage possibles pour la gamme de débits d'émission neutronique considérée. De plus, le mouvement propre des deux détecteurs est réduit grâce à une protection au plomb les entourant.



Figure 2.9.: Vue intérieure de l'installation au N.I.S.T.



Figure 2.10.: Vue de la salle de contrôle de l'installation au N.I.S.T.

Le porte-source employé au NIST diffère de celui utilisé par le LNE-LNHB. En effet, de part ses dimensions plus importantes et sa forme sphérique, il forme une cavité autour de la source. Cette configuration permet de supprimer la zone de thermalisation des neutrons se situant à proximité de la source, et de réduire ainsi la proportion des neutrons re-capturés par la source et une émission supplémentaire dans le cas d'une source fissile.

L'incertitude relative élargie est d'environ 3,5 % ($k = 2$) lors d'un étalonnage par comparaison avec la source de référence NBS-I. Le calcul des facteurs correctifs est considéré comme négligeable : par expérience, les étalonnages effectués sans prendre en compte les facteurs correctifs sont en accord de 3 % avec ceux prenant en compte ces corrections.

2.5.2.3. Brésil (LNMRI)

Le Laboratorio de Nêutrons (LNMRI, Brésil) a acquis la technique du bain de manganèse en 1996, grâce au transfert des équipements du Bureau International des Poids et Mesures. La méthode appliquée au LNMRI consiste à compter les émissions gamma du bain grâce à un détecteur NaI(Tl) immergé après irradiation au centre d'une sphère d'un mètre de diamètre, à la place de la source à étalonner. Les facteurs

correctifs sont calculés à l'aide du code MCNP [51]. L'incertitude élargie indiquée est de 1,4 % [52].



Figure 2.11.: Vue de l'installation au L.N.M.R.I.

L'ensemble est placé dans une pièce où la température est régulée. A chaque mesure, le mouvement propre du détecteur ainsi que la décroissance de l'activité du bain sont pris en compte.

En 2009, un système alternatif a été proposé par Leite et. al., permettant d'accroître l'activité massique du bain d'un facteur 100, en enveloppant la sphère d'un matériau modérateur, dans le cas de sphère de très faible diamètre (inférieur à 8 cm) [53].

2.5.2.4. Chine (NIM)

En 2009, le National Institute of Metrology (NIM-CIAE, Chine) procéda à l'installation d'un nouveau système "bain de manganèse" [54]. Ce système est composé d'une sphère de 1,1 m de diamètre contenant 0,6 m³ de sulfate de manganèse. L'ensemble de mesure de l'activité induite en ⁵⁶Mn est situé sur la boucle de circulation du liquide. Il est constitué de deux détecteurs gamma (NaI) placés au centre d'un récipient de type "Marinelli" connectés à un système d'acquisition numérique. Un système de transfert automatique de la source dans le bain a également été installé. Le rendement du bain est déterminé par activation de manganèse métal en réacteur et mesuré par la technique des coïncidences $4\pi\beta\text{-}\gamma$. Les facteurs correctifs de fuite neutronique, captures par résonance sur le soufre et l'oxygène, ainsi que les captures par la source sont pris en compte. La correction due aux captures radiatives sur l'oxygène et le soufre est calculée selon le formalisme de Westcott [18].

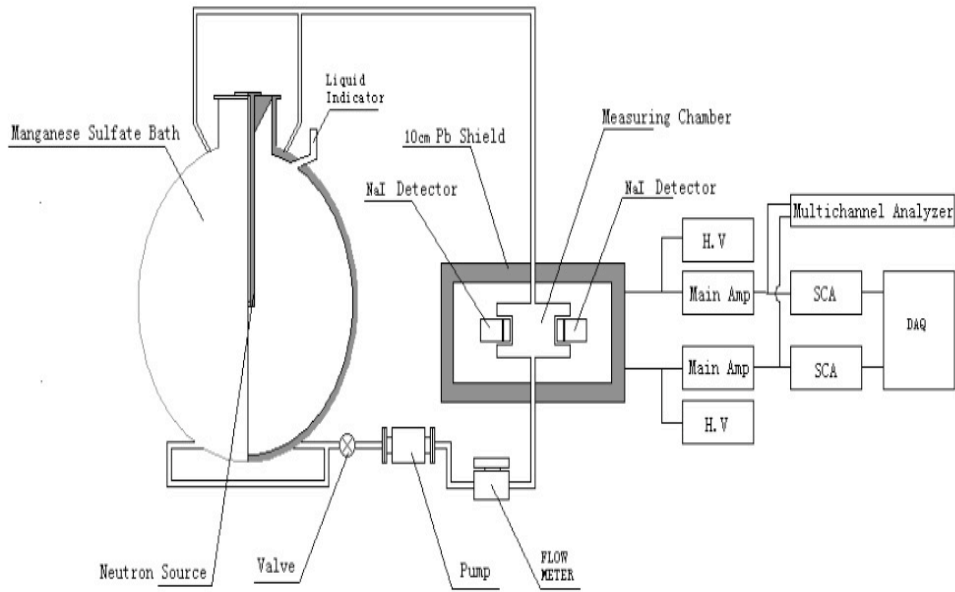


Figure 2.12.: Schéma de l'installation au N.I.M.-C.I.A.E. (Chine)



Figure 2.13.: Photo de l'installation au C.I.A.E. (Chine)

2.5.2.5. Russie (VNIIM)

Le bain de manganèse du VNIIM (Russie) est constitué d'une cuve cylindrique en acier inoxydable de 85 cm de diamètre et de 95 cm de haut remplie de sulfate de manganèse. Après irradiation par la source à étalonner, cette dernière est retirée et un détecteur gamma (NaI) est placé au centre du bain. Les fuites neutroniques en dehors de la cuve sont déterminées expérimentalement à l'aide d'un compteur long [20]. Les facteurs correctifs sont calculés par ailleurs. Ce système est utilisé pour des débits d'émission neutronique allant de 10^5 s^{-1} à 10^8 s^{-1} avec une incertitude relative de 0,55 % (à $k=1$). Cependant la plupart des étalonnages de sources neutroniques sont réalisés grâce à la méthode du modérateur graphite décrite au chapitre II.

2.6. Voies d'amélioration

Au vu de l'état actuel de la technique et de l'ensemble des publications étudiées, plusieurs voies d'amélioration sont possibles, et nécessaires afin de garder un processus d'étalonnage de qualité métrologique.

Tout d'abord, une étude qualitative approfondie des sections efficaces nécessaires au calcul des facteurs correctifs semble s'imposer. En effet, le choix des bibliothèques de sections efficaces existantes, pour un élément et une interaction neutronique donnés, implique *a priori* une incertitude plus grande sur le facteur correctif considéré. En étudiant la fiabilité des bibliothèques (validations expérimentales, comparaisons, calculs, simulations) il est ainsi possible de réduire le choix et l'incertitude globale.

Afin d'améliorer la précision des calculs, notamment par les codes Monte-Carlo, il est également nécessaire de connaître la quantité d'impuretés présentes dans le bain et la concentration de chaque élément. Un effort particulier doit donc être fait sur ces mesures, notamment en utilisant plusieurs méthodes indépendantes et en les systématisant. La simulation du système peut, par ailleurs, être améliorée en modélisant de manière plus complète et précise les différents éléments présents et qui peuvent influencer les interactions neutroniques. Dans notre cas, cela peut passer par une modélisation des objets présents dans la casemate ainsi que de l'ensemble source et porte-source. Des informations détaillées sur la géométrie interne et la composition de chaque source permettrait ainsi de réduire les incertitudes. Chaque modélisation doit également être validée expérimentalement et de façon indépendante, sans faire appel à un paramètre issu de la méthode du bain de manganèse ou de modélisations informatiques.

Enfin, l'amélioration principale à apporter à la méthode du bain de manganèse est donnée par le titre de cette thèse : passer à une mesure directe (c'est à dire sans étalonnage préalable) du détecteur mesurant l'activité induite en ^{56}Mn . En effet, outre les problèmes de radioprotection qu'implique un étalonnage par activation en réacteur, une mesure directe permet d'accroître la précision du système tout en

simplifiant la mesure, en réduisant les étapes nécessaires. Une mesure directe intégrée à la boucle de circulation du sulfate de manganèse actif permet également d'envisager d'autres configurations géométriques du détecteur et de pérenniser l'étalonnage de sources neutroniques en s'affranchissant de l'étalonnage préalable.

3. Calcul du rendement du bain par la méthode Monte-Carlo

L'activité en ^{56}Mn du bain de sulfate de manganèse est liée au débit d'émission neutronique de la source à étalonner par un certain nombre de facteurs correctifs représentant le "rendement du bain". Ce rendement ne peut être déterminé que par le calcul. L'approche historique consistait à calculer "manuellement" les différents taux de captures neutroniques en négligeant plusieurs paramètres physiques et en réalisant de sensibles simplifications notamment sur les sections efficaces d'interaction neutronique. Ces facteurs furent par la suite (dès 1977) vérifiés par le code de calcul déterministe APOLLO. Ainsi, dans le cadre de cette thèse, nous avons choisi de déterminer l'ensemble des facteurs correctifs par la méthode Monte-Carlo permettant de tendre vers un modèle plus réaliste du système, et d'identifier les causes d'incertitudes. L'ensemble des travaux présentés dans ce chapitre ont fait l'objet d'une publication [55].

3.1. Codes de calcul

Afin de choisir le code de calcul le plus pertinent, l'installation a été modélisée à l'aide de trois codes de calcul Monte-Carlo : MCNPX, FLUKA, et GEANT4. L'ensemble des fichiers d'entrée de la modélisation réalisée sous MCNPX se trouve en annexe B.

3.1.1. MCNPX

MCNPX est une extension du code Monte-Carlo MCNP pour la simulation des interactions particule-matière [56]. C'est le principal code utilisé pour modéliser le bain de manganèse au LNE-LNHB. La modélisation suit le schéma classique d'un modèle MCNPX, tous les paramètres nécessaires sont inclus dans un unique fichier d'entrée :

- la géométrie (les surfaces, dimensions et assemblages),
- la définition de la source (isotropie et spectre ISO8529-1),
- les indicateurs ("Tallies" de capture neutronique et de fluence),
- les processus physiques (interactions neutroniques avec la matière),
- les matériaux présents (sections efficaces élémentaires).

3.1.2. GEANT4

Dans le but d'évaluer les codes Monte-Carlo à utiliser pour modéliser le système, une modélisation GEANT4 a été développée. Ce code a pour avantages l'accessibilité de la physique implémentée, et la modification facilitée de tous les algorithmes du code [57]. GEANT4 est utilisé pour le transport de tout type de particules, et supporté par une large communauté d'utilisateurs dans le monde entier. Codé en langage C++, un programme GEANT4 consiste en plusieurs fichiers gérant chaque aspect de la simulation : géométrie, physique, détection d'évènement, etc.

3.1.3. FLUKA

Le troisième code Monte-Carlo utilisé pour la modélisation du système est la suite logicielle FLUKA [58]. Ce code a été largement utilisé pour la caractérisation de protections neutroniques, et est similaire à MCNPX par le fait qu'un unique fichier d'entrée est nécessaire, avec un fichier optionnel pour des spécifications de sources particulières.

3.2. Modélisations

3.2.1. Choix de l'émission neutronique

Comme cela a été évoqué aux chapitres 1 et 2, la méthode du bain de manganèse est principalement utilisée pour étalonner des sources de type (α, n) , telle que $^{241}\text{AmBe}$, ou des sources de fission spontanée telle que ^{252}Cf . La modélisation des sources neutroniques est basée sur la norme ISO8529-1 qui présente les spectres de référence pour des sources de $^{241}\text{AmBe}$ et ^{252}Cf pour des sources relativement petites et "légèrement gainées" [1]. Ces caractéristiques peuvent mener à une certaine confusion lors de la modélisation de la source, à cause de l'omission des réactions de diffusion et de capture dans la source. En effet, pour une modélisation réaliste d'une source neutronique, la composition et la géométrie interne de la source doivent être prises en compte. Ainsi, afin de déterminer la configuration la plus pertinente, deux types d'émissions neutroniques, "surfactive" et "volumique", ont été considérés sous MCNPX, dans le cas d'une source de $^{241}\text{AmBe}$ (de type "X3").

Dans le cas "surfactive", le spectre ISO est considéré comme étant le spectre émis en chaque point de la surface de la source selon une loi "cosinus".

Dans le cas "volumique", le spectre ISO est le spectre primaire émis en chaque point du volume de la source en négligeant la diffusion dans le gainage en acier inoxydable. La position à la surface ou dans le volume, ainsi que la direction du neutron émis sont aléatoires.

Dans les deux cas, une géométrie simple a été modélisée : la source ($^{241}\text{AmBe}$ et gainage en acier inoxydable) est placée dans un volume vide et de dimensions infinies. Afin de comparer les deux configurations, treize “tallies” ponctuels de type “F5” sont placés sur une sphère virtuelle de 5 cm de diamètre centrée sur la source. Les fluences neutroniques sont calculées en différentes directions, allant de -90° à $+90^\circ$ par pas de 15° (pour des raisons pratiques) par rapport au plan médian de la source, et normalisées au cas isotrope, afin de comparer les facteurs d’anisotropie.

Les facteurs d’anisotropie résultant de ces modélisations sont présentés dans la Figure 3.1 suivante.

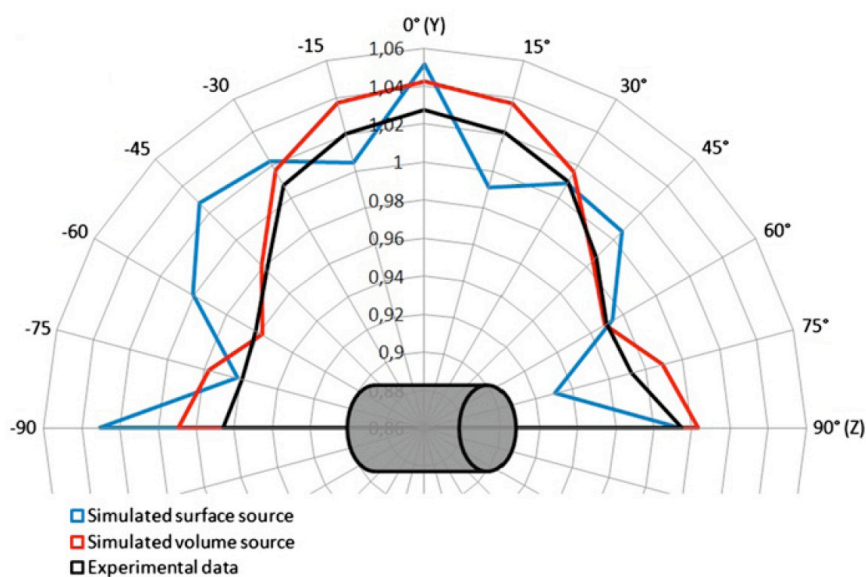


Figure 3.1.: Facteurs d’anisotropie simulés et expérimentaux pour une source $^{241}\text{AmBe}$ de type X3

Le cas du facteur d’anisotropie d’une source d’émission surfacique présente plusieurs anomalies. Premièrement, des pics de fluence neutronique apparaissent sur les axes principaux de la source (axes Y et Z sur la figure). Cela peut s’expliquer par la façon dont les neutrons sont émis par l’algorithme d’émission de MCNPX : la direction pseudo-aléatoire de la particule émise suit en réalité une loi cosinus par rapport à la normale à la surface.

La seconde anomalie pour l’émission surfacique est l’accroissement de la fluence neutronique pour les directions -45° et $+45^\circ$. Cela est dû à la forme cylindrique de la source. En effet, pour ces directions, les émissions neutroniques en bordure des disques et de la surface cylindrique sont additionnées.

Le second type d’émission modélisé, basé sur un matériau radioactif homogène et sur une émission isotrope en chaque point du volume source, ne présente pas les anomalies précédemment observées. La diminution de la fluence neutronique aux di-

rections -60° et $+60^\circ$ est due à la plus grande distance parcourue par le neutron émis à l'intérieur de la source, induisant plus de diffusion et d'absorption neutroniques en ces directions avant d'atteindre la surface.

Il est à noter que l'asymétrie de la fluence neutronique par rapport à l'axe Y est due, dans les deux cas, au fait que le centre géométrique de la source ne coïncide pas avec celui du matériau radioactif considéré. Dans le cas de la source volumique, une normalisation est nécessaire afin de ramener la fluence relativement à un neutron émis et de la corriger des réactions de fission ayant lieu dans le matériau.

La troisième courbe de la figure 4.1 présente les valeurs expérimentales obtenues pour une source de $^{241}\text{AmBe}$ de type X3, tirées d'un rapport du NPL [48]. Même si la différence entre les géométries simulées et mesurées ne permet pas de comparer numériquement les fluences, la forme générale obtenue pour une source volumique est en bon accord avec les données expérimentales. Considérant également l'absence d'anomalies pour le cas volumique, une émission à l'intérieur du matériau a donc été choisie, afin d'obtenir un comportement plus réaliste de la source simulée. Ces résultats sont en accords avec ceux présentés dans le rapport du NPL pour lequel les données expérimentales avaient également été comparées à une modélisation MCNP reprenant les mêmes caractéristiques (émission volumique selon la norme ISO8529-1) [48]. Néanmoins, une révision de la norme ISO 8529-1 semble nécessaire afin de clarifier et normaliser les approches dans le cas de sources neutroniques non ponctuelles.

3.2.2. Choix des sections efficaces

Comme dans chaque code Monte-Carlo impliquant des interactions entre des hadrons et la matière, il est nécessaire d'utiliser des sections efficaces correspondant à la probabilité d'interaction entre un neutron et un atome cible. De nos jours, les bibliothèques de sections efficaces sont disponibles et téléchargeables directement depuis internet. Elles peuvent ainsi être aisément comparées. Ainsi, il existe neuf sections efficaces d'interaction neutronique définies comme étalons "absolus" par l'AIEA en 1987 et réévaluées de 2002 à 2006 [59]. Ces étalons permettent de déterminer les sections efficaces des autres nucléides par mesures relatives et/ou calculs, et de rassembler ainsi les sections efficaces en bibliothèques. Cependant, dans un grand nombre de cas, la validité et la pertinence de ces bibliothèques ne peuvent pas être complètement assurées, par manque d'informations. De plus, lors de modélisation de systèmes tels que le bain de manganèse, la complexité s'accroît rapidement compte tenu des différents éléments, composés, états de la matière et interactions neutron-matière mis en jeu. En effet, la plupart des sections efficaces nécessaires pour cette application sont relatives, y compris celle de l'interaction (n,γ) sur le manganèse, qui est la plus critique.

Une étude précédente, concernant la modélisation du bain, montra que dans le cas de l'oxygène le choix d'une certaine bibliothèque de sections efficaces plutôt qu'une

autre pouvait induire un biais relatif allant jusqu'à 0,5 % sur le rendement du bain [60].

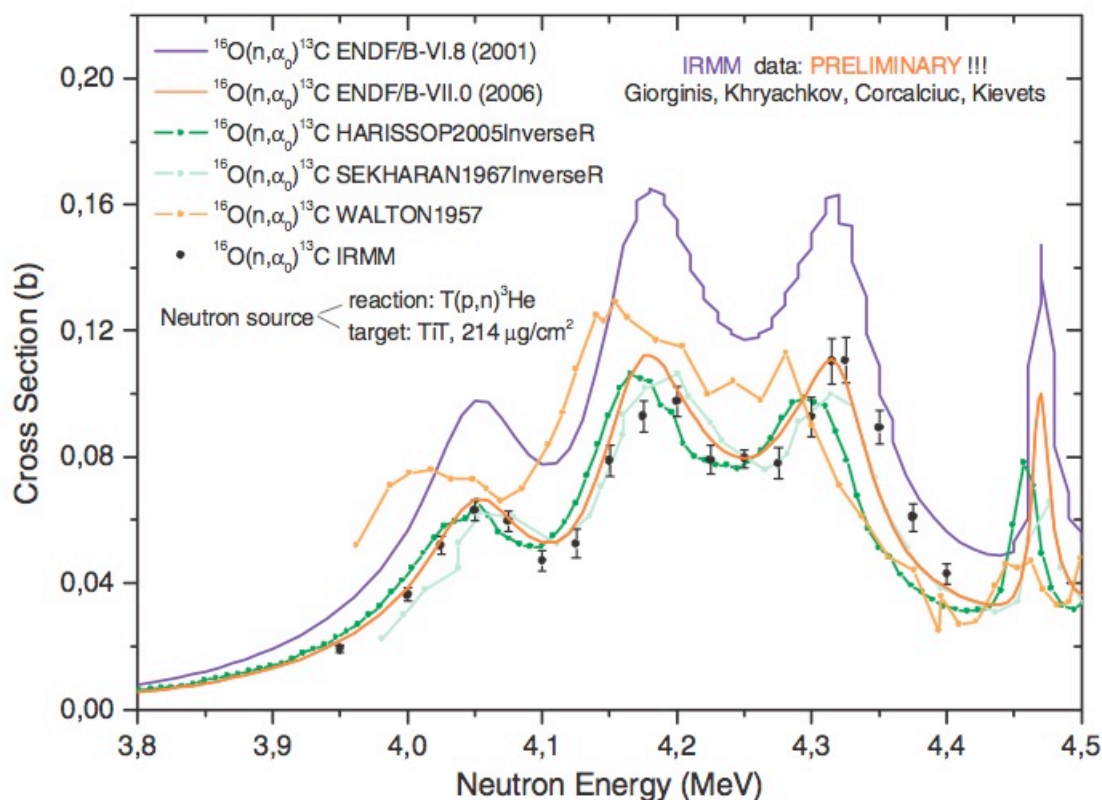


Figure 3.2.: Comparaison des sections efficaces de capture neutronique sur l'oxygène [2]

En effet, comme le montre la Figure 3.2, de grandes disparités peuvent être présentes sur l'évolution de la section efficace d'interaction neutronique d'un élément donné pour des évaluations distinctes. Le choix de la bibliothèque de sections efficaces a donc un impact non négligeable sur le bilan global des incertitudes. Il est donc important de choisir la bibliothèque la plus adéquate. Lors de la sélection de la bibliothèque de sections efficaces la plus fiable pour la modélisation du bain de manganèse à partir de celles disponibles, certaines ont été volontairement ignorées par manque d'information sur leur validité. A titre d'exemple, l'évaluation "Japanese Evaluated Nuclear Data Library" (JENDL) n'a pas été choisie car la principale section efficace d'interaction neutronique sur le manganèse était sujette à caution. En effet, dans un papier publié en 1996 par Ikeda, l'auteur montra que la section efficace d'interaction (n,γ) sur le ^{55}Mn n'était pas en accord avec les tests de calculs intégraux effectués. Ikeda propose ainsi que le traitement du groupe de sections efficaces JENDL soit ré-évalué avant toute autre utilisation.

En conséquence, la même bibliothèque de sections efficaces doit être utilisée pour

chaque code Monte-Carlo. Pour le cas présent, la bibliothèque ENDF/B-VII.0 (Evaluated Nuclear Data Files version VII.0) publiée par le CSEWG américain (Cross Section Evaluation Working Group) en décembre 2006 a été choisie. Cette bibliothèque contient les données expérimentales ou calculées correspondant aux interactions entre neutrons, protons, photons et plus de 400 isotopes [61]. Chaque sous-bibliothèque, et en particulier celle concernant les interactions neutroniques, suit une méthode d'évaluation spécifique et détaillée.

Dans un premier temps, une analyse critique des données expérimentales est réalisée. Dans le cas présent, des informations exhaustives fournies pour chaque jeu de données inclus dans la bibliothèque ENDF/B-VII.0 permettent une étude des conditions expérimentales et des validations effectuées.

La deuxième étape de la méthode consiste à traiter chaque région énergétique, y compris la région thermique et les zones de capture par résonance, par des méthodes développées pour analyser les interactions neutroniques.

En dernier lieu, les régions de neutrons rapides sont évaluées en utilisant des méthodes combinant des calculs de modélisation des réactions nucléaires et des données expérimentales. La bibliothèque ENDF/B-VII.0 a été régulièrement mise à jour et testée. Cependant, des doutes subsistent, en particulier sur les sections efficaces de réaction (n, α) sur l'oxygène dont les valeurs semblent diverger par rapport aux données expérimentales pour des énergies supérieures à 6,4 MeV [2]. Cette bibliothèque contient également des sous-bibliothèques correspondant aux sections efficaces de diffusion thermique. Deux de ces sous-bibliothèques ont été utilisées.

Pour l'hydrogène dans l'eau, ces sections efficaces prennent en compte le mouvement de la molécule H_2O en fonction de la température.

Dans le metacrylate polyméthyl (PMMA, présent dans le porte-source), l'hydrogène est considéré comme similaire à l'hydrogène de la molécule de CH_2 . Ces deux sous-bibliothèques de sections efficaces ont été générées numériquement par le module LEAPR du logiciel NJOY de traitement de données nucléaires.

3.2.3. Différences entre les codes

3.2.3.1. MCNPX

La Figure 3.3 ci-dessous montre le système modélisé sous MCNPX, vue de dessus et en coupe.

La sphère remplie de sulfate de manganèse (volume 12) est placée dans une casemate dont les murs sont conçus pour absorber les neutrons. Ils se compose de 40 cm de béton boré de type PNT7, et de 1 cm d'acier inoxydable de chaque côté du béton. Le volume 2 représente l'air à l'intérieur de la casemate. Les hublots sont modélisés par les volumes 14 et 15.

La Figure 3.4 ci-dessous présente une vue en coupe de la sphère.

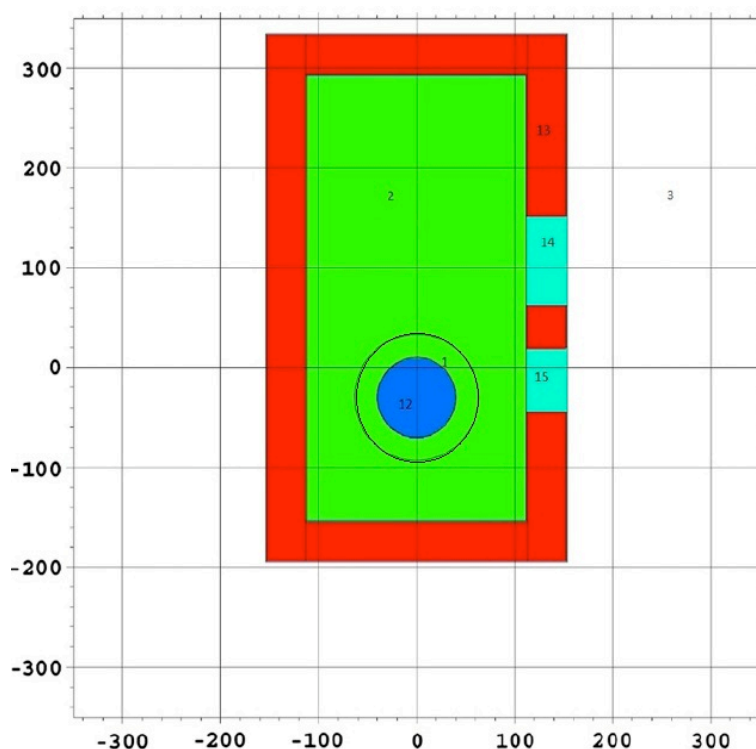


Figure 3.3.: Vue de dessus en coupe de la géométrie modélisée sous MCNPX

Le disque bleu représente le sulfate de manganèse. Le cercle noir extérieur symbolise une sphère virtuelle de 70 cm de rayon permettant de contrôler la fluence de fuite neutronique en dehors de la sphère en acier inoxydable, d'un diamètre de 1 m et d'une épaisseur de 2,5 mm.

L'assemblage source et porte-source est placé au centre de la sphère et maintenu en position par deux tiges en acier inoxydable (volumes 10 et 11). Cet assemblage est composé du matériau radioactif ($\text{AmO}_2 + \text{Be}$, volume 4), l'enveloppe en acier inoxydable (volume 5), l'air entre la source et le porte-source (volume 6), et le porte-source (volumes 7 à 9).

Les caractéristiques de la source sont implémentées via une fonction "SDEF", comprenant les informations nécessaires (spectre en énergie avec les probabilités d'émission données par la norme ISO8529-1). Les indicateurs ("Tallies") F4 et F2 permettent de quantifier les captures neutroniques pour chaque élément de chaque matériau défini par les fonctions adéquates, notamment la composition isotopique du soufre.

3.2.3.2. GEANT4

La géométrie modélisée sous GEANT4 est une réplique de celle modélisée sous MCNPX (voir Figure 3.6 et Figure 3.7 ci-dessous).

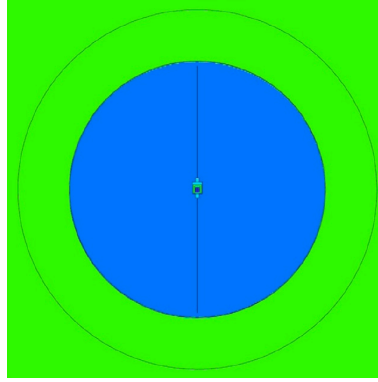


Figure 3.4.: Vue en coupe de la sphère modélisée sous MCNPX

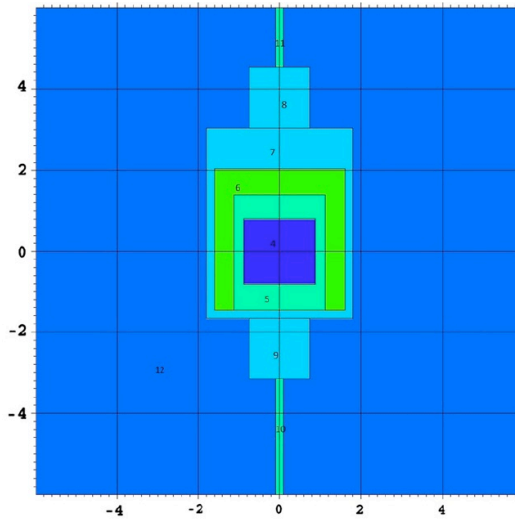


Figure 3.5.: Vue en coupe de l'assemblage porte-source modélisé sous MCNPX

La description des processus physiques possibles lors de la simulation du modèle GEANT4 inclut la gestion des sections efficaces extraites de ENDF/B-VII.0. Plusieurs anomalies dans la conversion de ces sections efficaces (en un format exploitable par GEANT4) ont été trouvées et corrigées. Par exemple, certaines sections efficaces ont été interverties ou ne comprennent pas la totalité des valeurs fournies par ENDF/B-VII.0. L'ensemble de ces anomalies a été communiqué à l'équipe de développement de GEANT4.

La définition des matériaux et des compositions, ainsi que les caractéristiques de la source ont également été copiées du modèle MCNPX. Ces dernières sont intégrées à un module complémentaire, le "General Particle Source Macro System" [62]. Le comptage logiciel des captures neutroniques sur les éléments d'intérêt a été programmé séparément et intégré à l'algorithme de détection des événements détaillé dans la Figure 3.8.

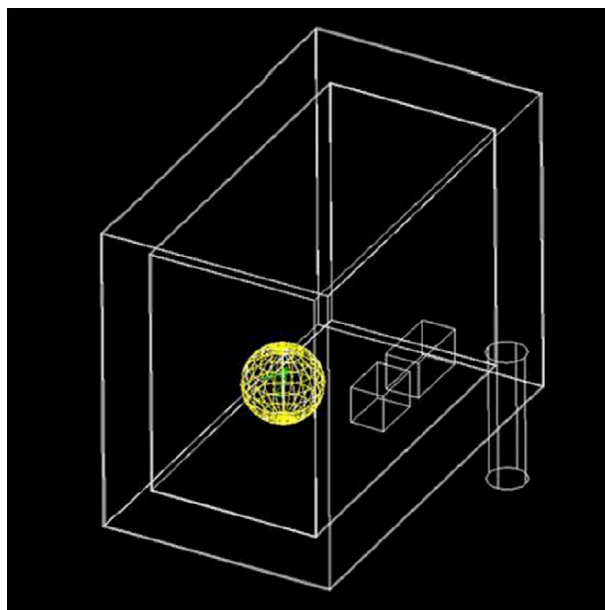


Figure 3.6.: Vue extérieure de la géométrie modélisée sous GEANT4

L'algorithme inclut la détection des neutrons s'échappant de la sphère, et permet une analyse de la distribution en énergie des neutrons issus de chacune des interactions ayant lieu dans le système. Le comptage des captures neutroniques est vérifié en comptant les émissions gamma résultant de la désintégration du ^{56}Mn et de la capture radiative sur chaque élément du bain. Les résultats sont normalisés à un neutron émis par la source.

3.2.3.3. FLUKA

La modélisation développée sous FLUKA est identique à celles développées sous MCNPX et GEANT4. Les indicateurs permettant le comptage des éléments activés sont de type "RESNUCLEI", qui permet d'obtenir un fichier de sortie dédié à la quantification des éléments activés. Ainsi, le pourcentage de capture neutronique pour chaque élément est aisément obtenu. Un fichier supplémentaire, codé en FORTRAN, a été nécessaire afin d'ajouter à la source ses caractéristiques géométriques, d'isotropie, et d'émission suivant la norme ISO8529-1. Comme pour les précédentes simulations, la bibliothèque de sections efficaces ENDFB VII.0 a été utilisée pour toutes les interactions neutron-matière.

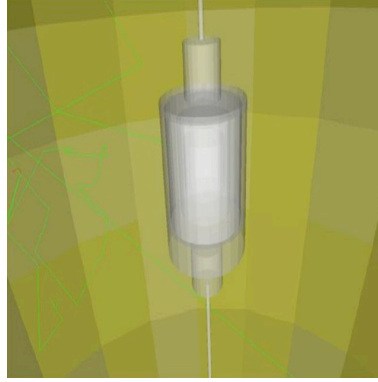


Figure 3.7.: Vue de l'assemblage porte-source modélisé sous GEANT4

3.3. Simulations et comparaisons des résultats

3.3.1. Modèles complets

Trois modélisations du bain de manganèse du LNE-LNHB ont été simulées via MCNPX, GEANT4, et FLUKA. Les temps de simulations furent de 2, 4 et 5 jours respectivement pour 10^8 , 10^7 , 10^6 neutrons primaires émis. Les techniques de réduction de variance n'ont pas été appliquées. Le Tableau 3.1 suivant présente les résultats donnés en pourcentage de capture neutronique par le manganèse, l'hydrogène, le soufre et l'oxygène. Les incertitudes associées correspondent uniquement aux fluctuations statistiques des tirages Monte-Carlo.

Code	Mn	H	S	O
MCNPX	$(42,715 \pm 0,007)\%$	$(51,000 \pm 0,007)\%$	$(2,167 \pm 0,002)\%$	$(1,620 \pm 0,002)\%$
GEANT4	$(45,25 \pm 0,02)\%$	$(48,66 \pm 0,02)\%$	$(3,071 \pm 0,006)\%$	$(1,400 \pm 0,004)\%$
FLUKA	$(43,47 \pm 0,07)\%$	$(51,92 \pm 0,07)\%$	$(1,65 \pm 0,01)\%$	$(0,90 \pm 0,01)\%$

Tableau 3.1.: Résultats des simulations du système complet modélisé via MCNPX, GEANT4 et FLUKA

Les écarts relatifs entre ces valeurs sont significatifs, celui pour le manganèse atteignant 6 %. Pour le soufre et l'oxygène, les écarts sont encore plus grands (jusqu'à 86 %), compte tenu de la moindre probabilité de captures neutroniques sur ces éléments. Par le passé, quelques publications seulement ont traité de la comparaison entre les codes MCNPX, GEANT4 et FLUKA. Dans la plupart d'entre elles, les écarts peuvent atteindre 20 % [63, 64]. Une précédente étude, où l'ancien bain de manganèse du LNHB fut modélisé en utilisant diverses versions de MCNP et TRIPOLI montra un accord entre les résultats de 0,8 % [60, 65] : pour la même modélisation produite avec le même code Monte-Carlo, des biais (liés à l'utilisateur) sont déjà présents.

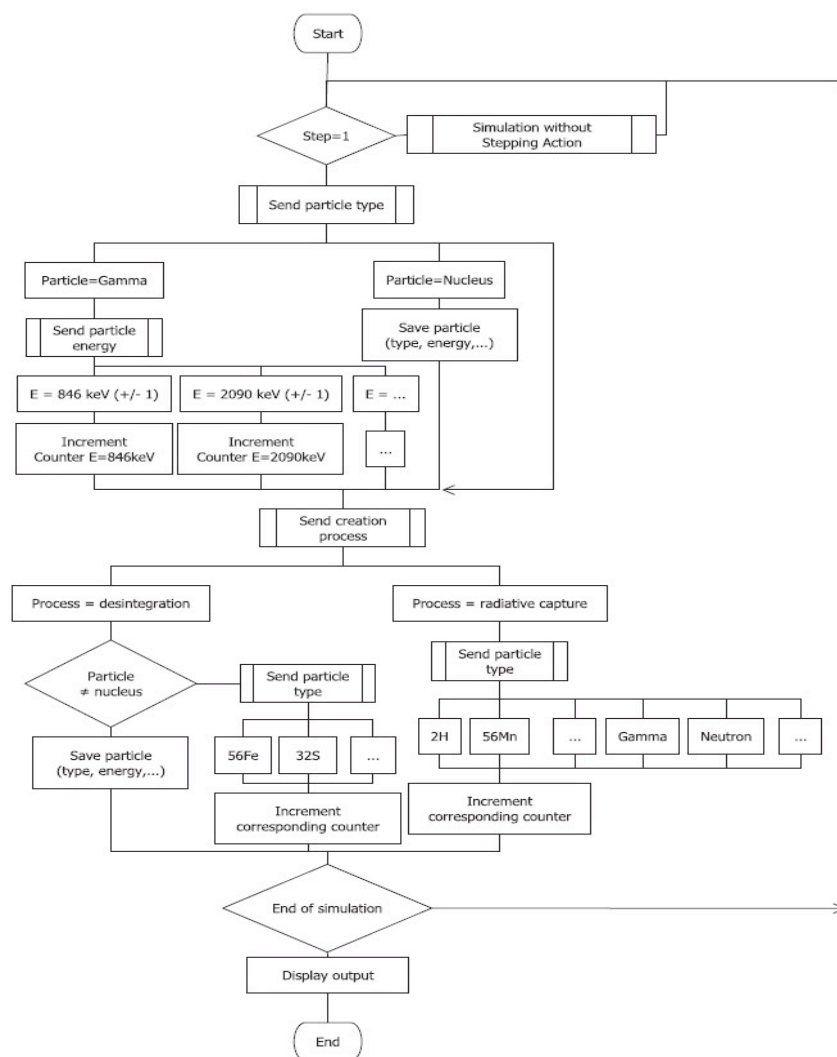


Figure 3.8.: Algorithme de détection des évènements développé sous GEANT4

Afin d'identifier la ou les causes de ces écarts, les fuites neutroniques simulées par les trois codes ont été comparées. La fluence de fuite (neutrons s'échappant de la sphère) a été étudiée dans le but de vérifier la forme du spectre en énergie des neutrons après diffusion et thermalisation, et de contrôler ainsi le comportement des codes en fonction de l'énergie des neutrons. La Figure 3.9 et la Figure 3.10 présentent la forme de la distribution en énergie des fluences de fuite ; à la surface de la sphère par unité de léthargie (voir paragraphe A.2.3 de l'annexe A), normalisé à un neutron émis. Cela correspond à la fluence moyenne sur la surface de la sphère, l'anisotropie d'émission étant négligée. Les indicateurs utilisés sont de type "F2" (détecteur virtuel donnant un résultat équivalent à la fluence) pour MCNPX, "USRBDX" (équivalent fluence) pour FLUKA et codé spécifiquement pour GEANT4.

Les écarts relatifs sur la fluence de fuite moyenne entre MCNPX et FLUKA sont

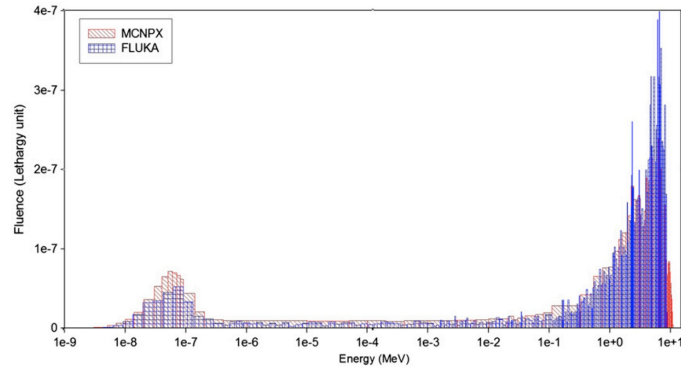


Figure 3.9.: Fluences de fuite en dehors de la sphère simulées par MCNPX et FLUKA

de 56 % dans le domaine en énergie des neutrons thermiques (jusqu'à $1,5 \cdot 10^{-7}$ MeV), 33 % dans le domaine en énergie épi-thermique (de $1,5 \cdot 10^{-7}$ MeV à 0,1 MeV) et de 7 % dans le domaine en énergie des neutrons rapides (de 0,1 MeV à 20 MeV). Ainsi, la fluence de fuite moyenne sous MCNPX et FLUKA tend vers un meilleur accord lorsque l'énergie des neutrons augmente.

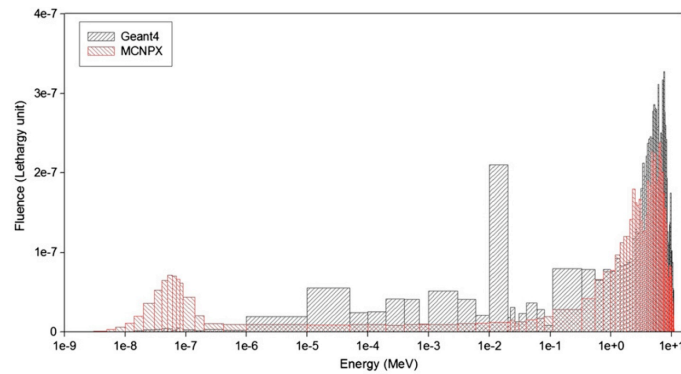


Figure 3.10.: Fluences de fuite en dehors de la sphère simulées par MCNPX et GEANT4

La Figure 3.10 montre le principal inconvénient de GEANT4 identifié lors de cette étude : des anomalies apparaissent dès que l'énergie des neutrons passe en dessous du domaine en énergie des neutrons d'énergie rapide. De plus, l'écart entre les fluences de fuite pour la zone de neutrons rapides est de 24 %. Il est donc clair qu'un problème d'approximation existe dans les processus de thermalisation implémentés dans GEANT4. En effet, quasiment aucun neutron thermique n'est présent sur ce spectre, et des pics anormaux apparaissent entre 1 eV et 0,1 MeV.

Le Tableau 3.2 suivant présente les fluences de fuite calculées et normalisées sur la totalité de la surface de la sphère.

De ces valeurs, le fort écart relatif (environ 28 %) entre GEANT4 et les autres codes

Code	Fluence totale en neutrons par cm^{-2}
MCNPX	$(7,45 \pm 0,01) \%$
GEANT4	$(9,53 \pm 0,02) \%$
FLUKA	$(7,32 \pm 0,01) \%$

Tableau 3.2.: Fluences totales simulées, normalisées sur la surface de la sphère

ne fait plus aucun doute. En revanche, FLUKA et MCNPX présentent un faible écart relatif de 1,8 %. A partir de ces constatations, une étude spécifique de l'influence de l'énergie sur le comportement des codes Monte-Carlo est apparue nécessaire. A cette fin, des modélisations complémentaires modifiant la complexité du modèle, suivies de leurs simulations, ont été réalisées. On note également que la nécessité d'une validation expérimentale des codes de calculs devient évidente lorsque l'on constate de tels écarts.

Afin d'étudier les écarts dus à la géométrie, un modèle simple a été développé ; pour analyser les problèmes liés à la distribution en énergie de la source, une source mono-énergétique a également été simulée.

3.3.2. Modèles complémentaires

En vue de vérifier l'influence d'une géométrie complexe, avec une émission volumique à l'intérieur de la source, une simulation d'un bain de manganèse simplifié a été réalisée, via les trois codes Monte-Carlo. La géométrie consiste en une source ponctuelle, avec une émission isotrope (suivant la distribution en énergie définie dans la norme ISO8529-1), placée au centre d'une sphère d'un mètre de diamètre constituée d'une solution aqueuse de sulfate de manganèse. La sphère est placée à l'intérieur d'un volume vide de dimensions infinies.

L'influence des différents moyens de modéliser l'émission neutronique a également été étudiée grâce à un second modèle simplifié avec une émission mono-énergétique. L'énergie des neutrons est de 4,44 MeV (énergie moyenne d'émission d'une source neutronique d'AmBe), et est émise au centre de la sphère (source ponctuelle) dans une seule et même direction pour les trois codes, afin d'éviter toute influence potentielle de l'anisotropie d'émission dans la définition de la source.

3.3.2.1. Géométrie simplifiée

La géométrie simplifiée décrite ci-dessus a été simulée avec les 3 codes. Le Tableau 3.3 suivant présente les résultats obtenus pour ces trois modèles, en terme de capture neutronique par les éléments d'intérêt.

Dans le cas de cette géométrie simplifiée, GEANT4, MCNPX et FLUKA présentent déjà des écarts importants sur chaque élément. De plus, ces différences sont du même

Code	Mn	H	S	O
MCNPX	(42,510 $\pm$ 0,007) %	(50,760 $\pm$ 0,007) %	(2,230 $\pm$ 0,002) %	(1,09 $\pm$ 0,01) %
GEANT4	(45,20 $\pm$ 0,02) %	(48,71 $\pm$ 0,02) %	(1,560 $\pm$ 0,004) %	(1,730 $\pm$ 0,004) %
FLUKA	(43,790 $\pm$ 0,007)%	(52,140 $\pm$ 0,007)%	(1,620 $\pm$ 0,004)%	(1,050 $\pm$ 0,001)%

Tableau 3.3.: Résultats des simulations MCNPX, GEANT4 et FLUKA de la géométrie simplifiée

ordre de grandeur que celles obtenues pour une géométrie complexe, sauf pour la valeur de capture neutronique par le soufre pour GEANT4, qui a été divisée par 2, et pour la valeur de capture neutronique par l'oxygène pour MCNPX, réduite de 30 %. Cela implique que les causes se situent au delà de la géométrie modélisée, et sont probablement liées aux différences dans les interactions neutroniques simulées, l'émission neutronique, et/ou les indicateurs définis par l'utilisateur.

3.3.2.2. Neutrons mono-énergétiques

Le modèle simplifié, dans lequel les neutrons émis par la source sont mono-énergétiques, a été programmé et testé en utilisant les trois codes Monte-Carlo concernés. Le Tableau 3.4 suivant présente les résultats obtenus par la simulation de ces modèles.

Code	Mn	H	S	O
MCNPX	(43,565 $\pm$ 0,007)%	(52,025 $\pm$ 0,007)%	(2,278 $\pm$ 0,002)%	(1,13 $\pm$ 0,01)%
GEANT4	(44,56 $\pm$ 0,02)%	(47,89 $\pm$ 0,02)%	(3,064 $\pm$ 0,004)%	(1,546 $\pm$ 0,004)%
FLUKA	(43,76 $\pm$ 0,07)%	(52,15 $\pm$ 0,07)%	(1,65 $\pm$ 0,04)%	(1,070 $\pm$ 0,01)%

Tableau 3.4.: Résultats des simulations MCNPX, GEANT4 et FLUKA du modèle avec neutrons mono-énergétiques

Là encore, essentiellement pour Mn et H, des écarts entre les codes sont présents. Il est à noter que la différence entre les résultats obtenus par MCNPX et FLUKA a diminué, signifiant potentiellement que les différences entre ces deux codes se situent principalement dans la façon dont l'émission neutronique est modélisée. En effet, la seule partie "programmée" par l'utilisateur dans la modélisation FLUKA est la définition de la source, où l'algorithme de gestion de l'intensité d'émission en fonction de l'énergie a entièrement été codé en FORTRAN pour ce cas précis. Pour la modélisation GEANT4, on note une augmentation du taux de capture neutronique par le soufre par rapport au cas de la géométrie simple, cependant plus proche de celui obtenu pour la géométrie complète. Cette fois encore, de telles différences peuvent difficilement être expliquées par les processus physiques en jeu lors de la simulation, et sont probablement dues à des approximations dans le code.

3.4. Choix du code de calcul

3.4.1. Discussion

Il existe peu de publications traitant de la validation des codes GEANT4, MCNPX et FLUKA pour le transport des neutrons d'énergies thermiques à rapides. La plupart d'entre elles traitent de comparaisons dans le traitement des sections efficaces. E. Mendoza [66] montra que de fortes disparités sont présentes entre GEANT4 et MCNPX, particulièrement lorsque l'on utilise des bibliothèques de sections efficaces pour des neutrons thermiques, telles que celles fournies par ENDFBVII.0. En effet, sans pouvoir en expliquer la cause, cette publication démontre que plusieurs des bibliothèques évaluées se comportent différemment de celles utilisées dans MCNPX, en s'appuyant sur différentes "températures" de thermalisation des neutrons pour la même section efficace traitée par GEANT4 ou MCNPX [67].

Par ailleurs, une comparaison détaillée entre GEANT4, MCNP et des données expérimentales publiées par [68] conclut que MCNP est le code le plus performant pour les calculs de transport de neutrons dans les milieux hydrogénés. Dans notre cas, l'étude montre que les écarts sont causés par plusieurs différences logicielles dans les codes de calcul.

Premièrement, les interactions neutroniques, évaluées par le traitement des sections efficaces, se comportent différemment selon les codes puisqu'une géométrie simple avec des paramètres identiques présente déjà des écarts importants. Le code GEANT4 pouvant être facilement modifiable (via de la programmation en C++), ce traitement peut être étudié et mis à jour si nécessaire.

Une autre des causes d'écart entre les codes, mise en lumière par cette étude, est la façon dont l'émission neutronique est réalisée. Avec MCNPX, il suffit d'utiliser la fonction SDEF (une seule ligne dans le fichier d'entrée, fonction validée par ailleurs [69]), là où pour GEANT4 et FLUKA, il est nécessaire de programmer l'isotropie et la distribution en énergie selon la norme ISO8529-1. De plus, comme il est montré au paragraphe 4.2.1, des anomalies peuvent apparaître si un type d'émission neutronique inadéquat est choisi.

Enfin, la façon dont le comptage des captures neutroniques simulées est réalisé peut également mener à des écarts importants sur les résultats. Avec GEANT4, l'algorithme de comptage doit être programmé par l'utilisateur, là où pour les autres codes, des indicateurs existent déjà ("RESNUCLEI" pour FLUKA, et "F4" pour MCNPX). La figure 3.10 montre que la simulation du transport des neutrons par GEANT4 présente plusieurs singularités dans les régions thermiques et épi-thermiques (pic thermique manquant, pics anormaux dans la région épi-thermique).

Par conséquent, et au vu de ces différents résultats, l'utilisation de GEANT4 pour la modélisation du bain de manganèse est très fortement sujette à caution, voire à éviter dans ce contexte.

En complément, il serait intéressant de comparer les résultats simulés avec des mesures appropriées, afin d'appuyer le choix du code de calcul Monte-Carlo. Le paragraphe 3.4.2 suivant présente une suggestion pour une vérification de la fiabilité des modèles développés.

3.4.2. Suggestions pour vérifier la fiabilité des modélisations du bain de manganèse

Le bain de manganèse étant la méthode de référence pour l'étalonnage de sources neutroniques, et s'appuyant sur une modélisation Monte-Carlo liant l'émission neutronique de la source à l'activité mesurée, il est important de déterminer lequel des trois codes utilisés sera le plus proche de la réalité physique du problème.

Concernant le bain de manganèse, la difficulté est, dans ce cas, de mesurer une source de neutrons d'émission neutronique connue et qui n'a pas été étalonnée par une méthode du bain de manganèse utilisant des facteurs correctifs calculés par des méthodes Monte-Carlo. Ainsi, il est proposé ici une première méthode répondant à cette problématique et reposant sur 4 mesures.

Des modifications délibérées sont apportées au système "classique" du bain de manganèse : deux sources différentes sont mesurées (de même type mais de débits d'émission neutronique différents d'au moins un facteur 10), avec deux configurations différentes afin d'induire des activités du bain différentes pour la même source. Le principe de cette méthode est présenté dans le Tableau 3.5 suivant, où B est le débit d'émission neutronique sous 4π sr des sources 1 et 2, A est l'activité mesurée en ^{56}Mn du bain, C représente les facteurs correctifs obtenus par les méthodes de Monte-Carlo.

	Source 1	Source 2
Configuration 1	$B^1 = C_1^1.A_1^1$	$B^2 = C_1^2.A_1^2$
Configuration 2	$B^1 = C_2^1.A_2^1$	$B^2 = C_2^2.A_2^2$

Tableau 3.5.: Principe de la méthode de validation des codes de calcul Monte-Carlo

Le but de cette méthode est d'avoir deux situations différentes (pour le même bain de manganèse), où la quantité de neutrons thermalisés est différente dans chaque cas. Les deux configurations peuvent être deux porte-sources différents (par exemple, de mêmes dimensions mais de compositions différentes) ou deux sphères de diamètres différents remplies de la même solution (concentrations et compositions identiques). Lorsque les 4 mesures ont été réalisées, 4 modélisations représentant chacune des situations sont simulées, fournissant les 4 jeux de facteurs correctifs.

Les deux systèmes d'équations suivant peuvent alors s'écrire :

$$\begin{cases} B^1 = C_1^1 \cdot A_1^1 \\ B^1 = C_2^1 \cdot A_2^1 \end{cases} \quad \text{et} \quad \begin{cases} B^2 = C_1^2 \cdot A_1^2 \\ B^2 = C_2^2 \cdot A_2^2 \end{cases}$$

donne :

$$\begin{cases} \frac{C_1^1}{C_2^1} = \frac{A_2^1}{A_1^1} \\ \frac{C_1^2}{C_2^2} = \frac{A_2^2}{A_1^2} \end{cases}$$

Si ce système est vérifié, et après évaluation des incertitudes associées, les facteurs correctifs calculés doivent correspondre aux activités mesurées, signifiant qu'il n'y a pas d'incohérence entre la modélisation et l'expérience. L'utilisation de deux émissions neutroniques différentes diminue la probabilité d'avoir une égalité "accidentelle" entre les mesures et la simulation.

Une deuxième méthode permettant d'évaluer la fiabilité des modélisations Monte-Carlo se base sur les émissions gamma dues aux interactions entre les neutrons et le bain de manganèse. En effet, pour une source et une solution donnée, un spectre caractéristique des proportions de capture neutronique sur chaque élément est détectable à l'intérieur de la casemate et simulable par le code Monte-Carlo. La figure 3.11 suivante montre un spectre d'émissions gamma détectées à la surface de la sphère modélisée sous MCNPX.

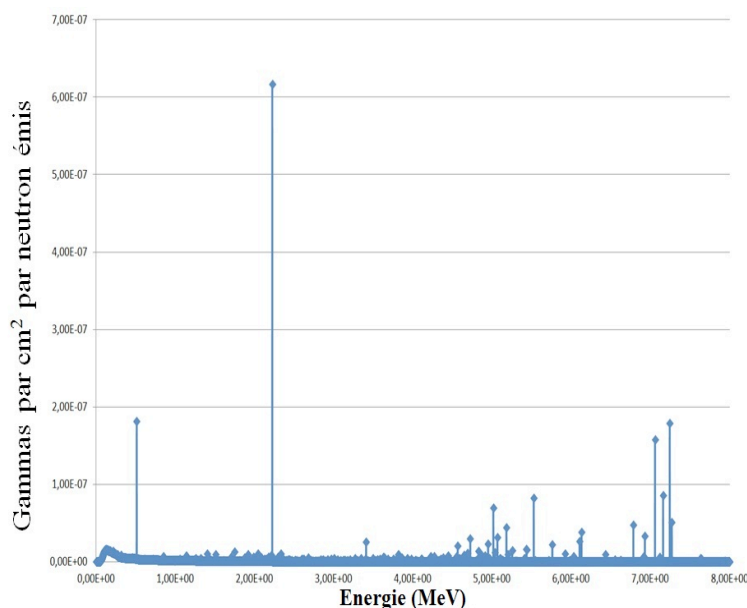


Figure 3.11.: Spectre gamma à la surface de la sphère du bain de manganèse modélisée sous MCNPX

Comme on le voit sur la Figure 3.11, il existe des pics d'absorption totale intense

et relativement éloignés les uns des autres pour permettre une détection. Parmi ces pics, on note la présence des rayons gamma de capture caractéristiques de l'hydrogène (2,22 MeV) et du manganèse (7,27 MeV). Aux gammas de capture s'ajoutent les émissions dues aux diffusions inélastiques (principalement dans le bain), à la source elle-même (pour les sources de photo-fission mais aussi pour les sources de type (alpha, n)), ainsi que les gammas de désexcitation des radionucléides créés par activation neutronique.

En plaçant un détecteur gamma (du type NaI(Tl), par exemple) à l'intérieur de la casemate lorsque la source est placée au centre de la sphère (et à saturation du bain), on peut donc détecter la quasi-totalité de ces émissions. Bien entendu, il est nécessaire d'étalonner le détecteur avant de comparer les spectres simulés et expérimentaux. Au LNE-LNHB, cet étalonnage peut être aisément réalisé grâce à la présence de méthodes primaires d'étalonnage en spectrométrie gamma.

Si le spectre simulé correspond au spectre mesuré, notamment en terme d'intensité relative des pics les uns par rapport aux autres (rapport des pics de capture sur l'hydrogène et sur le manganèse par exemple), alors cela signifie que le code de calcul traite correctement les sections efficaces en jeu dans la modélisation et que les facteurs correctifs qui y sont liés sont fiables.

En pratique, un détecteur gamma de type NaI(Tl) de 4 pouces (diamètre et longueur) préalablement étalonné et placé sur la table élévatrice faisant face à la sphère permettrait d'acquérir de tels spectres.

4. Développement du détecteur

Après avoir modélisé le système du bain de manganèse afin de déterminer par méthode Monte-Carlo les facteurs correctifs, un détecteur a été développé, permettant la mesure directe de l'activité du bain.

4.1. Principe : les coïncidences Cerenkov-gamma

4.1.1. Schéma de désintégration du manganèse 56

Comme vu précédemment, le principe même de l'étalonnage de sources neutroniques repose sur l'activation par captures neutroniques d'une solution aqueuse de sulfate de manganèse. L'élément manganèse a été choisi pour trois raisons principales : sa mise en solution aisée, sa forte propension à capturer les neutrons, et le radionucléide qui résulte de cette capture : le ^{56}Mn . En effet, grâce à l'apparition de ce dernier dans une solution activée par captures neutroniques, il est possible de mesurer l'activité de la solution de sulfate de manganèse en comptant les désintégrations du radionucléide ^{56}Mn .

Le ^{56}Mn se désintègre par émission β^- vers les niveaux excités de ^{56}Fe . La Figure 4.1 suivante présente le schéma de désintégration de ^{56}Mn [70].

La mesure de l'activité en ^{56}Mn de la solution peut être réalisée de deux manières : soit par mesure relative, en comptant les émissions gamma correspondant à la désexcitation du ^{56}Fe (présent dans 98,85 % des désintégrations), soit directement en comptant les coïncidences bêta-gamma lors de la désintégration du ^{56}Mn . C'est cette dernière méthode, permettant d'effectuer une mesure directe (sans étalonnage préliminaire du détecteur) qui a été choisie afin de répondre à la problématique de cette thèse.

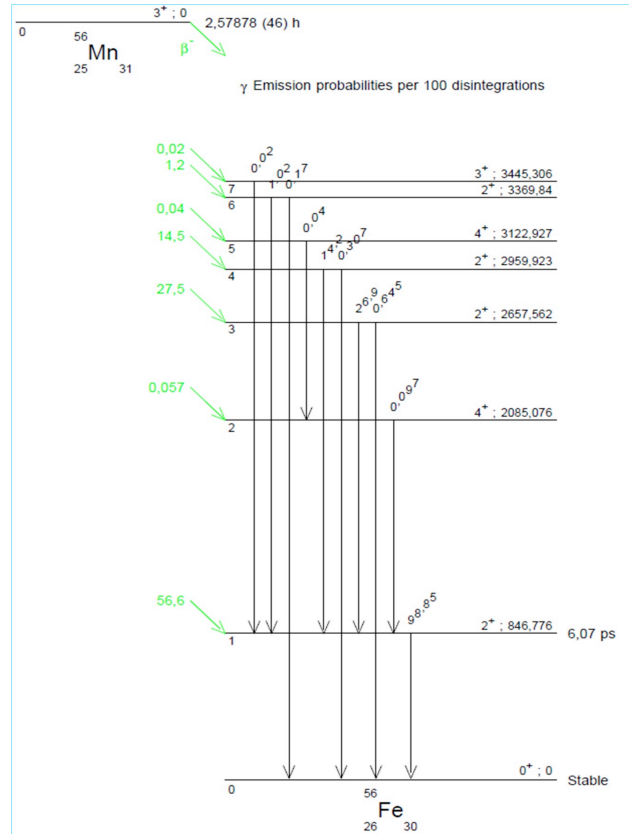


Figure 4.1.: Schéma de désintégration du ^{56}Mn

4.1.2. Effet Cerenkov

Les émissions bêta résultant de la désintégration du ^{56}Mn peuvent être détectées indirectement grâce à un phénomène physique appelé “effet Cerenkov”, caractérisé par un flash lumineux détectable. L’effet Cerenkov a lieu lorsqu’une particule chargée traverse un milieu transparent (indice de réfraction supérieur à 1) avec une vitesse supérieure à celle de la lumière dans le milieu considéré [5]. Cette condition est représentée par l’équation suivante :

$$\beta n < 1 \quad (4.1)$$

Où n est l’indice de réfraction du milieu, et β est le rapport entre les vitesses de la lumière dans le milieu et dans le vide.

En terme d’énergie, l’effet Cerenkov se produit donc lorsque l’énergie de la particule chargée E_{th} dépasse le “seuil Cerenkov”, définie comme suit en fonction de l’indice de réfraction du milieu :

$$\frac{1}{n} = \sqrt{1 - \left(\frac{1}{\frac{E_{th}}{m_0 c^2} + 1} \right)^2} \quad (4.2)$$

Où $m_0 c^2$ représente l'énergie au repos de l'électron (511 keV). A titre d'exemple, le seuil Cerenkov est d'environ 263 keV pour un électron dans l'eau ($n = 1,33$) et 231 keV dans la solution aqueuse de sulfate de manganèse ($n = 1,38$ pour une concentration de 332 g.L⁻¹).

Physiquement, l'effet Cerenkov résulte d'une asymétrie dans le champ de polarisation des atomes constituant le milieu traversé par la particule chargée [71]. L'émission photonique a été décrite comme une "onde de choc électromagnétique", par analogie avec le choc sonore produit lorsqu'un avion dépasse la vitesse du son dans l'air (le "mur du son").

Une propriété importante de l'Effet Cerenkov est que la lumière est émise selon un angle ϑ par rapport à la direction de propagation de la particule chargée, où :

$$\cos \theta = \frac{1}{\beta n} \quad (4.3)$$

Ainsi, les photons produits par des électrons juste au-dessus du seuil en énergie seront émis à la surface d'un cône relativement étroit. A l'opposé, lorsque l'énergie de la particule augmente, β tend vers 1 et $\cos \vartheta$ tend vers 0,7508 dans le cas de l'eau, l'angle maximum d'émission étant de 41,3° (50° pour $n = 1,55$).

La sensibilité d'un photo-détecteur à l'effet Cerenkov est basée sur deux paramètres : le nombre de photons émis et leur distribution spectrale (spectre d'intensité relative en fonction de la longueur d'onde des photons) et la capacité du détecteur à convertir le photon en signal électrique, également appelée rendement ou efficacité quantique. La théorie développée par Frank et Tamm (et pour laquelle ils reçurent, avec P. A. Cerenkov, le prix Nobel de Physique en 1958) permet de calculer le nombre de photons émis dans une bande spectrale donnée par unité de longueur parcourue par l'électron, selon la formule :

$$\frac{dN}{dx} = 2\pi\alpha \left(\frac{1}{\lambda_2} - \frac{1}{\lambda_1} \right) \left(1 - \frac{1}{\beta^2 n^2} \right) \quad (4.4)$$

Avec $\frac{dN}{dx}$ le nombre de photons émis par centimètre,

$$\alpha = \frac{e^2}{hc} = 1/137,$$

et λ_1 et λ_2 les bornes inférieure et supérieure de la bande spectrale considérée, en centimètres.

La résolution de cette équation passe par la prise en compte de l'évolution de x en fonction de β et de β en fonction du temps lors du parcours d'un électron dans le milieu considéré. Des relations empiriques ont été développées par [72] dans le cas de l'eau [73].

La distribution spectrale est présentée dans la Figure 4.2 suivante (ainsi que le rendement quantique d'un photo-détecteur "typique") [74] :

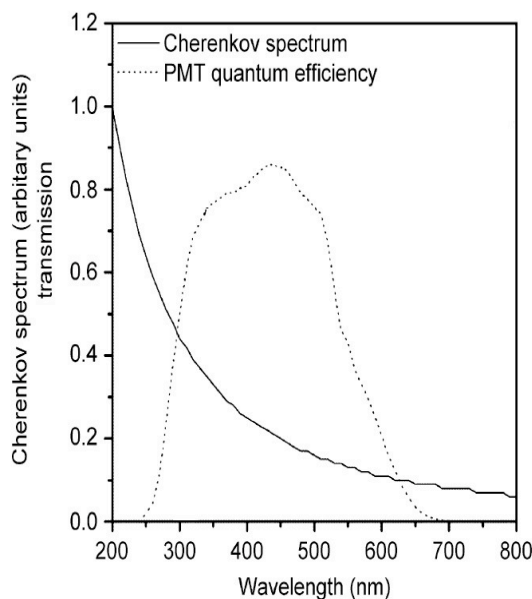


Figure 4.2.: Spectre Cerenkov et rendement quantique d'un photo-détecteur typique

Comme on le voit sur la figure précédente, afin de détecter au mieux les flashes Cerenkov, il est nécessaire d'opter pour un photo-détecteur possédant un rendement quantique le plus efficace possible dans la zone des ultra-violets (longueur d'onde inférieure à 380 nm). Il est également important de ne pas introduire de matériaux pouvant "absorber" les U.V. entre le détecteur et la solution, comme cela pourrait être le cas, par exemple, avec le verre.

4.1.3. Détection gamma

Afin de détecter les désintégrations de ^{56}Mn dans le MnSO_4 , il est également nécessaire de compter les rayons gamma provenant de la désexcitation du ^{56}Fe , en coïncidence avec les événements Cerenkov (le principe de la méthode de mesure de l'activité par les coïncidences est explicité dans le paragraphe suivant). Le schéma

de désintégration du ^{56}Mn indique que dans 98,85 % des désexcitations, un gamma de 846 keV est émis : c'est donc ce pic qui sera choisi et qui déclenchera le comptage en voie gamma. Il est donc nécessaire d'utiliser un détecteur gamma capable de discriminer l'énergie des gammas incidents.

Parmi les nombreuses interactions possibles entre un rayon gamma et la matière, seules trois ont un réel intérêt en spectroscopie gamma : l'absorption photo-électrique, la diffusion Compton, et la production de paires. Comme on peut le voir sur la Figure 4.3 suivante, dans le cas présent, les gamma de 846 keV interagiront principalement par absorption photo-électrique et diffusion Compton [5].

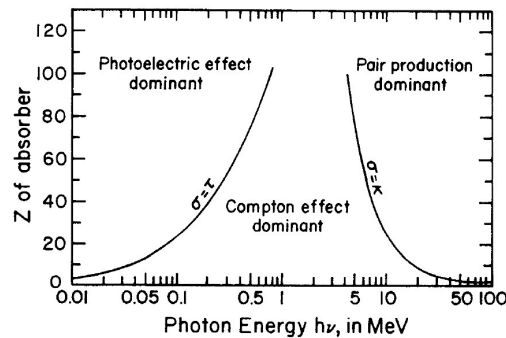


Figure 4.3.: Importance relative des trois grands types d'interaction gamma-matière

Il existe trois principaux types de détecteur gamma : les détecteurs à scintillation, les détecteurs à semi-conducteur, et les détecteurs à gaz. La Figure 4.4 suivante présente une comparaison des rendements en énergie (absorption uniquement) de détecteurs des trois types cités précédemment.

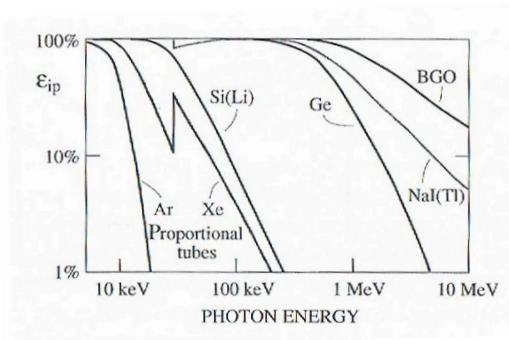


Figure 4.4.: Dépendance du rendement en énergie pour un photon gamma incident, pour différents types de détecteurs

Comme on peut le voir, les détecteurs à gaz (Ar et Xe) présentent un rendement très faible pour des gamma de 846 keV, et sont donc inadaptés à notre application.

Le détecteur au Germanium, de type semi-conducteur, possède un rendement intéressant mais nécessite un refroidissement (azote liquide) qui ajoute une contrainte au détecteur, dont le but est de mesurer l'activité en ^{56}Mn du MnSO_4 . Le choix s'est donc porté sur un détecteur à scintillation, de type NaI(Tl) pour des raisons de disponibilité et de prix (les détecteurs au BGO ont un prix supérieur). De plus les détecteurs NaI(Tl) présentent généralement un rendement lumineux jusqu'à 5 fois supérieur aux BGO. La résolution du détecteur, de l'ordre de quelques dizaines de keV, importe peu : en effet, l'énergie du gamma que l'on souhaite détecter (846 keV) ainsi que l'absence d'autres énergies pouvant se convoluer (empilement) à celles du ^{56}Mn ne contraignent pas le choix du détecteur en terme de résolution.

4.1.4. Coïncidences

Le principe de la mesure de l'activité par la méthode des coïncidences implique d'une part le comptage des événements détectés dans deux "voies" séparées, chacune dédiée à un type de rayonnement, d'autre part le comptage des "coïncidences" entre ces deux voies. La Figure 4.5 suivante présente le schéma de principe d'un ensemble de mesure classique par coïncidences (coïncidences $4\pi\beta/\gamma$ dans cet exemple, où T_m représente le temps mort et τ_r le temps de résolution).

Le temps mort représente le temps de paralysie du système, naturel ou induit par un module électronique prévu à cet effet, et le temps de résolution correspond à la durée minimum nécessaire à la détection d'un événement de coïncidence.

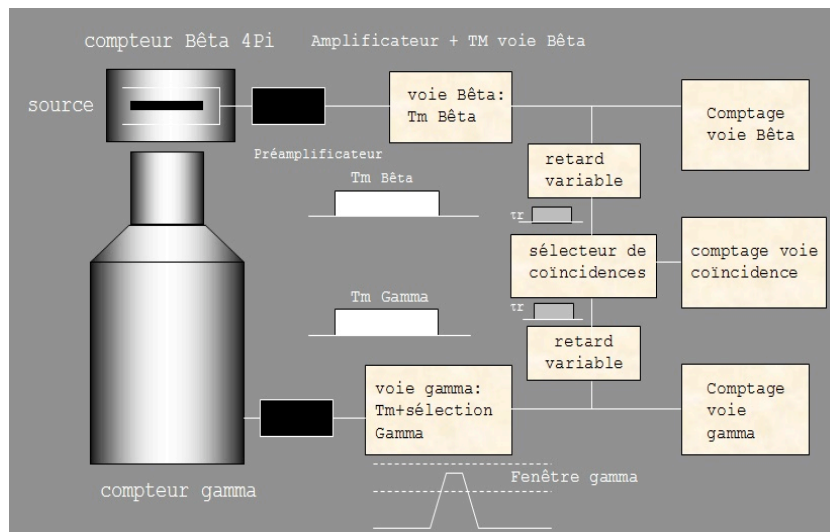


Figure 4.5.: Schéma de principe d'un ensemble de mesure par coïncidences $4\pi\beta/\gamma$ (J. Bouchard [3])

Une des conditions nécessaires est que les deux voies soient indépendantes : un rayonnement de type A ne doit pas être détecté dans la voie dédiée au rayonnement

de type B. Lorsque cela est malheureusement le cas, on appelle ce phénomène la “diaphonie” et des corrections doivent être appliquées. Par exemple, il y a diaphonie lorsqu’un rayon gamma peut interagir par effet Compton et induire un électron qui sera détecté par la voie bêta. Il est alors possible de réduire cette diaphonie, en blindant la voie de détection bêta avec du plomb qui absorbera les rayons gammas.

Ainsi, la méthode des coïncidences peut être utilisée pour mesurer l’activité d’un radionucléide se désintégrant par émission bêta suivie d’un gamma de désexcitation du noyau fils [75].

Dans l’hypothèse où il n’y a pas de diaphonie entre les voies, les équations suivantes permettent de calculer l’activité à partir des taux de comptage mesurés :

$$N_{\beta} = A.\varepsilon_{\beta} \quad (4.5)$$

$$N_{\gamma} = A.\varepsilon_{\gamma} \quad (4.6)$$

et

$$N_C = A.\varepsilon_{\beta}.\varepsilon_{\gamma} \quad (4.7)$$

d’où

$$A = \frac{N_{\beta}.N_{\gamma}}{N_C} \quad (4.8)$$

où N_{β}, N_{γ} et N_C sont les taux de comptage mesurés en voie bêta, gamma et en coïncidence,

ε_{β} et ε_{γ} sont les rendements des voies bêta et gamma,

et A est l’activité recherchée.

L’intérêt majeur de la méthode des coïncidences réside donc dans le calcul de l’activité : il n’est pas nécessaire de connaître le rendement des détecteurs.

Cependant, dans le cas d’une source étendue (c’est-à-dire non ponctuelle), pour laquelle les rendements de détection peuvent varier d’une région à l’autre de la source (à cause de l’angle solide de la voie de détection et/ou d’une inhomogénéité de la source), les taux de comptages s’écrivent :

$$N_{\beta} = A.\bar{\varepsilon}_{\beta} \quad (4.9)$$

$$N_\gamma = A.\bar{\varepsilon}_\gamma \quad (4.10)$$

et

$$N_C = A.\overline{\varepsilon_\beta.\varepsilon_\gamma} \quad (4.11)$$

où $\bar{\varepsilon}_\beta$ et $\bar{\varepsilon}_\gamma$ sont les moyennes des rendements de détection élémentaires intégrés sur la totalité du volume de la source, et sont identiques aux rendements de détection globaux ε_β et ε_γ pour les radiations émises pour la source entière [76]. Cette condition est vérifiée lorsqu'il y a indépendance stochastique des voies de comptages. En conséquence, la position des événements de désintégration au sein du volume ne doit pas influencer au moins une voie de comptage. Pour cette thèse, une telle hypothèse a été posée a priori et sera discutée au vu des résultats obtenus.

Dans le cas où il y a une diaphonie entre les voies, des corrections sont à apporter, et les équations précédentes deviennent (en introduisant également les électrons de conversion) [77] :

$$N_\beta = A. \left[\varepsilon_\beta + (1 - \varepsilon_\beta) \left(\frac{\alpha \varepsilon_{ce} + \varepsilon_{\beta\gamma}}{1 + \alpha} \right) \right] \quad (4.12)$$

$$N_\gamma = \frac{A.\varepsilon_\gamma}{(1 + \alpha)} \quad (4.13)$$

$$N_C = A. \left[\frac{\varepsilon_\beta \varepsilon_\gamma}{(1 + \alpha)} + (1 - \varepsilon_\beta) \varepsilon_c \right] \quad (4.14)$$

Où α est le coefficient de conversion interne totale du radionucléide,

ε_{ce} est le rendement de détection des électrons de conversion dans la voie bêta,

$\varepsilon_{\beta\gamma}$ est le rendement de détection de gamma dans la voie bêta (diaphonie),

et ε_c représente la probabilité d'observer des coïncidences additionnelles dues à des gammas détectés en premier dans la voie bêta.

Dans le cas de ^{56}Mn , le coefficient de conversion interne totale pour l'émission gamma d'intérêt (847 keV) est égal à 0,000300(9) et est donc considéré comme nul afin de simplifier les équations précédentes.

Afin de pouvoir calculer l'activité, on applique alors la méthode dite de la “courbe d'extrapolation” [77]. En faisant varier le rendement de la voie bêta (ϵ_β), l'activité A est obtenue en extrapolant l'expression 4.8 lorsque N_C/N_γ tend vers 1. En pratique, on trace le graphique N_β en fonction de $(1-N_C/N_\gamma)$, et on obtient l'activité A en extrapolant à 0 la courbe obtenue. On fait varier le rendement en voie bêta en réduisant la tension d'alimentation des photomultiplicateurs (ou la tension à la première dynode amplificatrice), ce qui a pour effet de diminuer le nombre d'électrons collectés pour la détection d'un photon. La Figure 4.6 suivante présente un exemple de courbe d'extrapolation obtenue pour du ^{124}Sb [4].

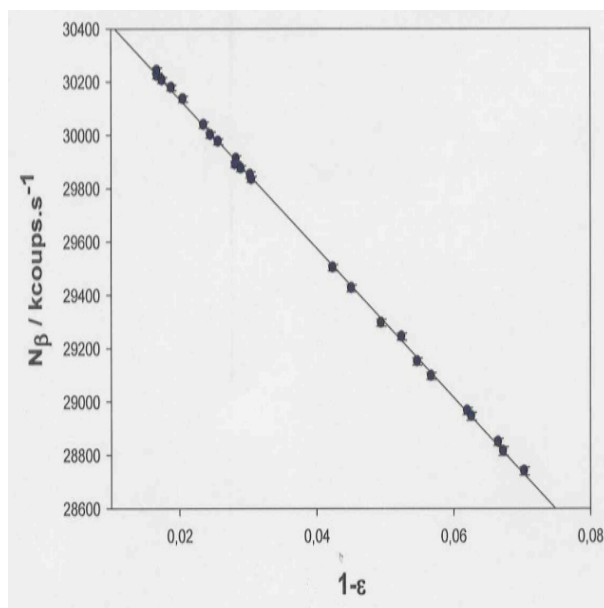


Figure 4.6.: Exemple de courbe d'extrapolation [4]

4.2. Validation du principe de mesure

4.2.1. Prototype

Un premier prototype de détecteur basé sur la méthode des coïncidences Cerenkov-gamma a été développé et testé. Le schéma du système de détection retenu apparaît sur la Figure 4.7 : la solution de sulfate de manganèse issue de la boucle de mesure circule dans une cellule optique transparente accolée à deux photomultiplicateurs pour le comptage des photons Cerenkov, fonctionnant en coïncidence afin de rejeter leur bruit thermique. Un détecteur NaI(Tl) pour le comptage des photons gamma est également accolé à cette cellule et les comptages s'effectuent pour chaque détecteur (i.e. photomultiplicateurs en coïncidence et détecteur gamma) et pour les deux types de détecteurs en coïncidence.

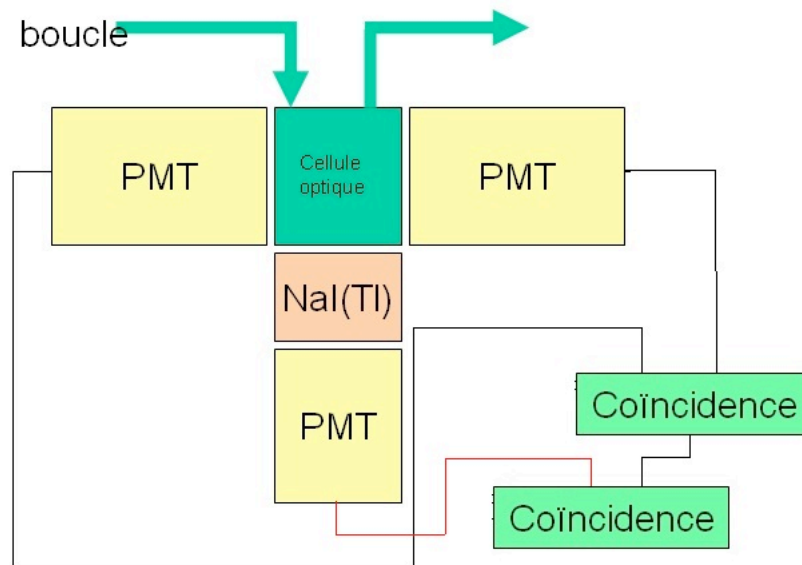


Figure 4.7.: Schéma de principe du détecteur Cerenkov-Gamma

L'ensemble est placé à l'intérieur d'une boîte en plastique opaque (de dimensions 20x35x35 cm) recouverte d'un film de cuivre, permettant de réaliser l'isolation lumineuse et électromagnétique des éléments sensibles (voir Figure 4.8). Le détecteur gamma est placé à l'extérieur de la boîte mais à proximité immédiate de la cellule de mesure, afin de réduire au maximum l'atténuation des rayons gamma et leur détection à l'intérieur de la boîte.



Figure 4.8.: Vue extérieure du prototype de détecteur Cerenkov-gamma

La cellule optique, disponible au laboratoire, est constitué d'un cylindre en quartz de 30 mm de diamètre et de 23 mm d'épaisseur et d'un volume total de 59 cm^3 , sur laquelle deux tubulures permettent la circulation de la solution activée. Les photomultiplicateurs de marque Electron-Tubes (modèle 9107) sont disposés de part et d'autre de la cellule (voir Figure 4.9).

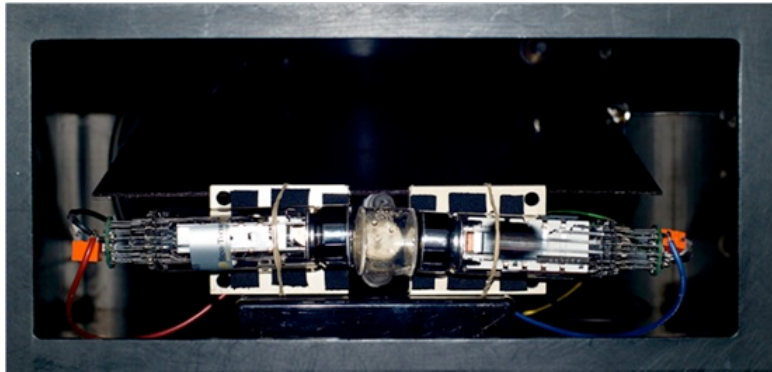


Figure 4.9.: Vue intérieure du prototype de détecteur Cerenkov-gamma

La chaîne électronique associée, visible à gauche sur la Figure 4.8, composée de modules NIM analogiques, est présentée dans la Figure 4.10 suivante :

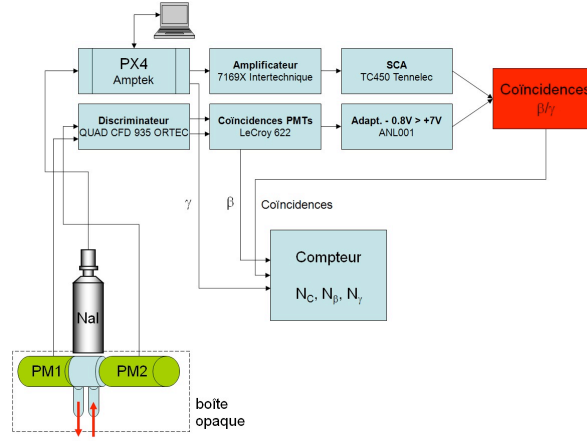


Figure 4.10.: Chaîne de mesure du prototype de détecteur Cerenkov-Gamma

L'acquisition en voie gamma est réalisée par un analyseur multi-canal numérique ("MCA", modèle PX4 de la marque Amptek) qui se présente sous la forme d'une carte FPGA (Field Programmable Gate Array) permettant de sélectionner la bande d'énergie dans laquelle on souhaite réaliser le comptage. Le MCA permet également d'étalonner en énergie le spectre acquis : en pratique, lors des tests, cela a été réalisé grâce à une source de ^{60}Co en sélectionnant les pics de 1,173 MeV et 1,333 MeV (99% de probabilité d'émission).

Le seuil de déclenchement du discriminateur a été réglé afin de rejeter un maximum d'impulsions provenant du bruit thermique des photomultiplicateurs tout en rejetant un minimum d'impulsions provenant des photo-électrons. La Figure 4.11 suivante illustre les mesures réalisées afin de déterminer ces seuils.

Le module de coïncidences β/γ permet également d'introduire un délai entre les voies : la voie β , plus rapide, est retardée de 5 μs . Le temps de résolution, fenêtre temporelle pendant laquelle une coïncidence est prise en compte après la détection d'un premier évènement, est réglé à 2 μs .

Le temps mort naturel cumulatif mesuré (en branchant la sortie de la voie sur un oscilloscope) est de 4,5 μs pour la voie gamma.

Dans cette configuration, il est nécessaire de quantifier le taux de coïncidences "fortuites" entre les voies de comptage. Pour cela, la formule suivante a été utilisée [76] :

$$N_f = 2.\tau.N_\beta.N_\gamma \quad (4.15)$$

Avec N_f le taux de coïncidences fortuites,

τ le temps de résolution des coïncidences,

et N_β et N_γ les taux comptages dans les voies β et γ .

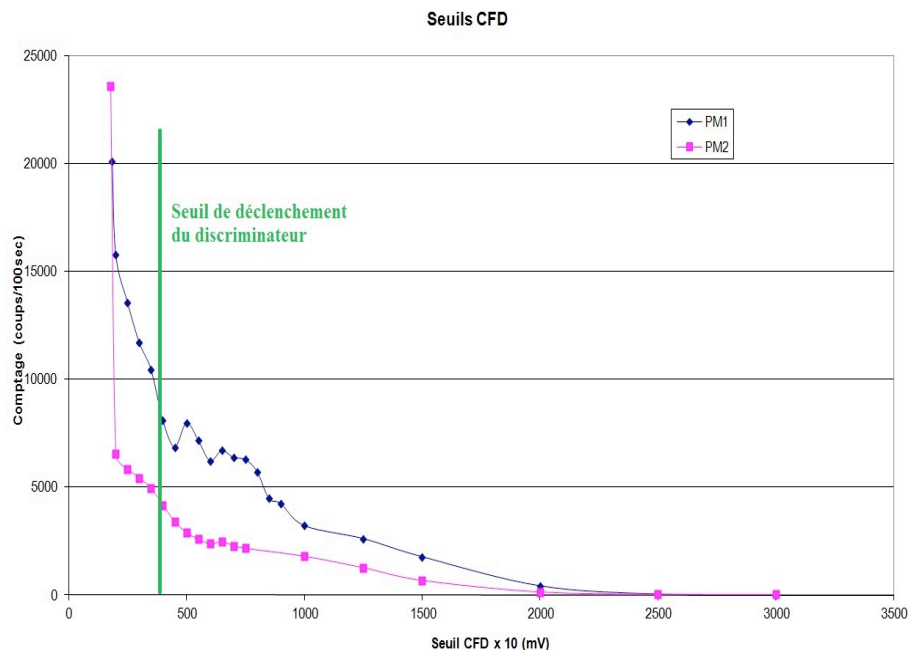


Figure 4.11.: Détermination des seuils des discriminateurs pour les deux photomultiplicateurs

4.2.2. Test et optimisation

4.2.2.1. Source de ^{60}Co avec scintillateur

Afin de tester le prototype de détecteur Cerenkov-gamma, et ne disposant pas de ^{56}Mn activé, une source de scintillation liquide (qui permet une conversion des bêta en photons proche de 100 %) de ^{60}Co a été réalisée et mesurée préalablement par une des méthodes primaires disponibles au laboratoire (méthode RCTD, pour Rapport des Coïncidences Triples à Doubles). Le scintillateur liquide utilisé est de type “Ultima Gold” de la marque Perkin Elmer, et le mélange est contenu dans un flacon de scintillation liquide en verre de 20 mL.

Méthode	Activité mesurée ($k=1$)
RCTD (primaire)	$(3521 \pm 4) \text{ Bq}$
Détecteur Cerenkov-gamma	$(3580 \pm 57) \text{ Bq}$

Tableau 4.1.: Activité mesurée lors du test du détecteur Cerenkov-gamma avec une source de ^{60}Co

Le Tableau 4.1 ci-dessus présente les premiers résultats obtenus avec la source de ^{60}Co . On note un écart de 1,7 % entre les deux méthodes avec un écart normalisé de 1,

ce qui permet de valider la compatibilité des méthodes, et le bon fonctionnement du détecteur Cerenkov-gamma, dans cette configuration et aux incertitudes de mesure près (à $k=2$). La forte incertitude (1,6 %) pour le nouveau détecteur est due à la statistique de comptage, trop faible compte tenu du taux de comptage et du temps de mesure, notamment en voie gamma. Il est également important de noter que la chaîne de mesure utilisée pour le détecteur Cerenkov-gamma ne comporte pas de module de temps mort ni de mesure du temps actif de mesure (temps de comptage soustrait du temps de “paralysie” du système due aux temps morts) pour ce cas précis. En voie gamma, la détection est réduite à la bande d’énergie 1160-1345 keV (après étalonnage) grâce au module PX4, permettant ainsi de se restreindre aux pics d’intérêt (1173 keV et 1333 keV). La diaphonie entre les voies est également négligée afin de simplifier les calculs dans un premier temps.

4.2.2.2. Modélisation et simulation du prototype

A partir de ces résultats, il semblait nécessaire de réaliser une modélisation de la voie bêta du prototype afin de déterminer les différentes interactions se produisant dans chaque élément du détecteur. Cette modélisation a été réalisée à l’aide du code Monte-Carlo GEANT4, permettant la simulation des processus en jeu lors du transport de particules bêta et gamma. Dans un premier temps, la cellule de $^{60}\text{Co-MnSO}_4$ dont la mesure est décrite au paragraphe 4.2.2.3 a été modélisée.

En pratique, la modélisation du détecteur passe par la programmation (en C++) des différents paramètres pouvant influencer quantitativement et qualitativement la physique de détection des événements Cerenkov, tels que :

- Les dimensions de la cellule de mesure et sa composition (quartz)
- La composition chimique ainsi que l’indice de réfraction du $^{60}\text{Co-MnSO}_4$,
- Le spectre bêta du ^{60}Co , suivant son schéma de désintégration, et donné par le logiciel “BetaSpectra” développé au laboratoire [78],
- La géométrie et la composition des faces d’entrée des photomultiplicateurs.

Les figures suivantes présentent divers détails de la modélisation et de la simulation des processus physiques :

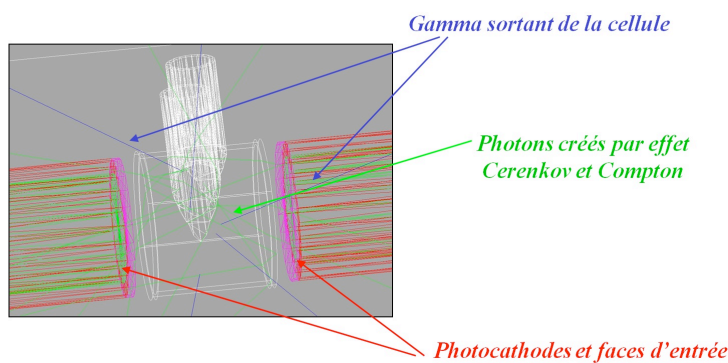


Figure 4.12.: Vue de la simulation de la voie bêta du détecteur pour une cellule de $^{60}\text{Co-MnSO}_4$

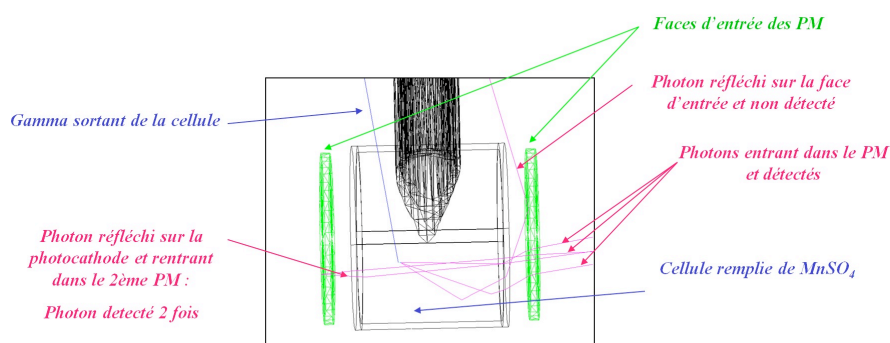


Figure 4.13.: Vue agrandie de la simulation de la voie bêta du détecteur pour une cellule de $^{60}\text{Co-MnSO}_4$

La modélisation inclut la gestion des propriétés optiques des matériaux transparents, tels que le borosilicate des faces d'entrée des photomultiplicateurs, leur photocathode en bialkali et le quartz de la cellule de mesure. Elle prend également en compte le rendement quantique du photomultiplicateur en fonction de la longueur d'onde du photon incident, tel que donné dans la documentation constructeur.

Lors des simulations, l'émission des bêta et des gammas, suivant les spectres propres au ^{60}Co , est confinée à l'intérieur de la cellule en quartz, avec une position et une direction aléatoires. On compte une coïncidence entre les deux photomultiplicateurs lorsque les photons détectés (qui traversent la face d'entrée sans réflexion vers l'extérieur du photomultiplicateur) sont issus du même évènement de désintégration (le temps de résolution des coïncidences entre photomultiplicateur est donc négligé). En effet, on touche ici aux limitations du code Monte-Carlo, car chaque évènement simulé étant indépendant et donc non-corrélé au précédent, il n'est pas possible

de simuler l'évolution temporelle de l'activité et le déclenchement aléatoire d'une désintégration en fonction de la période du radionucléide.

Dans le cas de la cellule de $^{60}\text{Co-MnSO}_4$, on compte par simulation, pour un nombre d'évènement simulés correspondant à une activité de 58 kBq, 1602 coïncidences en voie Cerenkov dont 1430 sont uniquement dues à des photons créés par des électrons Compton résultant de l'interaction du gamma de désintégration du ^{60}Co . Ainsi, on note que 89,3 % des coïncidences en voie bêta sont en réalité dues à des gammas. Ce taux relativement élevé est dû au schéma de désintégration du ^{60}Co : l'émission bêta, que l'on souhaite détecter par effet Cerenkov, possède une énergie moyenne de 95,6 keV inférieure aux 171 keV nécessaires pour déclencher l'effet Cerenkov dans la solution de $^{60}\text{Co-MnSO}_4$. D'autre part, les gammas de désexcitation ont une énergie de 1173 keV et 1333 keV, suffisamment haute pour libérer dans la cellule des électrons suffisamment énergétiques pour déclencher un flash Cerenkov.

Dans un second temps, l'émission de $^{56}\text{MnSO}_4$ (solution après activation neutronique) à l'intérieur de la cellule de mesure a également été modélisée et simulée afin de comparer les deux situations et d'obtenir des informations sur le radionucléide pour lequel le détecteur a été développé. De même, le spectre de l'émission bêta ainsi que les gammas de désexcitation ont été programmés dans la modélisation GEANT4. On trouve, pour cette configuration, un taux de 4,92 % de coïncidences entre photomultiplicateurs dues à l'effet Compton des gammas de désexcitation. Ce taux, bien plus faible (et acceptable) que celui correspondant au $^{60}\text{Co-MnSO}_4$ s'explique, de la même manière, par le schéma de désintégration du ^{56}Mn . Comme on l'a vu au paragraphe 4.1.1, ce dernier se caractérise par l'émission de bêtas d'énergie plus élevée permettant de créer un grand nombre de photons par effet Cerenkov.

4.2.2.3. Mesure de la cellule de $^{60}\text{Co-MnSO}_4$

Pour compléter ces résultats et se rapprocher des conditions "réelles" pour lesquelles le détecteur Cerenkov-gamma est développé, une cellule (identique à celle décrite dans la section précédente) contenant une quantité connue de ^{60}Co a été remplie de solution aqueuse de MnSO_4 , permettant ainsi aux bêta d'être convertis en photons par l'Effet Cerenkov.

L'activité en ^{60}Co est connue grâce à la pesée précise (avec balance étalonnée) de la quantité de ^{60}Co introduite dans la cellule, l'activité massique de la solution mère étant connue. Une diaphonie de 89,3 % est prise en compte grâce à une modélisation Monte-Carlo adéquate (voir paragraphe précédent) et en utilisant les équations décrites dans la section 4.1.4.

Les résultats suivants sont obtenus :

Méthode	Activité mesurée (k=1)
Pesée	$(57,17 \pm 0,23)$ kBq
Détecteur Cerenkov-gamma	$(57,22 \pm 0,07)$ kBq

Tableau 4.2.: Activité mesurée lors du test du détecteur Cerenkov-gamma avec une cellule de $^{60}\text{Co-MnSO}_4$

L'importante statistique de comptage obtenue par la mesure Cerenkov-gamma est nettement supérieure à celle obtenue avec la source de ^{60}Co , permettant ainsi de réduire sensiblement l'incertitude statistique sur la mesure. L'écart relatif entre les deux méthodes est maintenant de 0,09 % avec un écart normalisé de 0,2.

4.3. Voies de détection

A la suite du test du principe de détection par coïncidences Cerenkov-gamma, les éléments de détection présentant les caractéristiques optimales ont été choisis.

4.3.1. Voie Cerenkov

Après avoir consulté les différents fournisseurs, le photomultiplicateur R7056 de Hamamatsu a été sélectionné. Ce détecteur présente plusieurs avantages :

- une réponse spectrale adaptée au spectre Cerenkov (de 185 à 650 nm, voir figure suivante),
- des dimensions appropriées : diamètre effectif photocathode de 25 mm,
- un blindage électromagnétique permettant de réduire le bruit.

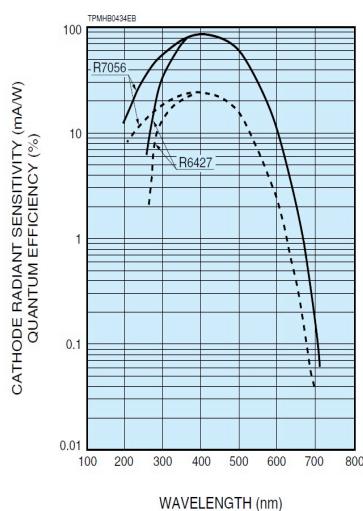


Figure 4.14.: Rendement quantique du photomultiplicateur Hamamatsu R7056

4.3.2. Voie gamma

Le détecteur NaI(Tl) 1M1/1.5 de Saint-Gobain a été sélectionné pour la voie gamma. Ce détecteur comporte un cristal cylindrique d'un pouce (25,4 mm) de diamètre et de hauteur, couplé à un photomultiplicateur Hamamatsu R2060. Le cristal NaI(Tl) présente la courbe de rendement intrinsèque suivante :

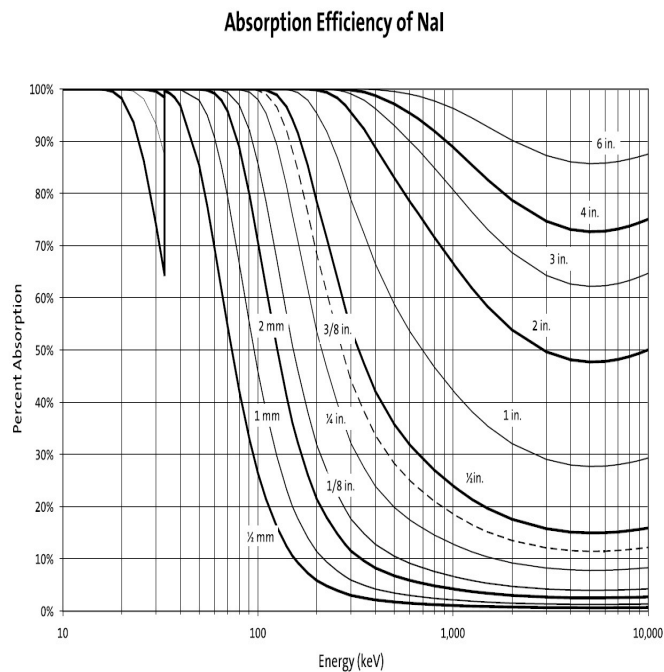


Figure 4.15.: Courbe de rendement intrinsèque du cristal NaI(Tl)

D'après la figure 4.15, un cristal d'un pouce de diamètre présente un rendement relativement bon, d'environ 45 % pour l'énergie du gamma à détecter (846 keV). Ce détecteur, robuste et de faibles dimensions permet d'installer la voie gamma au plus près de la cellule de mesure, afin d'augmenter le rendement et de diminuer l'influence des gamma provenant de l'extérieur du détecteur. Le diamètre d'un pouce représente donc un bon compromis entre rendement, géométrie et coût.

4.4. Conception mécanique

Suite aux tests ayant permis de valider le principe de la mesure d'activité du ^{56}Mn par coïncidences Cerenkov-gamma et après avoir choisi les éléments de détection, il est apparu nécessaire de développer un détecteur à la géométrie robuste et adaptée au bain de manganèse présent au LNE-LNHB. Les paragraphes suivants présentent les deux principaux éléments mécaniques qui ont été optimisés : la cellule optique de mesure et le châssis du détecteur.

4.4.1. Cellule optique

Dans un premier temps, la transmittance de la solution aqueuse de MnSO_4 (d'une concentration de 332 g.L^{-1}) a été mesurée à l'aide d'un spectrophotomètre présent au laboratoire. 10 mL de sulfate de manganèse furent prélevés de la sphère et mesurés pour des longueurs d'onde allant de 190 nm à 1090 nm. A partir des coefficients d'extinction molaire (ou absorptivité molaire) obtenus par la mesure, les valeurs de la transmittance correspondante ont été calculées, pour 4 trajets optiques différents : 1 cm, 2 cm, 3 cm, et 5 cm afin de suivre l'évolution de la transmittance en fonction du trajet optique sur l'ensemble du spectre. Pour passer du coefficient d'extinction molaire à la transmittance pour un trajet optique donné, on utilise les formules suivantes :

$$\epsilon = \frac{A}{Cd} \quad (4.16)$$

Avec ϵ le coefficient d'extinction molaire mesuré,

A l'absorbance,

C la concentration,

d le trajet optique.

Et :

$$A = -\log T \quad (4.17)$$

Avec T la transmittance.

Les valeurs obtenues sont présentées sur la Figure 4.16 :

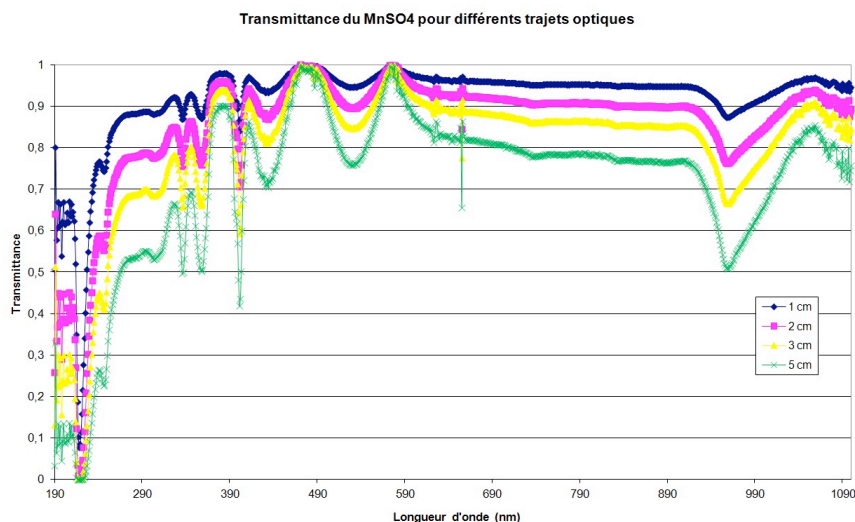


Figure 4.16.: Transmittance du MnSO_4 pour différentes trajets optiques

Compte tenu du spectre Cerenkov, une transmittance maximale pour les longueurs d'onde les plus faibles est recommandée, afin de transmettre un maximum de photons de la solution aux faces d'entrée des photomultiplicateurs. D'après la figure 4.16, la transmittance du MnSO_4 varie fortement avec le trajet optique : entre 190 nm et 215 nm, la transmittance passe d'environ 62 % à 40 % lorsque le trajet optique passe de 1 cm à 2 cm. De plus, un "creux" dans la transmittance est visible entre 215 nm et 225 nm, dû à l'absorption des photons par une liaison moléculaire avec l'oxygène. En pratique, des géométries ayant des dimensions inférieures à 2 cm sont difficilement réalisables. Une géométrie la plus petite possible a donc été choisie, permettant d'accoler deux photomultiplicateurs au plus proche de la solution activée. La géométrie de la cellule en quartz développée est présentée dans la Figure 4.17.

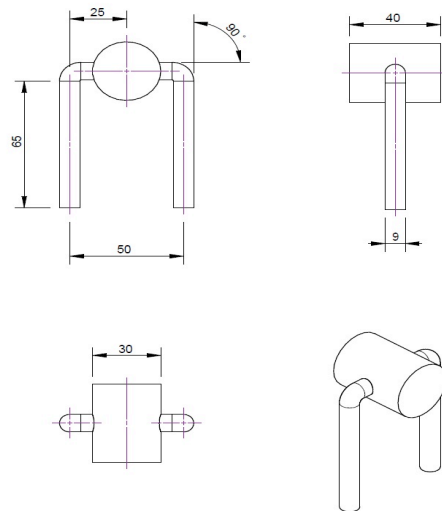


Figure 4.17.: Mise en plan de la cellule de mesure en quartz du détecteur Cerenkov-gamma

La cellule est composée de faces en quartz de 30 mm de diamètre soudées à un cylindre en quartz également (de 1 mm d'épaisseur). Deux tubulures soudées de part et d'autre du cylindre permettent la circulation de la solution activée dans la cellule. De plus, la surface cylindrique de la cellule a été peinte en blanc (peinture réfléchissante au TiO_2) afin d'assurer la réflexion des photons et d'améliorer ainsi le rendement de détection de la voie Cerenkov. La surface de peinture équivalente à une surface cylindrique pleine (sans trous de tubulure) a été calculée afin de tendre vers un rendement optimal. En effet, la perte de réflectivité induite par les tubulures peut être compensée en apposant de la peinture réfléchissante sur la partie des tubulures en contact avec le cylindre de la cellule. La Figure 4.18 illustre le calcul effectué à partir du modèle en 3 dimensions de la cellule.

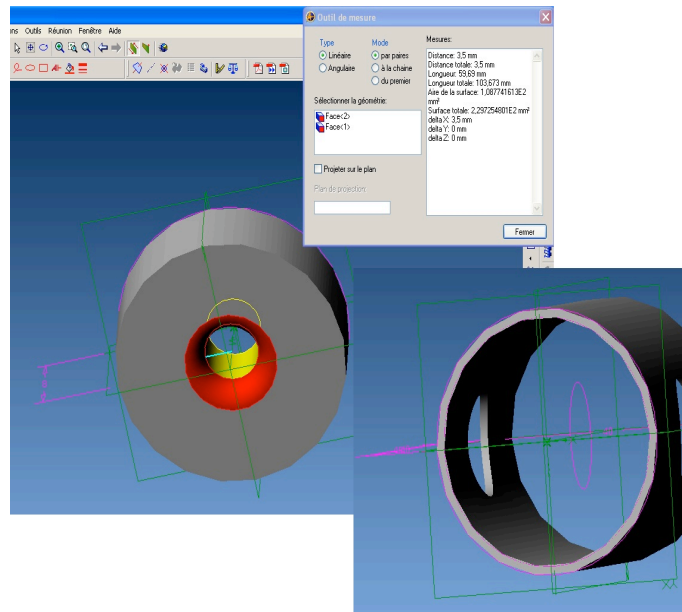


Figure 4.18.: Illustration du calcul de la surface de peinture réfléchissante

Les tubulures ont également été peintes en noir afin d'absorber les photons émis à l'intérieur de celles-ci et d'éviter ainsi leur réflexion éventuelle jusqu'aux détecteurs.



Figure 4.19.: Photo de la cellule en quartz du détecteur Cerenkov-gamma

4.4.2. Châssis

Le châssis du nouveau détecteur Cerenkov-Gamma a été développé afin d'assurer la robustesse, l'opacité et l'adéquation avec les éléments de détection : la cellule de

mesure, les photomultiplicateurs et le détecteur NaI(Tl). La géométrie conçue est présentée dans les vues en trois dimensions suivantes.

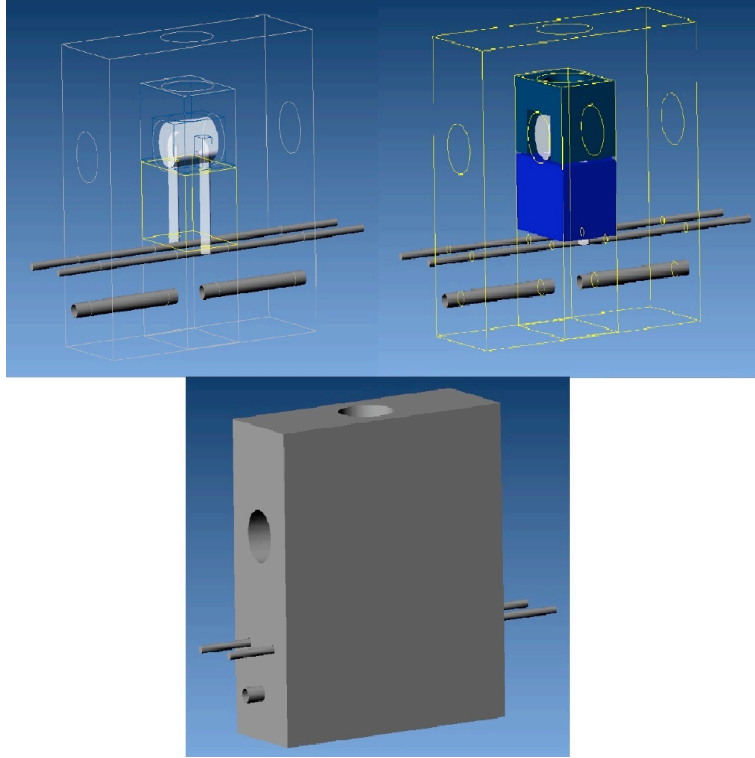


Figure 4.20.: Vues 3D intérieures et extérieures du châssis du détecteur Cerenkov-gamma

Le châssis est composé d'un pavé en aluminium de section rectangulaire et de deux pièces en plomb (en bleu sur la figure) dans lesquelles vient s'intégrer la cellule en quartz. Les deux pièces en plomb (de 7 cm de côté) ont été dimensionnées afin d'atténuer les gammas ne provenant pas de la cellule (tubulures, tuyauterie extérieure) et d'éviter ainsi leur détection au sein des deux voies Cerenkov (par effet Compton dans les éléments transparents) et gamma : elles équivalent à un blindage de 3 cm de plomb autour de la cellule. Elles comprennent également des trous de passage pour les tubulures de la cellule, les faces d'entrée des photomultiplicateurs et le cristal du détecteur NaI(Tl). Pour information, le Tableau 4.3 suivant donne le taux de transmission des gammas provenant de la désintégration du ^{56}Mn .

Energie du gamma (keV, %)	Epaisseur de plomb (cm)	Transmission
846,75 (98,9%)	1	0,387725757
	2	0,150331263
	3	0,058287303
	4	0,022599489
	5	0,008762404
1810,72 (27,2%)	1	0,5820155
	2	0,338742042
	3	0,197153119
	4	0,114746171
	5	0,06678405
2113,05 (14,3%)	1	0,598073155
	2	0,357691499
	3	0,213925683
	4	0,127943208
	5	0,076519398
2522,88 (1%)	1	0,61869949
	2	0,38278906
	3	0,236831396
	4	0,146527464
	5	0,090656467

Tableau 4.3.: Transmission des gamma du ^{56}Mn dans le plomb

Le châssis en aluminium comporte également des trous de passage correspondant aux tiges de support des pièces en plomb et aux tuyaux de circulation de la solution activée dans la cellule de mesure. La partie supérieure du châssis est dévissable afin de pouvoir accéder à la cellule optique. La liaison mécanique est réalisée par des vis sur la partie supérieure de la pièce. Un joint rectangulaire assure l'étanchéité à la lumière du dispositif. L'ensemble est placé sur une plaque support en aluminium. Le châssis est vissé sur la plaque et un joint plat rectangulaire en caoutchouc permet là aussi de réaliser l'étanchéité du système. Enfin, le détecteur Cerenkov-gamma est posé sur des pièces en caoutchouc pour atténuer les vibrations dues à la pompe de circulation et placé dans un bac de rétention à proximité immédiate de la casemate (voir photo suivante). Des briques de plomb peuvent être placées entre le détecteur et la tuyauterie extérieure afin d'atténuer le mouvement propre dû aux événements de désintégration ayant lieu à l'intérieur de celle-ci. Des vannes permettent l'isolation hydraulique du dispositif.

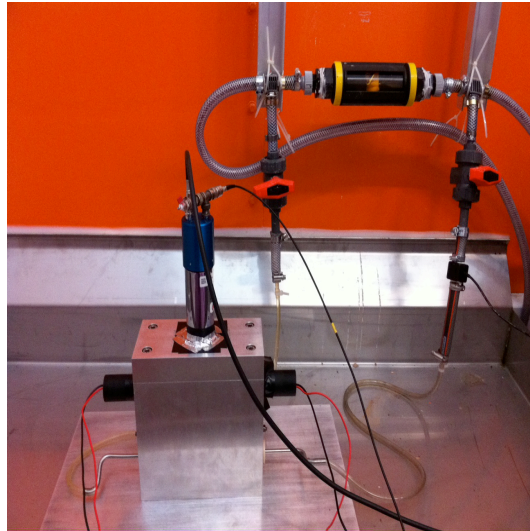


Figure 4.21.: Photo du détecteur Cerenkov-gamma en ligne

4.5. Électronique de comptage

4.5.1. Principe

Le traitement du signal issu du détecteur Cerenkov-gamma nécessite le développement d'une électronique destinée à la gestion des coïncidences et des paramètres intrinsèques à cette méthode (temps mort, temps actif, temps de résolution, etc.). Dans ce but, une chaîne électronique spécifique a été conçue. Afin d'assurer la pérennité du système de mesure primaire, et par souci de portabilité de l'électronique d'une méthode à une autre (RCTD, scintillation liquide, etc.) au sein du laboratoire, le choix de principe s'est porté sur une électronique numérique à base de FPGA (Field Programmable Gate Array) et de cartes électroniques déjà existantes sur le marché et éprouvées (voir Figure 4.22 suivante).

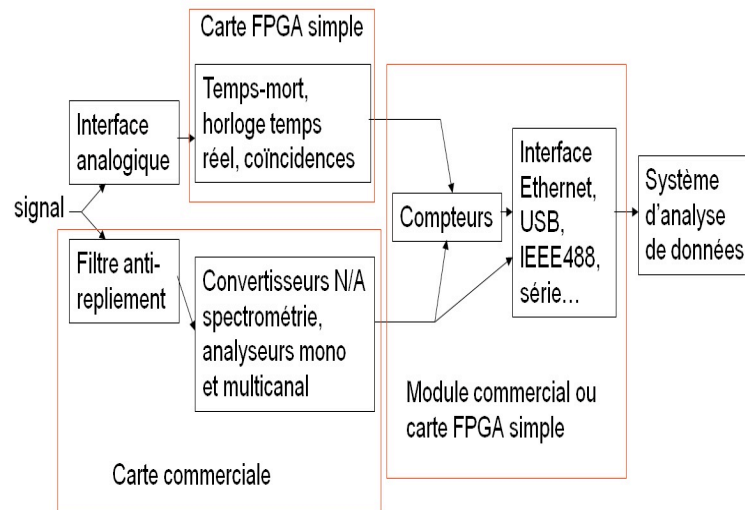


Figure 4.22.: Schéma de principe de la carte numérique développée

En effet, parmi les modules fonctionnels nécessaires à la méthode des coïncidences, seuls les paramètres temps mort, temps réel (mesure du temps actif de comptage) et coïncidences (fenêtre) n'ont pas leur équivalent numérique sur le marché. Les autres modules sont directement disponibles et ne nécessitent que peu ou pas de modifications pour être adaptés au système Cerenkov-gamma : les analyseurs multicanaux numériques pour la spectrométrie gamma sont très répandus et suffisamment fiables et robustes, et les modules numériques pouvant être programmés pour réaliser les fonctions comptage et interface avec l'ordinateur sont innombrables et très bon marché (micro-contrôleurs, cartes FPGA simples, etc.). Seule l'interface analogique, permettant d'adapter les signaux provenant des détecteurs afin qu'ils soient exploitables par les différents modules, a été conçue spécialement pour cette application. Cette adaptation demeure relativement simple et n'utilise que des composants de base et facilement remplaçables.

4.5.2. Chaîne numérique

Pour le développement de la partie gestion numérique des coïncidences, le programme de la carte FPGA sélectionnée (Digilent NEXYS 2) a été réalisé grâce au logiciel « IDE design suite » de Xilinx, version 13.3. La programmation est effectuée par un mélange de langage graphique et de modules écrits en VHDL. La philosophie retenue consiste à utiliser au maximum les bibliothèques disponibles pour les blocs les plus courants (par exemple les compteurs et les registres à décalage) et les lier grâce à l'interface graphique fournie par Xilinx. Cette approche permet de rendre le programme lisible même sans connaissance du langage VHDL.

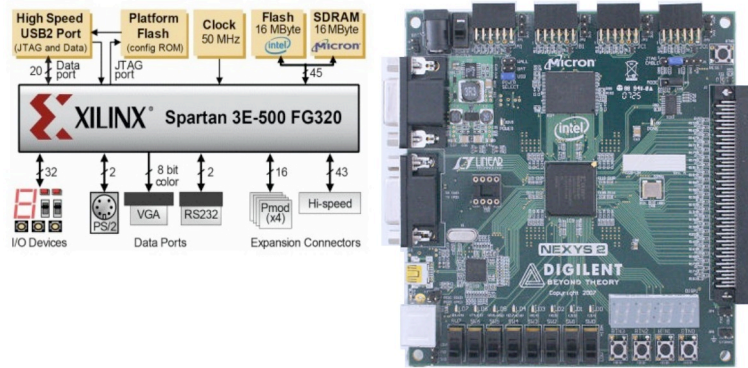


Figure 4.23.: Carte FPGA utilisée pour la gestion des coïncidences Cerenkov-gamma

La carte FPGA choisie présente l'avantage de pouvoir être programmée facilement et comporte des boutons et des ports de communication permettant l'interfaçage avec l'utilisateur. Cette carte comporte un FPGA de type Spartan3E, une horloge à quartz de 50 MHz et un grand nombre d'entrées-sorties permettant sa connexion aux voies d'acquisition de données et à la logique de commande. Des horloges secondaires, dont la fréquence est comprise entre 10 kHz et 200 MHz sont dérivées de l'horloge à 50 MHz, par l'intermédiaire de boucles à verrouillage de phase incluses dans le FPGA. Cette carte est reliée d'une part à une carte d'interface analogique-numérique simple pour le traitement des signaux issus des photomultiplicateurs et d'autre part à une carte commerciale d'analyseur de spectre comportant également des analyseurs monocanal programmables. Une carte à microcontrôleur programmable en un langage simple similaire au C est également utilisée afin de simplifier la liaison avec un ordinateur individuel et également pour jouer le rôle de machine d'états finis dans la séquence d'utilisation du FPGA. Le schéma général de cette acquisition de données apparaît en figure 4.24.

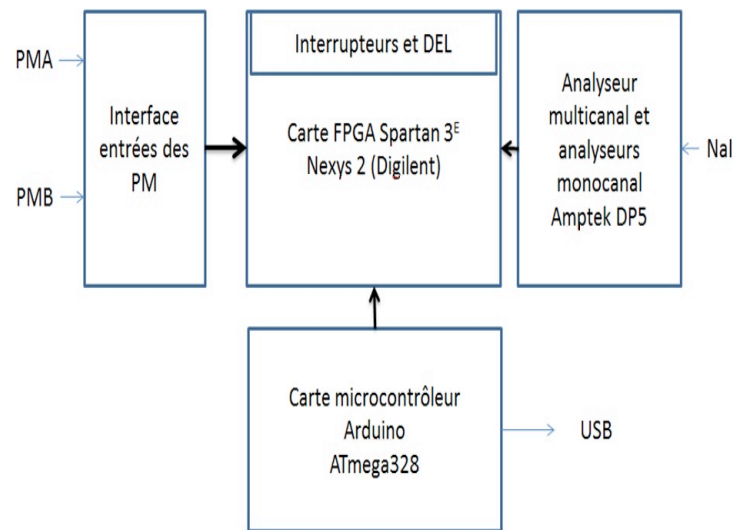


Figure 4.24.: Schéma d'interconnexion de la carte FPGA utilisée pour l'acquisition de données du détecteur Cerenkov-gamma

L'interface avec les photomultiplicateurs comporte des amplificateurs rapides d'isolement utilisant des amplificateurs opérationnels à contre-réaction de courant, reliés à des discriminateurs rapides (LT 1016). Le seuil des discriminateurs est réglable par rapport à une tension de référence. La sortie est ajustée à une tension de 3,3 V par un réseau de résistance et est reliée directement à des entrées horloge de la carte FPGA.

La carte de l'analyseur multicanal et des analyseurs monocanal est une carte Amptek DP5, à base de FPGA Spartan3E (cf figure 4.25). Cette carte est directement interfaçable avec un ordinateur via un bus USB2. Elle intègre un filtre antirepliement, un convertisseur analogique/numérique (cadencé à 80 MHz), un analyseur multicanal et 16 analyseurs monocanal dont la fenêtre est programmable. Les sorties des analyseurs monocanal sont reliées à des lignes d'entrée-sortie de la carte Nexys2.

La carte microcontrôleur est une carte commerciale à faible coût, Arduino Uno. Elle comporte un microcontrôleur ATmega 328 cadencé à 16 MHz et 16 entrée-sorties numériques qui sont reliées à la carte Nexys2 via des résistances d'adaptation de niveau. La carte comporte une interface USB permettant sa commande par un ordinateur externe. Ce microcontrôleur assure d'une part le cadencement des acquisitions et d'autre part la lecture des registres et compteurs de la carte FPGA, via des bus SPI.

L'ensemble de l'unité d'acquisition de données apparaît sur la figure 4.26.



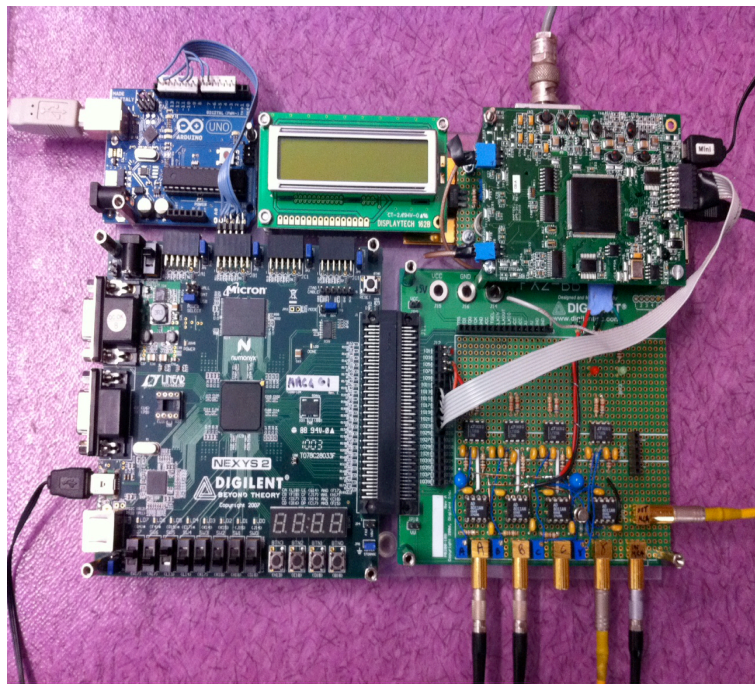


Figure 4.26.: Unité d’acquisition de données du détecteur à coïncidences Cerenkov-gamma

4.6. Test : mesure d’une source de ^{60}Co en scintillation liquide

Afin de tester la carte numérique développée, et n’ayant pas de source neutronique suffisamment intense à disposition, une source de ^{60}Co a été mesurée. La diaphonie entre les voies a été prise en compte et quantifiée à l’aide de deux méthodes indépendantes : par simulation et par mesure en utilisant la méthode de la courbe d’extrapolation. Afin de valider et de pouvoir comparer les résultats, la source de ^{60}Co a également été mesurée avec le dispositif de référence du laboratoire pour les mesures de coïncidences $4\pi\beta\text{-}\gamma$.

4.6.1. Simulation du rendement gamma dans le détecteur bêta ($\epsilon_{\beta\gamma}$)

A l’aide du code de calcul Monte-Carlo “Penelope 2008”, une simulation des interactions du rayonnement gamma émis par le ^{60}Co dans un scintillateur “Ultima Gold” (15 mL de scintillateur dans un flacon en verre de 20 mL) a été réalisée. Le code “Penelope” a été choisi pour ses capacités à simuler les interactions des rayonnements

bêta et gamma et par son utilisation en routine au laboratoire pour les simulation de scintillation liquide [79]. La figure 4.27 suivante présente la géométrie modélisée.

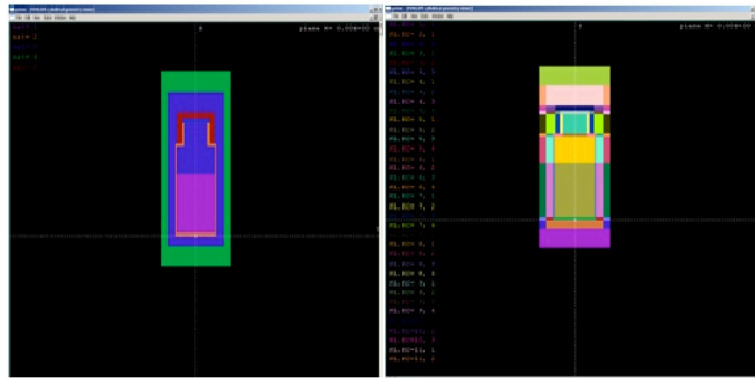


Figure 4.27.: Vue de la géométrie modélisée : matériaux (à gauche) et corps (à droite)

La modélisation comprend le flacon en verre, rempli de liquide scintillant et fermé par le bouchon en plastique, ainsi que l'air à l'intérieur et à l'extérieur du flacon. Chaque matériau est décrit précisément par sa composition et l'émission gamma primaire est restreinte au liquide scintillant. Deux simulations ont été effectuées, pour chacune des émissions gamma du ^{60}Co (1,173 MeV et 1,33 MeV). Les résultats obtenus sont présentés dans les figures suivantes.

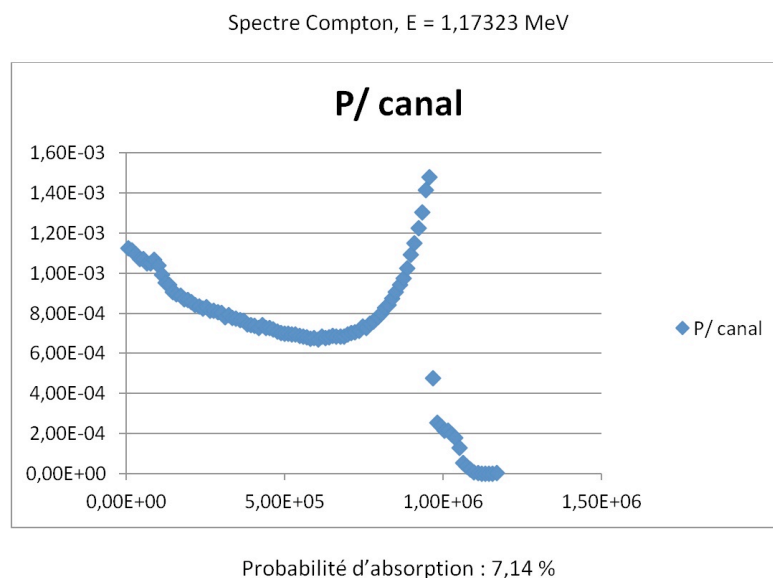


Figure 4.28.: Probabilité d'interaction Compton du gamma de 1,173 MeV du ^{60}Co : distribution de l'énergie déposée dans le liquide scintillant

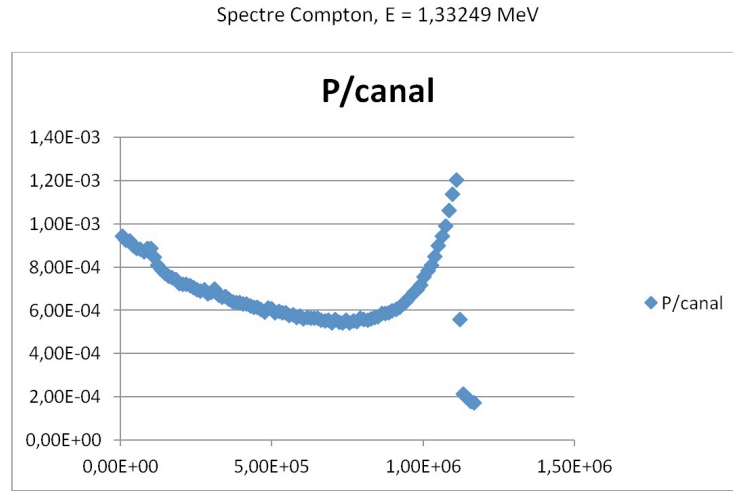


Figure 4.29.: Probabilité d'interaction Compton du gamma de 1,333 MeV du ^{60}Co

Ainsi, la probabilité d'interaction d'un seul gamma (au minimum) dans le scintilla-
teur (en négligeant la corrélation angulaire entre les deux émissions gamma) est :

$$P_i = P_{1.1} + P_{1.3}(1 - P_{1.1}) = 13,3\% \quad (4.18)$$

4.6.2. Méthode de la courbe d'extrapolation

Lorsque la méthode de la courbe d'extrapolation est appliquée, il est nécessaire de dégrader le rendement en voie bêta afin d'obtenir plusieurs points permettant d'extrapoler au cas idéal où ε_β est égal à 1. Dans le cas présent, l'activité de la source a été mesurée pour trois points de fonctionnement correspondant à trois tensions d'alimentation des photomultiplicateurs : +1500 V (tension nominale), +1400 V, et +1300 V, pour faire varier le rendement du compteur bêta. Après avoir noté le taux de comptage obtenu dans chaque voie pour les trois cas, un graphe sous Excel a permis de tracer la fonction (assumée linéaire) N_β en fonction de $(1 - N_C/N_\gamma)$ et de l'extrapoler pour $\varepsilon_\beta = 1$ afin d'obtenir l'activité en ^{60}Co , tel qu'on peut le voir sur la Figure 4.30 suivante.

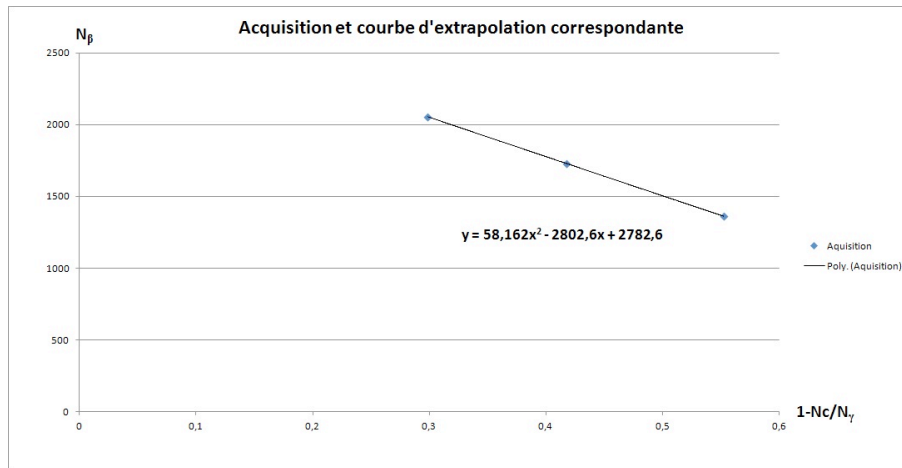


Figure 4.30.: Taux de comptage aux 3 points de fonctionnement et courbe d'extrapolation correspondante

4.6.3. Comparaison des résultats

Le Tableau 4.4 suivant présente les résultats obtenus suivant la méthode utilisée.

Méthode	Activité (k=1)
$4\pi\beta\text{-}\gamma$ (primaire)	$(2785,15 \pm 3,89) \text{ Bq}$
Simulation de $\varepsilon_{\beta\gamma}$	$(2772,18 \pm 7,21) \text{ Bq}$
Courbe d'extrapolation	$(2782,60 \pm 7,24) \text{ Bq}$

Tableau 4.4.: Comparaison des activités obtenues pour une source de ^{60}Co

Comme on peut le voir, la valeur obtenue par la méthode de la courbe d'extrapolation est compatible avec la méthode primaire avec un écart normalisé de 0,3. L'écart normalisé pour la méthode par simulation est de 1,6, ce qui indique un doute sur la compatibilité de cette méthode avec la mesure primaire. Pour information, la valeur du $\varepsilon_{\beta\gamma}$ dans le cas de la courbe d'extrapolation est de 12,37 % après calcul. On peut donc en déduire que le doute sur la compatibilité de la méthode par simulation du $\varepsilon_{\beta\gamma}$ est certainement due aux approximations liées à la modélisation.

Toutefois, les rendements en voie bêta obtenus dans le cas présent (de l'ordre de 74% pour la tension nominale) "facilitent" l'extrapolation, tout comme les forts taux de comptages réduisent fortement les incertitudes statistiques par rapport à ce qui serait obtenu pour la mesure de ^{56}Mn .

Ces résultats confortent la fiabilité de la carte numérique développée, qui constitue ainsi un moyen stable et pérenne en adéquation avec la méthode des coïncidences Cerenkov-gamma pour laquelle elle a été conçue. Cependant, il est important de noter que les activités qui devront être mesurées en situation réelle (^{56}Mn activé

par capture neutronique) peuvent s'étendre de quelques becquerels à quelques kilobecquerels par gramme et il est nécessaire, à terme, de valider la méthode sur toute la gamme.

5. Application à la méthode du bain de manganèse

5.1. Source AmBe

Le premier étalonnage réalisé lors de cette thèse a été effectué en février 2012 pour une source de AmBe de type “N20” reçue directement après sa fabrication. Deux méthodes ont alors été appliquées : la méthode des coïncidences Cerenkov-Gamma pour la mesure de l’activité en ^{56}Mn , et la méthode par comptage gamma, préalablement étalonnée par une source de référence disponible au laboratoire.

5.1.1. Mesures de la densité et de la concentration du MnSO_4

Avant le calcul du rendement du bain et la mesure de l’activité en ^{56}Mn de la solution, plusieurs mesures préliminaires ont été réalisées.

La mesure de la densité de la solution a été réalisée grâce à un densitomètre présent au laboratoire. Après rinçage et étalonnage du densitomètre par mesure de la densité de l’eau, la densité de la solution aqueuse de MnSO_4 présente dans la sphère est de $1,277 \pm 0,001$.

La concentration de la solution a également été mesurée. Un échantillon de solution de sulfate de manganèse prélevé dans la sphère puis pesé a été chauffé à 300°C pendant plusieurs heures puis pesé une nouvelle fois. Il en résulte une concentration de $(332 \pm 0,02) \text{ g.L}^{-1}$, d’où une concentration molaire de $(1,934 \pm 0,002) \text{ mol.L}^{-1}$. D’après les pesées, et en prenant en compte les masses molaires données dans la littérature, la pesée après déshydratation totale de l’échantillon confirme le fait que le sulfate de manganèse se trouve sous la forme “mono-hydraté”. Pour information, la limite de solubilité du sulfate de manganèse mono-hydraté est de $(393 \pm 0,01) \text{ g.L}^{-1}$.

5.1.2. Mesures des masses de solution dans le système

La pesée de la masse totale de solution à l’intérieur de la sphère a été réalisée lors du remplissage de celle-ci. Cette pesée fut effectuée à l’aide d’une balance préalablement

étalonnée. Chaque récipient de transfert a été pesé avant et après versement de son contenu dans la sphère, il en résulte une masse de $(629,95 \pm 0,63)\text{kg}$ à $k=1$.

La mesure par le détecteur Cerenkov-gamma développé donne l'activité en ^{56}Mn dans la cellule en quartz. Cette activité correspond cependant à une masse très faible par rapport aux $(629,95 \pm 0,63)\text{kg}$ de solution dans le système. Il est donc nécessaire de déterminer la masse de solution dont les désintégrations de ^{56}Mn sont détectées. Compte tenu de la géométrie de la cellule, comprenant les tubulures permettant la circulation du liquide, il est très difficile de déterminer avec précision le volume (et donc la masse) réellement "détecté" par les photomultiplicateurs. En effet, malgré la peinture réflectrice apposée à la surface externe de la cellule, l'absorption des milieux traversés par les photons (liquide et quartz) ainsi que l'effet de "guide de lumière" créé par les tubulures influe sur le volume effectif de détection.

La mesure de la masse de solution dans la cellule de mesure a été effectuée selon deux méthodes : par pesée directe d'un volume équivalent de solution inactive, et par mesure par le détecteur Cerenkov-gamma d'une solution de liquide scintillant à laquelle on a ajouté une quantité connue de ^{241}Am introduite dans la cellule en quartz. Afin de déterminer l'activité massique de la solution réalisée pour cette dernière méthode, la solution a également été mesurée par un spectromètre à scintillation liquide de type "WALLAC" disponible et utilisé en routine au laboratoire.

Pour la première méthode, on trouve, après pesées successives de la cellule vide puis remplie de MnSO_4 inactif, une masse de $(19,900 \pm 0,001)\text{ g}$ de solution. La cellule a été remplie jusqu'à l'interface entre la peinture réfléchissante blanche et la peinture absorbante noire (voir figure 4.19). Cette méthode est sujette à caution car le niveau de liquide est relativement approximatif et ne correspond pas forcément au volume effectif, compte tenu de l'absorption et de la transmission des photons dans le système. On estime que l'incertitude sur ces phénomènes induit une incertitude de 5 % sur la masse.

Pour la deuxième méthode, la solution mesurée a consisté en l'ajout de $(100 \pm 1)\text{ mg}$ d'une solution mère de ^{241}Am dans $(50,000 \pm 0,001)\text{ ml}$ de liquide scintillant de type "Ultima Gold AB", $(9,8258 \pm 0,0014)\text{ g}$ de cette solution ont été introduits dans un flacon de scintillation liquide en verre et $(19,559 \pm 0,001)\text{ g}$ dans la cellule de mesure (totalement remplie, tubes compris). La mesure du flacon par le WALLAC donne une activité de $(1187,77 \pm 0,23)\text{ Bq}$, soit une activité massique de $(120,88 \pm 0,23)\text{ Bq.g}^{-1}$. Le comptage de la cellule de mesure donne un taux de coïncidences entre les photomultiplicateurs de $(2351,61 \pm 0,46)\text{ s}^{-1}$, considéré comme l'activité totale dans la cellule compte tenu du rendement de scintillation très proche de 100%. A partir de ces mesures, deux calculs sont nécessaires afin d'obtenir la masse effective de solution : déterminer la masse de solution dans les tubes afin de la soustraire à la masse totale dans la cellule, et convertir le volume mesuré d' ^{241}Am + UG-AB en celui correspondant au MnSO_4 , les masses volumiques de ces deux solutions étant différentes.

Après mesure précise des dimensions de la cellule, le volume dans un tube est de

$(0,8796 \pm 0,0014) \text{ cm}^3$, soit $(0,845 \pm 0,001) \text{ g}$ de liquide scintillant ayant une masse volumique de $0,96 \text{ g.cm}^{-3}$ (donnée fournisseur). La transmission dans la solution de MnSO_4 mesurée au chapitre 4 (voir figure 4.16) permet d'approximer la transmission à 50 % sur le volume total dans les tubes.

En soustrayant la masse de liquide dans les tubes à la masse totale dans la cellule, on obtient $(18,605 \pm 0,001) \text{ g}$ de $^{241}\text{Am} + \text{UG-AB}$ mesuré dans la cellule. Enfin, cette masse correspond à $(24,613 \pm 0,001) \text{ g}$ de MnSO_4 pour la densité mesurée au paragraphe 5.1.1 .

Ces deux méthodes n'étant pas compatibles, la valeur donnée par pesée a été choisie arbitrairement pour les calculs suivants.

5.1.3. Modélisation et simulation

La modélisation du système comprenant la source à étalonner a été réalisée grâce aux dimensions de la source fournies par le constructeur. Le schéma ci-dessous présente ces caractéristiques.

SCHEMA DE LA NOUVELLE CAPSULE N20

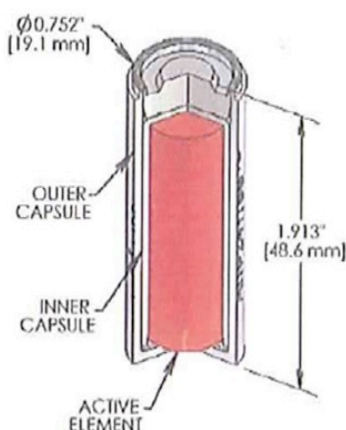


Figure 5.1.: Caractéristiques de la source AmBe étalonée

Le modèle développé sous MCNPX et décrit au chapitre 4, a donc été modifié pour inclure la source AmBe de type N20. Une source volumique isotrope (spectre ISO8529-1 de AmBe) a également été choisie, et la bibliothèque de sections efficaces ENDFBVII.0 a été conservée. Les paramètres expérimentaux mesurés au paragraphe 5.1.1 ont été incorporés au modèle. Les résultats pour une simulation de 10^8 neutrons sources sont présentés dans le Tableau 5.1 ci-dessous. Ils sont directement donnés par les indicateurs ("Tallies") décrit dans le fichier source présenté en annexe B).

Facteur	Probabilité d'interaction	Incertitude type statistique à k=1
Capture dans l'enveloppe de la source	0,49 %	0,1 %
Capture dans les élingues	0,022 %	0,7 %
Fission dans l'américium	0,03 %	0,6 %
Capture dans AmO ₂ Be	0,55 %	0,1 %
C _H = Capture sur l'hydrogène	51,6 %	0,01 %
C _O = Capture totale sur l'oxygène	1,67 %	0,08 %
Capture (n,γ) sur l'oxygène	0,017 %	0,6 %
Capture (n,α) sur l'oxygène	1,65 %	0,08 %
C _S = Capture totale sur le soufre	2,19 %	0,07 %
Capture (n,γ) sur le soufre	1,64 %	0,08 %
Capture (n,p) sur le soufre	0,279 %	0,19 %
Capture (n,α) sur le soufre	0,29 %	0,19 %
C _{Mn} = Capture sur le manganèse	43,22 %	0,02 %
C _{MnSO} = C _{Mn} + C _H + C _S + C _O = Capture totale dans MnSO ₄	98,68 %	0,01 %
Capture dans l'acier inoxydable	0,51 %	0,14 %
Capture dans PMMA	0,15 %	0,26 %
[L] = Fuite en dehors de la sphère	2,16 %	0,07 %
[S] = capture dans la source	1,21 %	0,76 %
[O] = capture sur O et S autre que (n,γ)	2,21 %	0,28 %
f = C _{Mn} / C _{MnSO}	43,80 %	0,28 %
f(1-δ) = f(1- [L] - [S] - [O]) "rendement du bain"	42,299 %	0,28 %

Tableau 5.1.: Résultats de la simulation du bain de manganèse pour la source AmBe N20

Afin de déterminer l'incertitude sur le facteur correctif "global", $f(1-\delta)$, on prend en compte les différences obtenues sur les taux de capture au paragraphe 3.3.1 pour les codes MCNPX et FLUKA, GEANT4 étant exclu aux vues des anomalies constatées. En se référant au paragraphe 6.4.2 du "Guide to the expression of uncertainty

in measurement”, n’ayant comme unique informations que les valeurs données par FLUKA et MCNPX, et d’après le principe d’entropie maximum [80], on calcule l’écart-type par la formule :

$$\sigma = \sqrt{\frac{(b-a)^2}{12}} \quad (5.1)$$

avec σ l’écart-type,

a et b les minimum et maximum constatés.

Le facteur correctif “global” $f(1-\delta)$ à utiliser dans la formule reliant l’émission neutronique à l’activité mesurée est donc de $(42,30 \pm 0,22) \%$ pour la source considérée.

5.1.4. Mesure de l’activité en ^{56}Mn

La mesure de l’activité en ligne par le détecteur Cerenkov-gamma s’est déroulée en trois étapes :

- mesure du bruit de fond du détecteur, en circulation, solution non activée,
- mesure de la solution activée après saturation du bain,
- calcul de l’activité massique correspondante par la méthode de la courbe d’extrapolation.

Les taux de comptage obtenus (et leurs incertitudes statistiques correspondantes) lors des mesures sont présentés dans le Tableau 5.2 suivant.

Mesure	Voie Cerenkov	Voie gamma	Coïncidences
Mouvement propre	$(0,65 \pm 0,02) \text{ s}^{-1}$	$(0,16 \pm 0,05) \text{ s}^{-1}$	0
Solution activée	$(48,300 \pm 0,002) \text{ s}^{-1}$	$(1,54 \pm 0,01) \text{ s}^{-1}$	$(0,197 \pm 0,011) \text{ s}^{-1}$

Tableau 5.2.: Taux de comptage en coups par seconde obtenus lors des mesures par coïncidence Cerenkov-gamma et incertitude type associée

Comme pour la caractérisation du détecteur décrite au paragraphe 4.6.2. la méthode de la courbe d’extrapolation a été appliquée en utilisant 3 points de fonctionnement correspondant aux tensions d’alimentation des photomultiplicateurs +1500 V, +1400 V et +1300 V. On obtient alors le graphe suivant :

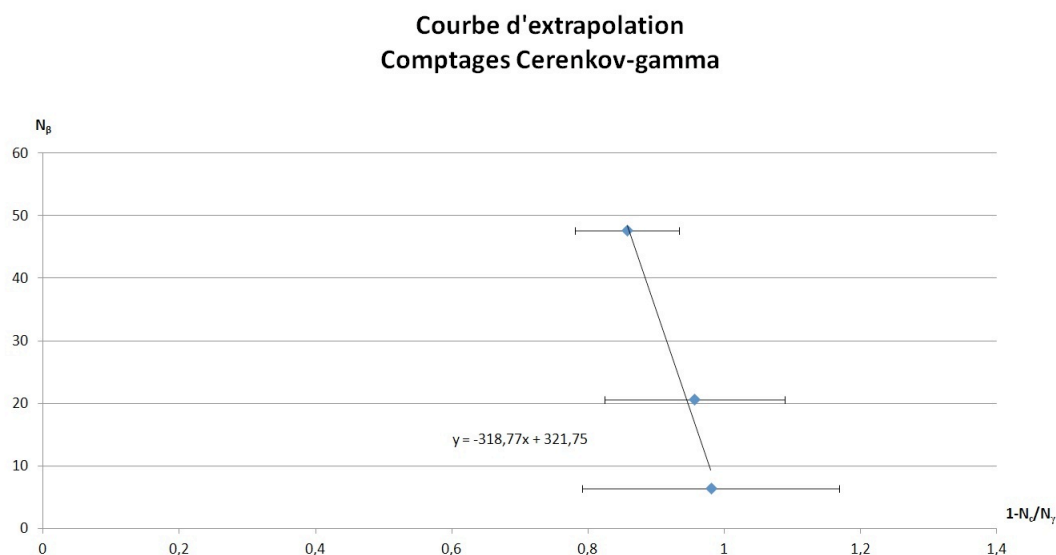


Figure 5.2.: Courbe d'extrapolation pour les comptages Cerenkov-gamma obtenus pour la source AmBe

L'ordonnée à l'origine de l'équation obtenue (affichée sous la droite en figure 5.2), correspondant à l'activité mesurée dans la cellule en quartz, est de $(321,75 \pm 3,96)$ Bq avec un coefficient de corrélation de 0,975.

En divisant cette valeur par la masse effective de solution mesurée déterminée au paragraphe 5.1.2 par pesée, on obtient une activité massique de $(16,14 \pm 0,81)$ Bq.g⁻¹ (à $k=1$, incertitude sur la masse mesurée).

Cependant, au vu des incertitudes sur le rendement en voie bêta dues aux trop faibles taux de comptage, il est impossible de donner une valeur d'activité avec une incertitude inférieure à 1 % par cette méthode dans le cas présent. Afin d'étalonner la source neutronique, la méthode par comptage gamma (détecteur NaI(Tl) plongé dans un container de type "Marinelli") a donc également été effectuée.

5.1.5. Mesure par comptage gamma avec une source de référence

Une source de ²⁴¹AmBe de référence (étalonnée par la méthode du bain de manganèse) disponible au laboratoire (numéro CEA517) a été introduite dans le bain et le taux de comptage gamma aux conditions d'équilibre a été mesuré, après avoir effectué la même mesure pour la source neutronique à étalonner. Le tableau suivant donne les résultats obtenus :

Source mesurée et débit d'émission	Taux de comptage gamma et incertitude type associée
Source de référence $(2,215.10^5 \pm 0,033) \text{ s}^{-1}$	$(14,060 \pm 0,003) \text{ s}^{-1}$
Source à étalonner	$(1472,27 \pm 0,44) \text{ s}^{-1}$

Tableau 5.3.: Taux de comptage en coups par seconde obtenus lors des mesures par comptage gamma et incertitude type associée

Pour chaque source, le mouvement propre obtenu avec une solution non activée est systématiquement déduit des mesures.

5.1.6. Calcul de l'émission neutronique

L'émission neutronique de la source AmBe à étalonner est calculée à partir de l'équation 5.1 .

$$B = \frac{A_m M}{f(1 - \sigma)} \quad (5.2)$$

avec, pour la méthode Cerenkov-gamma :

- $A_m = (16,14 \pm 0,81) \text{ Bq.g}^{-1}$ (avec la masse de solution mesurée par pesée au paragraphe 5.1.2),
 - $M = (629,95 \pm 0,63) \text{ kg}$,
 - et $f(1 - \sigma) = (42,30 \pm 0,22) \%$ (facteurs correctifs donnés au paragraphe 5.1.3).
- Ce qui donne, d'après l'équation précédente, $B = (2,46 \cdot 10^7 \pm 0,12 \cdot 10^7) \text{ (k=1) neutrons par seconde sous } 4\pi \text{ sr}$.

Pour la méthode dite "Marinelli" de comptage gamma, on obtient un débit d'émission de la source neutronique à étalonner de $B = (2,32 \cdot 10^7 \pm 0,04 \cdot 10^7) \text{ (k=1) neutrons par seconde sous } 4\pi \text{ sr}$. Avec un écart normalisé de 1,1, et aux incertitudes près, les deux méthodes sont donc compatibles.

Cependant, afin de réduire les incertitudes notamment sur la masse de solution dans la cellule de mesure par coïncidences Cerenkov-gamma, un exercice de comparaison des résultats obtenus par les deux méthodes a été effectué et est présenté au paragraphe 5.2.

5.1.7. Mesure de l'anisotropie par la méthode du cône d'ombre

La mesure de l'anisotropie de la source a été réalisée suivant la méthode du cône d'ombre décrite au paragraphe 2.4. Lors des mesures, la source est placée dans l'air

sur un support rotatif et le flux relatif est mesuré dans un angle solide d'environ 7.10^{-2}sr avec un long compteur contenant du BF_3 , visible sur la photographie suivante.



Figure 5.3.: Photographie de l'ensemble de mesure de l'anisotropie par la méthode du cône d'ombre

La mesure a été effectuée en faisant tourner la source par pas de 18 degrés autour d'un axe vertical et perpendiculaire à son axe de symétrie. Le facteur d'anisotropie est exprimé comme le rapport du débit de fluence mesuré pour un angle donné sur la moyenne des débits de fluence mesurés sur l'ensemble des 11 angles de mesure. Les résultats apparaissent sur le Tableau 5.4 et sont résumés graphiquement sur la Figure 5.4, Les repères géométriques apparaissent sur la Figure 5.5. Le facteur d'anisotropie à 90 degrés est de $(1,079 \pm 0,022)$. Après mesure de la source placée verticalement sur le support, il apparaît que celle-ci ne présente pas d'anisotropie d'émission significative par rotation autour de son axe de symétrie.

Angle en degrés par rapport à l'axe de symétrie de la source	Facteur d'anisotropie et incertitude absolue (k=1)
0	(0,892±0,018)
18	(0,970±0,020)
36	(1,014±0,021)
54	(1,064±0,022)
72	(1,047±0,021)
90	(1,079±0,022)
108	(1,052±0,021)
216	(1,056±0,022)
144	(1,020±0,021)
162	(0,977±0,020)
180	(0,923±0,019)

Tableau 5.4.: Facteur d'anisotropie de la source neutron. Rapport du débit de fluence mesuré pour un angle donné à la moyenne des débits de fluence mesurés sur l'ensemble des 11 angles de mesure

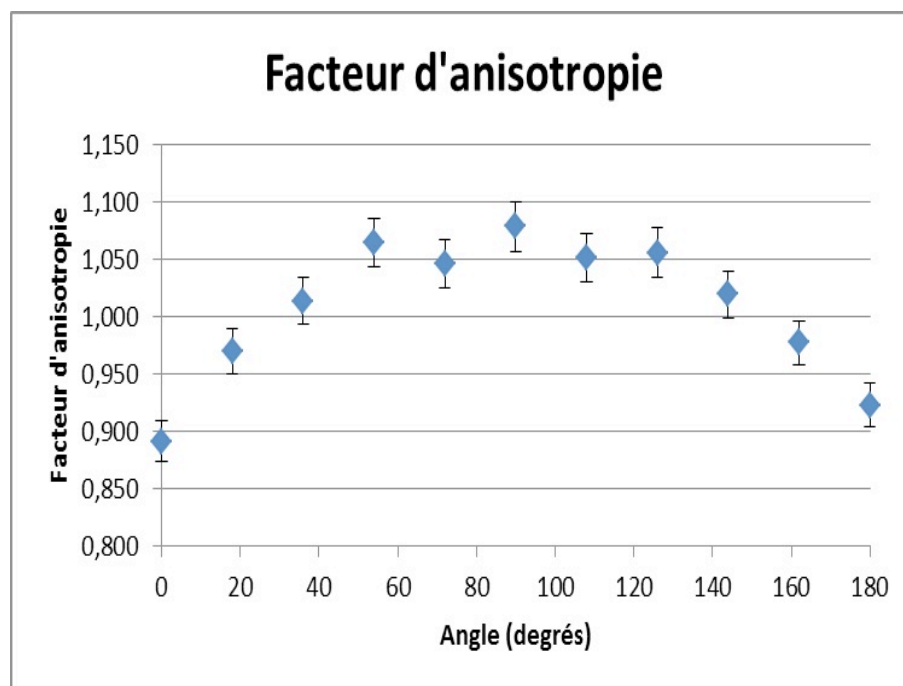


Figure 5.4.: Facteur d'anisotropie de la source de neutrons. Rapport du débit de fluence mesuré pour un angle donné à la moyenne des débits de fluence mesurés sur l'ensemble des 11 angles de mesure

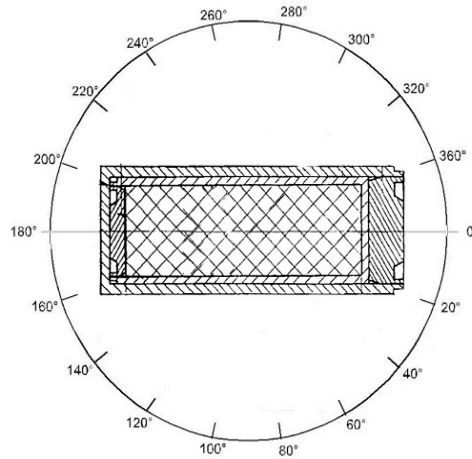


Figure 5.5.: Géométrie du système de mesure de l'anisotropie de la source

5.2. Activation de manganèse en réacteur

Afin de réduire les incertitudes obtenues par la méthode Cerenkov-gamma et d'étalonner le détecteur gamma (méthode "Marinelli"), une activation de manganèse en réacteur a été organisée et a eu lieu le 20 juin 2012.

5.2.1. Schéma de l'exercice

Le schéma global de l'exercice tel qu'initialement prévu est présenté dans la figure suivante :

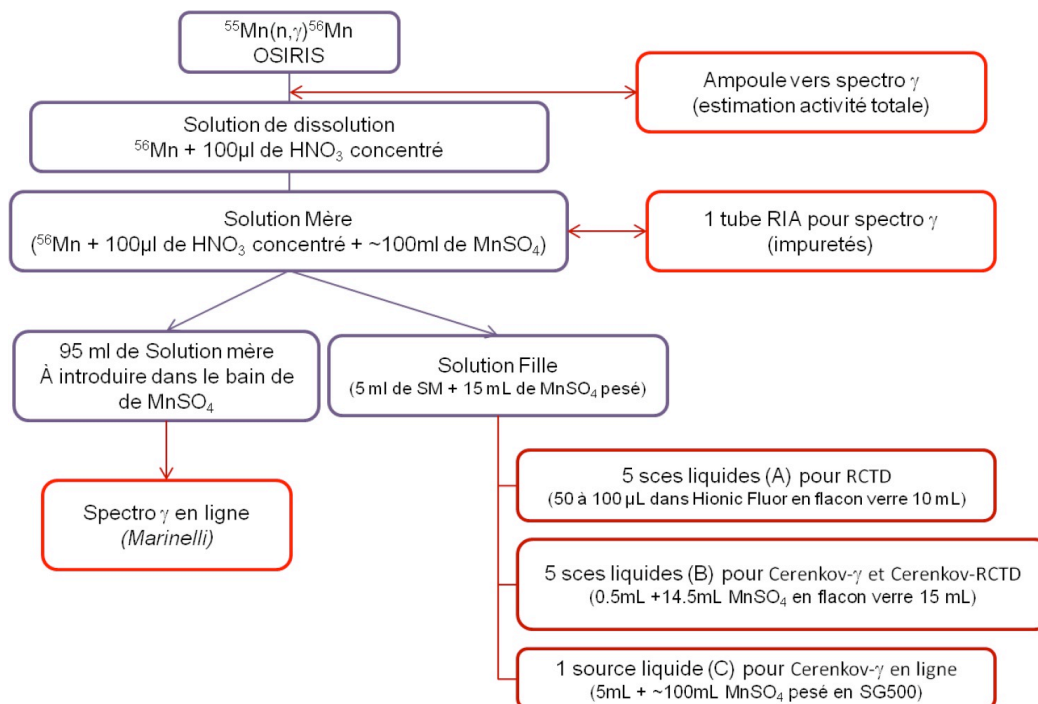


Figure 5.6.: Schéma global de l'exercice ^{56}Mn

La cible à irradier est constituée d'une ampoule de silice contenant un grain de manganèse métal (grain de 1,4 mg) insérée dans une double enveloppe d'aluminium. Un test d'étanchéité a été réalisé sous vide et en pression avant livraison au service chargé de l'irradiation au sein du réacteur OSIRIS (DRSN/SEROS). L'irradiation a eu lieu de 16 h à 18 h le 19 juin 2012 pour une livraison de l'échantillon au laboratoire le 20 juin 2012 à 15h30.

Dès réception de l'échantillon, l'ampoule en silice a été transmise au pôle spectrométrie gamma afin de déterminer rapidement un ordre de grandeur de l'activité totale de l'échantillon et d'ajuster en conséquence les dilutions à effectuer. Ainsi, un comptage de 15 minutes donna une activité de $(50,5 \pm 2,5)$ MBq à 12 h TU sur le grain de manganèse irradié.

L'ampoule a ensuite été brisée afin d'en extraire le grain actif. Ce dernier a ensuite été dissout dans 100 μl d'acide nitrique concentré, auxquels 100 ml de solution aqueuse de sulfate de manganèse ont été rajoutés afin de constituer une solution mère de forte activité. Cette dernière solution a ensuite été diluée selon les spécifications précisées dans la Figure 5.6. Le reliquat de solution mère a été versé dans le bain de manganèse pour mesure en spectrométrie gamma en ligne par le biais du détecteur plongé dans le récipient de type "Marinelli".

Trois méthodes de mesures d'activité ont ainsi été utilisées pour mesurer une solution issue de la même solution mère : la méthode Cerenkov-gamma en ligne, la méthode RCTD (rapport des coïncidences triples à doubles, méthode primaire), et la méthode Cerenkov-gamma hors ligne (méthode primaire également). Cependant, la décroissance rapide de l'activité de la solution n'a pas permis de réaliser les mesures par la méthode RCTD-Cerenkov disponible par ailleurs au laboratoire. Toutes les valeurs données ci-après sont corrigées de la décroissance de l'activité et ramenées à la date de référence (le 20 juin 2012 à 12 h, Temps Universel).

5.2.2. Mesure de l'activité

Pour la méthode RCTD primaire, la moyenne sur les 5 sources issues de la solution fille donne une activité de $(93,82 \pm 0,47) \text{ Bq.g}^{-1}$ à 12 h TU. Il est à noter que les sources sont constituées de solution de sulfate de manganèse activé (solution fille, environ 50 μl) diluée dans un liquide scintillant de type "Hionic Fluor".

Pour la méthode Cerenkov-gamma hors ligne, deux sources (sur cinq prévues initialement) constituées d'un échantillon de solution fille dilué ont été mesurées. Comme pour la méthode Cerenkov-gamma en ligne, la méthode de la courbe d'extrapolation a été utilisée afin d'obtenir une valeur de l'activité de la source mesurée. Deux séries d'extrapolation ont été réalisées pour deux "fenêtres" gamma différentes : une fenêtre "large", comprenant les émissions gamma les plus intenses (846 keV, 1810 keV et 2113 keV) et le front Compton, et une fenêtre "moyenne", ne prenant en compte que l'émission de 846 keV et le front Compton qui la précède sur le spectre. Ces deux "fenêtres" sont présentées sur la figure suivante.

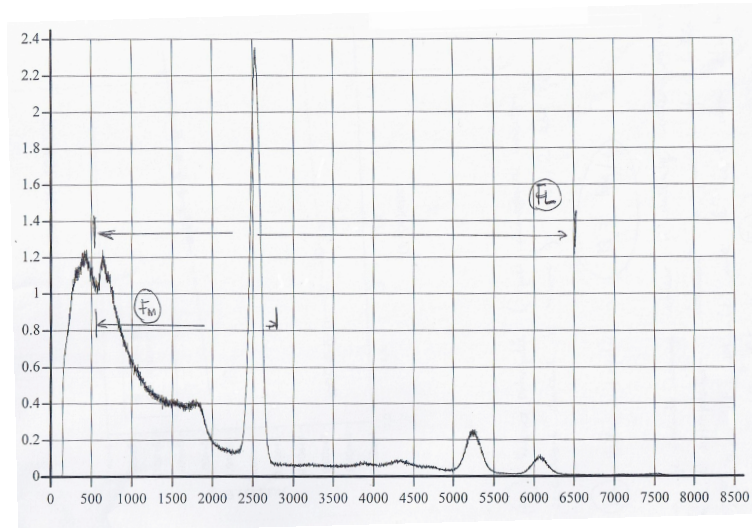


Figure 5.7.: Fenêtres gamma large (F_L) et moyenne (F_M) utilisée pour la méthode de la courbe d'extrapolation appliquée aux coïncidences Cerenkov-gamma hors ligne

Les rendements obtenus en voie Cerenkov sont d'environ 45 % aux conditions nominales de fonctionnement. Pour chacune des fenêtres gamma, une extrapolation linéaire a été effectuée, et est présentée dans la figure suivante.

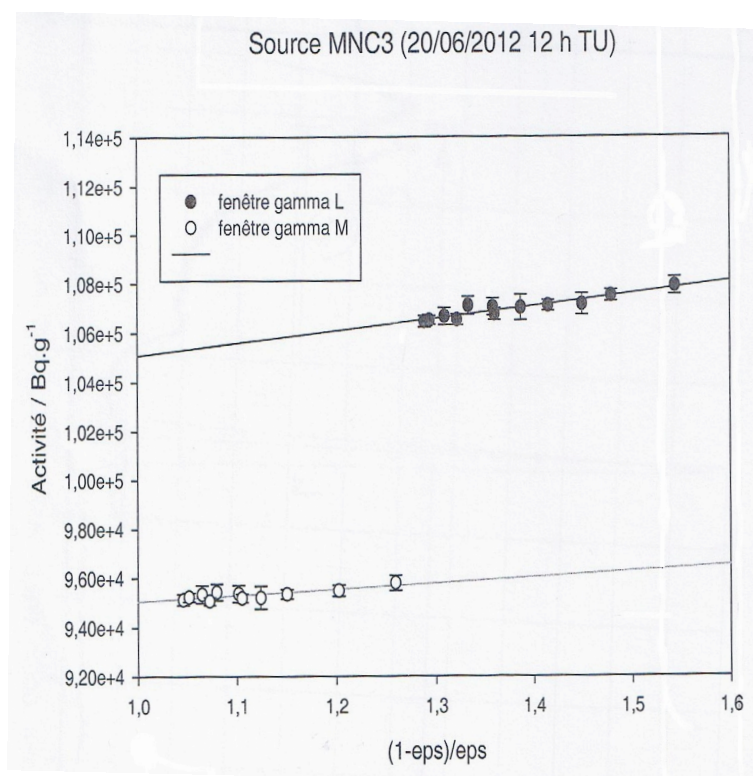


Figure 5.8.: Courbes d'extrapolations obtenues pour la méthode des coïncidences Cerenkov-gamma hors-ligne

Par extrapolation, les valeurs d'activité massique sont les suivantes :

- $(101,1 \pm 1) \text{ kBq.g}^{-1}$ ($k=1$) pour la fenêtre large,
- $(93,7 \pm 0,9) \text{ kBq.g}^{-1}$ ($k=1$) pour la fenêtre moyenne,

L'écart normalisé est ici de 5,5. La valeur obtenue avec l'extrapolation donnant la pente la plus faible est retenue (celle qui introduit donc le moins de biais sur le $\varepsilon_{\beta\gamma}$), soit pour la fenêtre gamma comprenant le pic de 846 keV et le front Compton, l'incertitude étant estimée par l'écart entre cette valeur et la valeur extrapolée (pour la fenêtre large). Une activité massique de $(93,7 \pm 7,5) \text{ kBq.g}^{-1}$ est ainsi obtenue à la date du 20 juin 2012 à 12 h TU.

Avec un écart normalisé de 0,2, les valeurs d'activités massiques obtenues par les deux méthodes primaires sont donc en accord. Cependant, il existe une forte incertitude quant à l'extrapolation à effectuer dans le cas des coïncidences Cerenkov-gamma hors-ligne. En effet, compte tenu de l'incertitude sur la forme de la courbe de rendement entre le rendement maximum obtenu par mesure (environ 45 %) et le rendement de 100 % pour lequel la valeur d'activité par extrapolation est obtenue, est importante.

En parallèle de ces mesures effectuées par les méthodes primaires, une partie de la solution fille a également été mesurée par le détecteur Cerenkov-gamma en ligne. La figure suivante présente l'installation utilisée dans ce cas.



Figure 5.9.: Installation utilisée lors de l'exercice ^{56}Mn pour la mesure par coïncidences Cerenkov-gamma en ligne

La source est placée au centre d'un château en plomb (cylindre bleu marine, figure 5.9). La circulation de la solution activée est réalisée par une pompe péristaltique (au centre de la photo) aspirant le liquide de la source dans le détecteur. La solution retourne directement dans le récipient source après son passage dans la cellule de mesure.

L'usage de la pompe péristaltique, comprenant une alimentation à découpage (et nécessaire pour faire circuler le liquide actif dans le détecteur), introduit des perturbations électromagnétiques captées par les photomultiplicateurs. Afin de réduire ce "bruit", les seuils des discriminateurs des signaux sortant des photomultiplicateurs ont été relevés à 40 mV (pour 20 mV initialement).

La méthode de la courbe d'extrapolation a donc été appliquée (en diminuant successivement la tension d'alimentation des photomultiplicateurs) afin d'obtenir une valeur d'activité. Malheureusement, la courte période du ^{56}Mn ne permet de réaliser que 4 points, pour les tensions d'alimentation 1500 V (tension nominale), 1400 V, 1300 V et 1200 V. Les points obtenus sont présentés dans le graphique suivant (figure 5.10). Il est à noter que pour pouvoir tracer ce graphe, tous les taux de comptages ont été ramenés à la date de référence. Le mouvement propre dans chaque voie a également été déduit pour chaque point.

Les fortes incertitudes pour le rendement en voie bêta ($1-N_C/N_g$) sont dues au faible taux de comptage en coïncidences, lui même dû au faible taux de comptage en voie

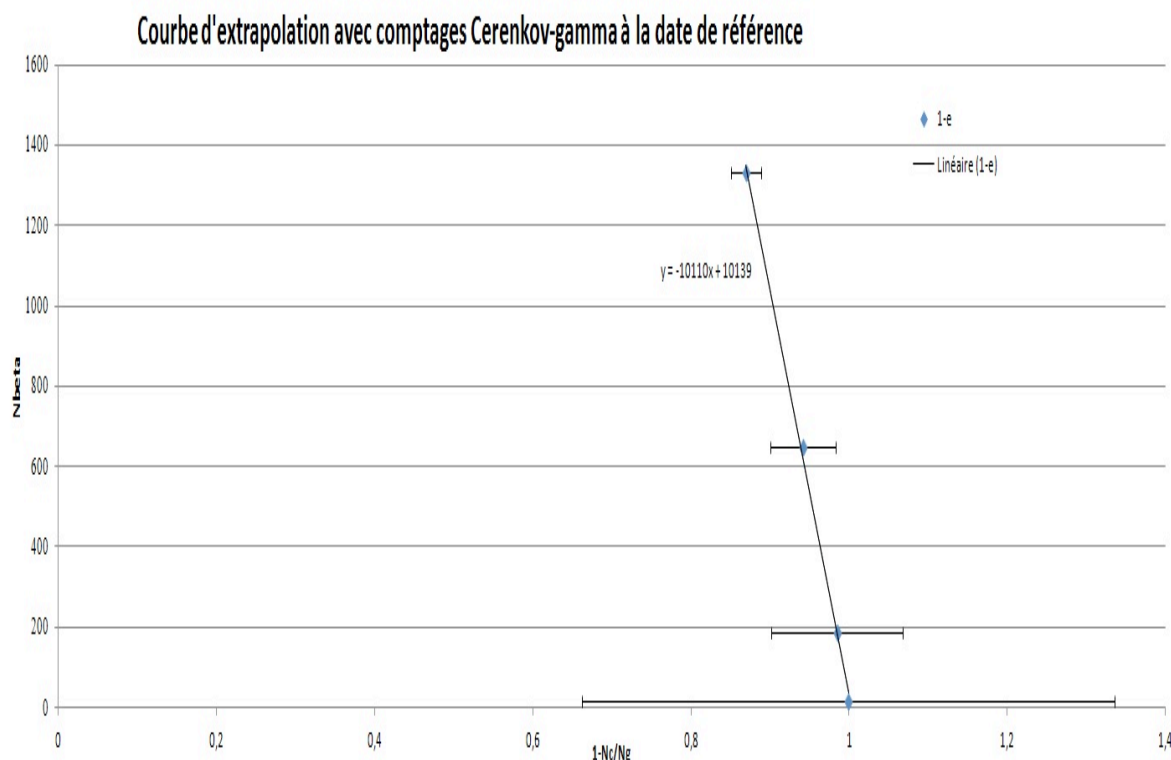


Figure 5.10.: Résultats de la méthode de la courbe d'extrapolation pour les coïncidences Cerenkov-gamma en ligne lors de l'exercice ^{56}Mn

gamma (une dizaine de coups par secondes). De plus, la courte période du ^{56}Mn ne permet pas de réaliser des temps de comptages suffisamment longs (de plus de 10000 secondes), qui auraient pu limiter ces incertitudes statistiques.

Le rendement en voie Cerenkov est également un facteur limitant fortement l'extrapolation. En effet, dans le cas présenté ici, à cause du relèvement des seuils des discriminateurs dû aux perturbations induites par la pompe péristaltique, une partie non négligeable d'événements Cerenkov est coupée par le discriminateur et ne sont donc pas comptés. Ainsi, le rendement pour la tension d'alimentation nominale (1500 V) des photomultiplicateurs est de 13,04 %. Il est donc très difficile d'extrapoler linéairement au point de rendement 100 % avec une incertitude acceptable (inférieure à 1 %) sur la valeur d'activité. De plus, bien qu'une extrapolation linéaire semble donner une activité compatible avec celle donnée par la méthode primaire RCTD (voir résultats obtenus par extrapolation pour la méthode des coïncidences Cerenkov-gamma hors ligne), l'évolution du rendement entre 45 % et 100 % reste inconnue et inaccessible par des méthodes expérimentales (l'effet du seuil Cerenkov limite les rendements de détection à environ 53-55 % dans le meilleur des cas, c'est à dire pour une réflectivité des photons de 100 %).

Cependant, si l'activité massique donnée directement par la méthode des coïncidences (sans extrapolation, hypothèse simplificatrice) à tension nominale est calculée, et en utilisant la masse de liquide dans la cellule déterminée par pesée, l'activité massique calculée est supérieure de 2,29 % à celle déterminée par les méthodes primaires. En revanche, si l'activité massique est calculée par la méthode de la courbe d'extrapolation avec une extrapolation linéaire (et la même masse déterminée par pesée), l'écart avec l'activité massique déterminée par les méthodes primaires est de 8 %. Cette différence peut s'expliquer par le manque de connaissance sur le comportement du rendement de détection, fortement perturbé par la diaphonie entre les voies.

Des études complémentaires sont donc nécessaires afin d'affiner le modèle utilisé a priori pour déterminer l'activité, en vue de valider la méthode Cerenkov-gamma en ligne pour l'étalonnage de sources neutroniques.

5.2.3. Mesure complémentaire

Afin d'aller un peu plus loin et pour étudier le comportement du détecteur Cerenkov-gamma en ligne sur une gamme de rendement (en voie bêta) plus grande, un système permettant d'augmenter l'activité massique de la solution aqueuse de sulfate de manganèse a été installé à l'intérieur de la casemate. Ce système est constitué d'un récipient cylindrique contenant environ 5 litres de solution au centre duquel est immergée la source neutronique (figure 5.11). Ce système est relié à la boucle de recirculation par une dérivation en parallèle de la sphère d'un mètre de diamètre, permettant également d'isoler cette dernière. Le volume total de solution est donc fortement réduit : il n'est constitué que des 5 litres du récipient installé, du récipient de type Marinelli, du détecteur Cerenkov-gamma en ligne et des tuyaux de circulation de la solution entre ces éléments.

De plus, l'utilisation d'une pompe de recirculation plus adaptée a permis de réduire les seuils des discriminateurs (20 mV au lieu de 40 mV) et d'augmenter ainsi le rendement de détection en voie Cerenkov.

Une source AmBe de débit d'émission de $1,1 \cdot 10^6$ neutrons par seconde a été plongée au centre du récipient et l'activité a été mesurée par la méthode de la courbe d'extrapolation après 25h d'activation. L'obtention d'une solution d'activité constante (recirculation dans le système) a permis d'augmenter le temps de comptage et le nombre de points réalisés pour l'extrapolation.

Ainsi, l'activité a été mesurée pour 9 points de fonctionnement : de 1500 V (tension nominale) à 1100 V par pas de 50 V. Les résultats obtenus sont présentés dans la figure suivante. Pour chaque point, le mouvement propre est déduit des comptages (mesure *a posteriori* après décroissance pendant 2 jours et avec recirculation dans la boucle, détecteur isolé).

De grandes incertitudes restent problématiques pour les faibles taux de comptages

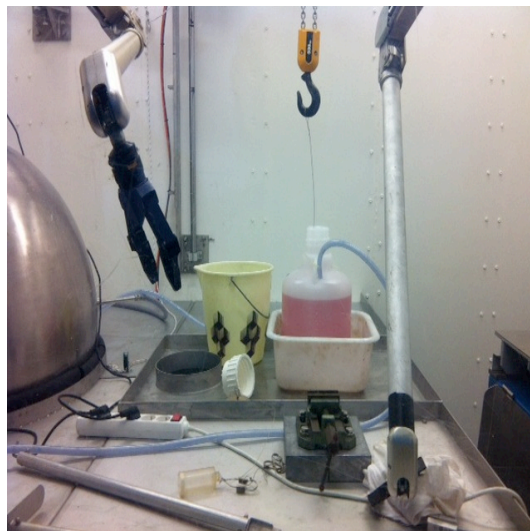


Figure 5.11.: Photo de l'installation utilisée pour la mesure complémentaire en coïncidences Cerenkov-gamma en ligne

obtenus pour les faibles rendements, dominés comme auparavant par les faibles rendements de détection en voie gamma. Le rendement maximal obtenu en voie Cerenkov est ici de 32 % pour le point de fonctionnement à la tension nominale (1500 V). L'extrapolation linéaire semble a priori adéquate pour cette gamme de rendement (pas de point aberrant), comme il a déjà été constaté pour la mesure par la méthode des coïncidences Cerenkov-gamma hors-ligne. Toutefois, il est impossible d'affirmer que cette extrapolation convient pour des rendements au-delà de 32 % également. Le caractère linéaire de l'extrapolation est donc fortement remis en cause et reste à démontrer.

5.2.4. Étalonnage du détecteur gamma

L'objectif principal de l'exercice ^{56}Mn était d'étalonner le détecteur gamma plongé dans le récipient de type Marinelli, afin de pouvoir donner une activité massique totale du bain en fonction du taux de comptage gamma. Ainsi, comme indiqué dans le schéma de l'exercice en figure 5.6, environ 95 ml de solution mère ont été versés dans la sphère. Après homogénéisation par le biais des agitateurs et de la recirculation du liquide activé dans la boucle, la réponse du détecteur gamma a été mesurée. Plusieurs comptages ont été réalisés, et le taux de comptage moyen obtenu est de $(6893,343 \pm 0,001)$ coups par seconde dans le pic de 846 keV pour une activité massique dans le système de $(0,0668 \pm 0,0001)$ kBq.g⁻¹ à la date de référence.

A partir de ces valeurs, on peut reprendre l'étalonnage de la source de AmBe décrit au paragraphe 5.1.5 : on trouve alors, en prenant le taux de comptage gamma obtenu pour cette source, un débit d'émission de $B = (2,23 \cdot 10^7 \pm 0,03 \cdot 10^7)$ (k=1) neutrons par seconde sous 4π sr, au lieu de $B = (2,32 \cdot 10^7 \pm 0,04 \cdot 10^7)$ (k=1) neutrons

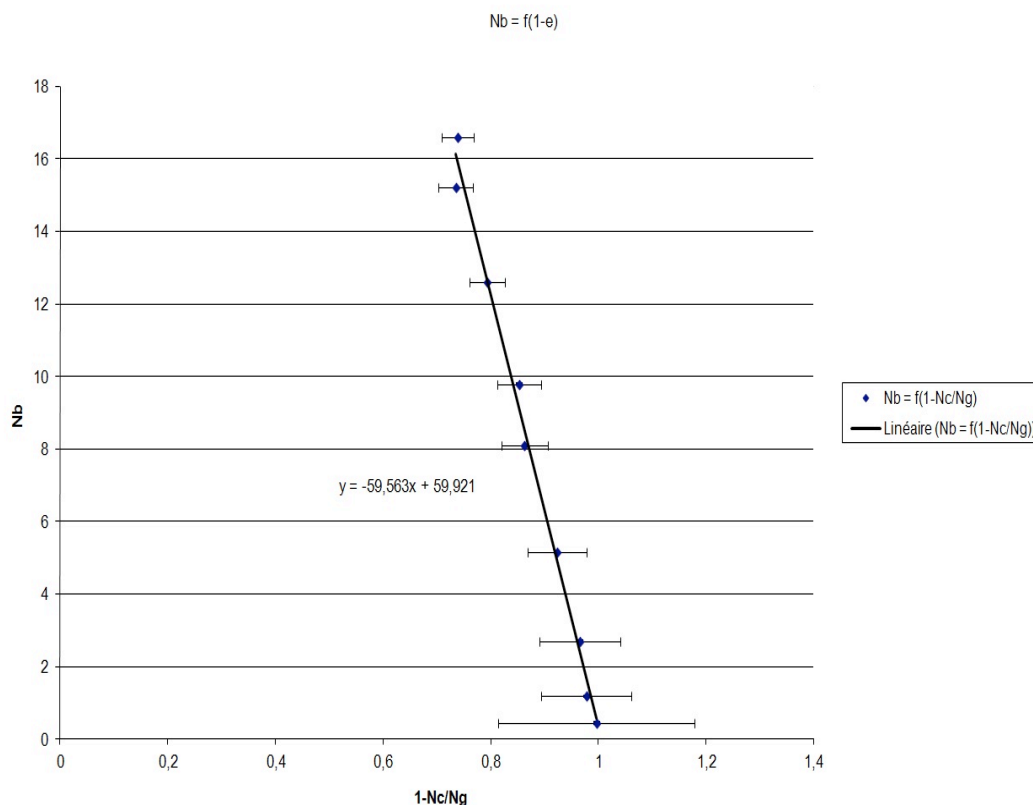


Figure 5.12.: Courbe d'extrapolation pour la mesure complémentaire en coïncidences Cerenkov-gamma en ligne

par seconde sous 4π sr par la comparaison avec la source de référence. On note que l'écart entre ces deux valeurs (écart normalisé de 1,8) est principalement du à l'incertitude sur le débit d'émission de la source de référence, lui même donné par un étalonnage par la méthode du bain de manganèse. Le couple taux de comptage gamma - activité massique sera utilisé pour raccorder les futures valeurs obtenues dans le cadre des étalonnages de sources neutroniques. Il faudra alors s'assurer que les mêmes conditions de mesure (composition et masse de la solution aqueuse de sulfate de manganèse, tension d'alimentation du détecteur, etc.) sont employées.

5.3. Perspectives et voies d'améliorations

Au vu des résultats obtenus, il apparaît que la méthode Cerenkov-gamma pour l'étalonnage de sources neutroniques nécessite un certain nombre d'études complémentaires et d'améliorations afin de pouvoir être appliquée en routine au LNE-LNHB.

5.3.1. Réduction des incertitudes statistiques

L'un des problèmes majeurs rencontrés lors de l'application de la méthode des coïncidences Cerenkov-gamma en ligne réside en les grandes incertitudes sur les taux de comptages, notamment en voie gamma et en coïncidence. Afin de remédier à ce problème, plusieurs pistes d'amélioration du système sont proposées.

Tout d'abord, la solution la plus simple serait d'augmenter l'activité massique en diminuant le volume (et donc la masse) de solution aqueuse de sulfate de manganèse activée. Par exemple, il suffirait de réduire le diamètre de la sphère d'activation pour augmenter sensiblement l'activité massique du bain. Le tableau suivant présente les résultats en capture totale par le bain et capture par le manganèse pour des sphères de diamètre 10, 20, 30 et 40 cm. Cette simulation a été réalisée sous MCNPX à partir du modèle développé pour le calcul des facteurs correctifs.

Diamètre de la sphère	Probabilité de capture par le bain	Probabilité de capture par le manganèse
10 cm	1 %	0,29 %
20 cm	15,8 %	6,66 %
30 cm	41,61 %	18 %
40 cm	64,76 %	28,32 %

Tableau 5.5.: Probabilités de capture simulées sous MCNPX pour des sphères de diamètres 10, 20, 30 et 40 cm

A titre d'exemple, diminuer le diamètre de la sphère de 1 mètre à 40 centimètres revient à diviser le volume de liquide par 16, alors que, d'après la simulation, l'activité totale est divisée par 1,5 : il y a donc un net gain (d'un facteur 8) en activité massique, avec une incertitude statistique divisée par 3. Historiquement, une sphère d'un mètre de diamètre fut choisie car elle représentait un bon compromis entre la radioprotection (limiter les fuites neutroniques et gamma lorsqu'il n'y avait pas de casemate) et la quantité de sulfate de manganèse à diluer dans l'eau. Le LNE-LNHB disposant d'une casemate de radioprotection dimensionnée pour des débits d'émission élevés, un passage à une sphère de diamètre inférieur peut être envisagé raisonnablement.

Une autre piste pour diminuer les incertitudes est d'améliorer le rendement des voies de comptage. En voie Cerenkov, le rendement maximal obtenu (32 % à la tension nominale) peut en effet être amélioré. L'utilisation d'une géométrie interne de la cellule de mesure, du type "sphère intégratrice", permettant une meilleure réflexion et diffusion des photons Cerenkov pourrait ainsi augmenter le taux de comptage. Il est également possible d'améliorer les propriétés optiques du couple photomultiplicateur-cellule de mesure (notamment leur couplage).

En voie gamma, pour laquelle les incertitudes statistiques obtenues furent critiques,

le rendement peut être amélioré soit en augmentant le volume de cristal, soit en changeant le matériau. Les détecteurs de type BGO, par exemple, bien que plus coûteux et d'un rendement lumineux plus faible que pour le NaI(Tl), offrent un meilleur rendement de détection aux énergies désirées (voir paragraphe 4.1.3). De plus, l'utilisation de détecteurs supplémentaires, placés par exemple sur les côtés du châssis détecteur, permettrait d'augmenter l'angle solide de détection.

Enfin, le volume de solution circulant dans le détecteur peut être optimisé pour augmenter le rendement des voies de détection du détecteur Cerenkov-gamma en ligne. Pour ce faire, une simulation Monte-Carlo complète est nécessaire, tel que suggéré dans le paragraphe suivant.

5.3.2. Simulation complète des coïncidences Cerenkov-gamma en ligne

Comme vu précédemment, lors de l'application de la méthode des coïncidences Cerenkov-gamma en ligne, il est a priori nécessaire d'utiliser la méthode de la courbe d'extrapolation pour déterminer l'activité mesurée. Lorsqu'une extrapolation linéaire pour un rendement de 100 % est réalisée, l'hypothèse est faite que la diaphonie entre les voies est la même quel que soit le rendement en voie Cerenkov. Or, dans le cas des coïncidences Cerenkov-gamma en ligne pour la mesure de l'activité en ^{56}Mn , cette hypothèse reste à vérifier.

Pour comprendre et quantifier l'ensemble des interactions possibles entre les électrons, les photons Cerenkov, les photons gamma, et les voies de détection, il est nécessaire de modéliser précisément l'ensemble du détecteur, en prenant en compte la géométrie interne et externe des éléments (cellule de mesure, photomultiplicateur, détecteur gamma, châssis en aluminium et blindage interne en plomb) et le schéma de désintégration complet du ^{56}Mn . Ainsi, il serait possible d'obtenir une courbe d'extrapolation simulée, permettant de déterminer le type d'extrapolation à appliquer sur les points expérimentaux, en dégradant virtuellement le rendement quantique des photomultiplicateurs. Cette modélisation pourrait également permettre de déterminer précisément le volume de liquide actif réellement détecté par les différentes voies de comptage, en modélisant les tubes d'entrée et sortie du liquide.

Une telle modélisation pourra être basée sur une étude en cours (stage de master) au LNE-LNHB portant sur la simulation sous GEANT4 d'un compteur RCTD-Cerenkov, notamment pour la mesure d'activité en ^{56}Mn . Elle permettrait également de tester par la simulation d'autres configurations géométriques, et d'étudier les paramètres pouvant influencer les rendements de détection (composition des matériaux, transmission optique, etc.).

Enfin, dans le cas où la simulation montrerait des discontinuités dans l'évolution de la diaphonie en fonction du rendement en voie Cerenkov, un modèle pourrait être développé afin de lier la mesure à la valeur d'activité massique désirée, à la manière de ce qui est réalisé pour la méthode RCTD.

5.3.3. Validation des codes de calcul des facteurs correctifs

Le calcul du rendement du bain, exposé au chapitre 3, a fait apparaître des écarts significatifs entre les trois codes de calcul Monte-Carlo utilisés. Comme suggéré au paragraphe 3.4.2, il est nécessaire de valider indépendamment ces codes afin de vérifier leur fiabilité. Ainsi, deux méthodes de validation ont été proposées : l'une se basant sur des mesures expérimentales dans différentes configurations du bain de manganèse, l'autre s'appuyant sur une spectrométrie gamma à l'intérieur de la casemate.

La première méthode peut être mise en place relativement rapidement en installant une seconde sphère d'activation, de diamètre 50 cm, par ailleurs déjà disponible au laboratoire. Dans ce cas, après avoir installé la "petite" sphère au côté de la "grande", il est nécessaire de mettre à jour le modèle Monte-Carlo pour y incorporer la petite sphère. Par ailleurs, deux sources de même type (AmBe) mais de débits d'émission neutronique différents ($2,2 \cdot 10^5 \text{ .s}^{-1}$ et $1,1 \cdot 10^6 \text{ .s}^{-1}$) sont disponibles au laboratoire. Cependant, cette méthode de validation nécessite de pouvoir déterminer précisément l'activité massique, ce qui est difficile (en l'état actuel) par la méthode des coïncidences Cerenkov-gamma en ligne pour des débits d'émission neutronique aussi faible. Il est donc recommandé d'utiliser les méthodes primaires disponibles au laboratoire pour mesurer l'activité en ^{56}Mn induite par chaque source dans chacune des configurations choisies, en tenant compte de la décroissance.

La seconde méthode de validation des codes de calcul du rendement du bain proposée au paragraphe 3.4.2 utilise un détecteur gamma étalonné via le pôle spectrométrie du LNE-LNHB, et permettant de déterminer l'intensité relative des pics de diffusion neutronique, par ailleurs calculée par les codes Monte-Carlo. On pourra dans ce cas utiliser un détecteur NaI(Tl) de 3 pouces (7,62 cm) de diamètre, disponible au laboratoire. Le détecteur pourra être installé sur la table élévatrice à l'intérieur de la casemate et des briques de plomb pourront être assemblées autour de celui-ci afin d'atténuer les photons gamma diffusés. Là aussi, il faudra mettre à jour la modélisation Monte-Carlo afin d'y ajouter le détecteur.

5.3.4. Méthode alternative de mesure directe de l'activité

En parallèle de la validation de la méthode des coïncidences Cerenkov-gamma en ligne pour l'étalonnage de sources neutroniques, il peut être intéressant d'étudier la faisabilité d'utiliser une autre méthode de mesure directe de l'activité en ^{56}Mn . Par exemple, une étude pourrait être menée sur la pertinence d'une méthode RCTD-Cerenkov en ligne, afin d'éliminer le problème des faibles taux de comptage en voie gamma. Cette méthode est d'ores et déjà opérationnelle au laboratoire, mais son adéquation avec une géométrie permettant une mesure en ligne reste à vérifier (influence des événements de désintégration dans les circuits fluidiques, faibles rendements de coïncidences triples en Cerenkov, etc.).

5.3.5. Comparaisons internationales

En ce qui concerne l'étalonnage de sources neutroniques, une comparaison internationale (CCRI(III)-K9.AmBe-1) est en cours, pour laquelle le LNE-LNHB devra réaliser une mesure de débit d'émission à l'aide du bain de manganèse. La source aura été préalablement mesurée par le NPL (Royaume-Uni) et le CIAE (Chine). Les résultats de cette inter-comparaison permettront de situer le LNE-LNHB vis-à-vis des autres laboratoires nationaux de métrologie utilisant la méthode du bain de manganèse.

Une seconde comparaison internationale est prévue entre le NPL et le LNE-LNHB pour une source de ^{252}Cf . Les formalités de transport sont en cours, pour une mesure prévue fin 2012. Elle permettra également de tester la méthode pour un autre type de source.

5.3.6. Autres méthodes d'étalonnage de sources neutroniques

Afin d'étalonner une source neutronique, la méthode du bain de manganèse est la méthode de référence (voir chapitre 1 et 2). Mais pour mesurer des sources "en routine", il peut être intéressant de développer des méthodes rapides et simples, régulièrement raccordées à la méthode de référence. Ainsi, il existait au LNHB une installation comportant plusieurs compteurs de type "Hélium-3" placés autour d'une cuve cylindrique remplie d'eau et au centre de laquelle la source à mesurer était placée. Cette installation, démontée à l'occasion de la rénovation du laboratoire, pourra être remontée et re-qualifiée en vue d'être utilisée comme méthode secondaire. De plus, cette installation est particulièrement adaptée aux faibles débits d'émission en partie inaccessibles par la méthode du bain de manganèse.

Pour mesurer rapidement une source neutronique, un protocole utilisant une source de référence peut également être développé. Le compteur BF_3 pourra par exemple être utilisé en plaçant la source à mesurer directement en regard du détecteur. En connaissant la réponse du détecteur pour une source de débit d'émission neutronique connu (la source de référence), le débit d'émission neutronique de la source à étalonner peut être déterminé en la mesurant dans les mêmes conditions. Cette même méthode peut être transposée au bain de manganèse en mesurant la réponse d'un détecteur (détecteur gamma plongé dans le récipient Marinelli, détecteur Cerenkov-gamma en ligne, ou autre) pour la source de référence et pour la source à étalonner.

Conclusion et perspectives

Parmi les sources radioactives existantes, les sources neutroniques solides, dont les premières furent fabriquées pendant la seconde guerre mondiale, nécessitent d'être étalonnées en terme de débit d'émission neutronique sous 4π sr. Ces sources sont principalement de type (alpha,n), (gamma,n) ou de fission spontanée. Utilisées dans une grande variété d'applications, leur étalonnage peut être effectués par différentes méthodes (activation de feuilles d'or, méthode de la particule associée, etc.) mais la technique du bain de manganèse reste la méthode de référence dans le domaine, et est celle choisie par le Laboratoire National Henri Becquerel. Inventée en 1942, cette méthode repose sur l'activation neutronique d'une solution aqueuse de sulfate de manganèse, et nécessite d'une part la mesure de paramètres expérimentaux, et d'autre part le calcul du rendement du bain.

Dans cette étude, le rendement du bain a été calculé par des codes Monte-Carlo, en modélisant la sphère d'activation et son environnement. Cette modélisation a en outre permis de comparer les performances de trois codes de calcul (GEANT4 MCNPX et FLUKA), mais aussi d'affiner la modélisation en déterminant l'émission neutronique la plus réaliste (émission volumique isotrope) et en choisissant la bibliothèque de sections efficaces la plus fiable (ENDF/B-VII.0). Cependant, il est rappelé qu'une validation expérimentale et indépendante est fortement recommandée afin de vérifier la fiabilité du code de calcul choisi (MCNPX). Pour ce faire, deux méthodes ont été proposées, l'une s'appuyant sur des mesures successives avec le bain de manganèse dans des conditions différentes, l'autre par spectrométrie gamma à l'intérieur de la casemate.

Pour mesurer l'activité en ^{56}Mn permettant de calculer le débit d'émission neutronique de la source (via le calcul du rendement du bain), un détecteur s'appuyant sur les coïncidences Cerenkov-gamma en ligne a été développé. Adapté au schéma de désintégration du ^{56}Mn , les coïncidences Cerenkov-gamma présentent l'avantage de ne pas nécessiter d'étalonnage, et donc par extension, de faire du bain de manganèse une méthode directe d'étalonnage de sources neutroniques. Le détecteur développé comporte donc deux voies, possédant chacune un type de détecteur spécialement adapté au rayonnement à détecter. Un premier prototype a été testé avec plusieurs types de solution source (^{60}Co , $^{60}\text{Co-MnSO}_4$), permettant de valider le principe de détection. Ces premiers résultats furent complétés par des simulations permettant d'affiner la compréhension de la physique en jeu dans le détecteur. A la suite de ces premiers tests, un nouveau détecteur a été développé, spécialement adapté pour l'intégration dans la boucle de circulation du liquide activé. La géométrie du châssis

et des éléments d'assemblage a été optimisée pour minimiser le mouvement propre et maximiser les rendements de détection dans chacune des voies de comptage. Les photomultiplicateurs et le détecteur gamma ont également été choisis dans le même but. Les propriétés optiques de la solution ont été mesurées, permettant ainsi d'améliorer les caractéristiques (géométrie et matériau) de la cellule de mesure. En parallèle, une nouvelle électronique de comptage développée au laboratoire a été adaptée afin de s'affranchir au maximum des modules analogiques obsolètes. Une source de ^{60}Co a ensuite été mesurée afin de valider l'ensemble détecteur - chaîne d'acquisition.

Afin de tester le système en conditions réelles, plusieurs mesures ont été réalisées, dont un étalonnage de source neutronique avec les deux méthodes : l'une par le détecteur Cerenkov-gamma en ligne, l'autre par comparaison avec une source de référence. Des mesures préliminaires ont été effectuées afin d'adapter la modélisation aux paramètres expérimentaux. Ces mesures ont également permis de souligner le caractère critique de l'incertitude sur la masse de solution mesurée dans la cellule optique. Lors de l'utilisation du détecteur Cerenkov-gamma, l'application de la méthode de la courbe d'extrapolation a permis de faire apparaître plusieurs facteurs d'incertitude supplémentaires : les faibles taux de comptage en voie gamma, et la méconnaissance du comportement du détecteur en fonction de la diaphonie entre les voies.

Cependant, le bon accord des valeurs obtenues, notamment en se raccordant par la mesure d'une source de référence, appuie le choix de la méthode des coïncidences Cerenkov-gamma en ligne pour l'étalonnage de sources neutroniques. Un exercice de comparaison a également eu lieu pour raccorder les différentes techniques mises en jeu. Là encore, les causes d'incertitudes relevées précédemment ont été observées et l'accord des résultats donnés par les différentes méthodes nécessite d'être confirmé par une étude complémentaire. Pour ce faire, plusieurs voies d'amélioration ont été proposées, dont certaines font déjà l'objet de travaux au sein du LNE-LNHB.

Dans un premier temps, il sera nécessaire d'approfondir la connaissance du comportement du détecteur développé pour la mesure par coïncidences Cerenkov-gamma en ligne. En effet, compte tenu des faibles rendements obtenus, la méthode de la courbe d'extrapolation ne permet pas de déterminer expérimentalement et directement une activité avec une incertitude satisfaisante (de l'ordre de quelques pourcents). L'une des voies proposées pour remédier à ce problème consiste en la simulation et le développement d'un modèle permettant de déterminer le rendement exact du détecteur ainsi que la diaphonie entre les voies de comptage.

Par ailleurs, d'autres mesures expérimentales seront nécessaires afin de valider la méthode d'étalonnage de sources neutroniques par le bain de manganèse. D'une part, une vérification indépendante des codes de calcul devra être effectuée afin de valider le choix du code MCNPX, et d'autre part, plusieurs comparaisons internationales de sources neutroniques devront avoir lieu pour comparer la méthode.

Enfin, le choix historique du bain de manganèse tel qu'utilisé au LNE-LNHB (sphère de 1 m de diamètre) pourra être discuté. En effet, une sphère de diamètre inférieur

pourrait permettre de diminuer les incertitudes statistiques sur la mesure de l'activité. D'autres méthodes, secondaires, pourraient également être développées, afin d'assurer la pérennité, la qualité et la traçabilité des prestations d'étalonnage de sources neutroniques réalisées au LNE-LNHB.

A. Notions physiques

Afin d'appréhender au mieux les principes physiques abordés dans cette thèse, un bref rappel des interactions neutroniques en jeu ainsi que des mesurandes concernés est effectué dans cette annexe.

A.1. Interactions neutroniques

Entre un neutron libre et les atomes qui l'entourent, plusieurs interactions sont possibles. Les deux premières sont des réactions de diffusion dont l'un des produits est un neutron. Les autres réactions sont des réactions d'absorption, le neutron est capturé par le noyau et au moins une particule est émise.

A.1.1. Diffusion élastique

Lors de la diffusion élastique, un neutron "incident" frappe un noyau "cible", lui transfère de l'énergie et rebondit dans une direction différente (parfois le noyau absorbe le neutron puis le ré-émet avec la même énergie cinétique). La fraction de l'énergie de départ qui sera absorbée par le noyau dépend de l'angle d'incidence relatif du neutron sur le noyau. L'énergie perdue par le neutron est alors convertie en énergie cinétique du noyau cible (voir figure A.1).

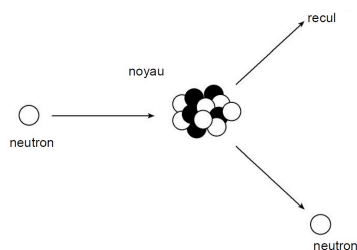


Figure A.1.: Diffusion élastique d'un neutron

Les noyaux légers sont les "ralentisseurs de neutrons" les plus efficaces. Lorsqu'un neutron heurte un noyau lourd, il rebondit en n'ayant perdu que peu de vitesse et communique très peu d'énergie. Ensuite, les neutrons ne seront pas plus diffusés par le nuage d'électrons légers autour du noyau, mais continueront en ligne droite. La diffusion élastique a lieu pour tous les types de noyaux, de l'hydrogène aux noyaux les plus lourds.

A.1.2. Diffusion inélastique

Lors d'une collision avec un noyau, un neutron peut être absorbé momentanément. Ce noyau composé sera dans un état excité. Il se désexcitera en émettant un nouveau neutron, moins énergétique, et au moins un photon gamma qui emportera la différence d'énergie (voir figure A.2). Cette interaction est la diffusion inélastique.

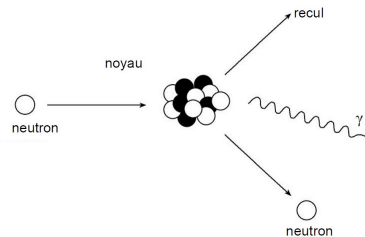


Figure A.2.: Diffusion inélastique d'un neutron

La diffusion inélastique comporte un seuil : l'énergie du neutron incident doit permettre d'élever le noyau cible de son niveau fondamental à son premier niveau excité. Ce seuil est de quelques MeV pour les noyaux légers, et de quelques dizaines de keV pour les noyaux lourds.

A.1.3. Capture radiative

Cette réaction est la plus courante. On la retrouve également dans le bain de manganèse, où la majeure partie des neutrons sont capturés par les atomes de manganèse et d'hydrogène. Lors de cette réaction nucléaire, le noyau formé émet uniquement un rayon gamma. Le noyau produit est donc un isotope de l'élément originel. Son numéro atomique augmente de 1. La figure A.3 suivante illustre la capture radiative sur le noyau d'hydrogène naturel. Le noyau de deutérium formé est un élément stable. Cependant, une grande partie des produits de captures radiatives sont radioactifs et sont des émetteurs bêta-gamma.

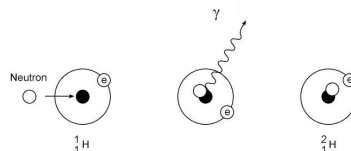


Figure A.3.: Capture d'un neutron par un atome d'hydrogène

Le deutérium ainsi créé peut aussi capturer un neutron, et former un atome de tritium. La figure A.4 suivante illustre cette réaction.

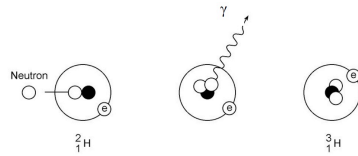


Figure A.4.: Capture d'un neutron par un atome de deutérium

A.1.4. Transmutation

La transmutation est une autre interaction neutronique possible. Un noyau absorbant un neutron, peut ensuite se désexciter en émettant une particule chargée, qui peut être, dans ce cas là, un proton ou une particule alpha. Le noyau résultant est alors celui d'un élément différent. La transmutation est la transformation d'un élément en un autre par l'intermédiaire d'une réaction nucléaire.

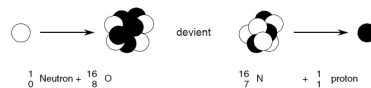


Figure A.5.: Transmutation d'un atome d'oxygène en azote

L'atome de ^{16}N produit est radioactif, avec une période de 7,1 secondes. L'atome de ^{16}N est un émetteur bêta, mais émet également des rayons gamma très énergétiques. Un autre exemple est la réaction (n,alpha) sur l'atome de soufre, qui peut elle aussi avoir lieu dans le bain de manganèse. Dans ce cas, lors de la capture d'un neutron par un atome de ^{32}S , un atome de ^{29}Si peut être créé, avec simultanément l'émission d'une particule alpha.

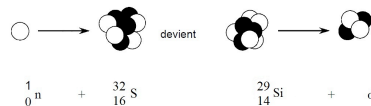


Figure A.6.: Transmutation d'un atome de soufre en silicium

A.1.5. Fission

La réaction de fission a lieu lorsqu'un neutron incident parvient à scinder l'atome cible en deux. Il en résulte deux noyaux, produits de fission, et de 1 à 3 neutrons secondaires.

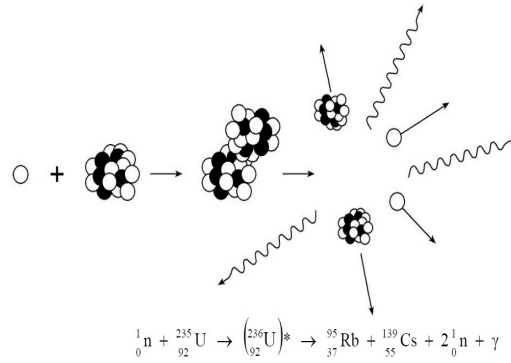


Figure A.7.: Fission d'un atome d'uranium

A.1.6. Spallation

Lors de la spallation, le noyau frappé par le neutron incident se décompose en émettant des particules plus légères (neutrons, protons, photons, ou noyaux légers de deutérium, hélium voire lithium). Dans certains cas, la spallation conduit à la fission du noyau cible.

A.2. Mesurandes

Destiné à une application métrologique, le système développé nécessite une certaine rigueur quant aux différents termes employés, définis dans la norme ISO 8529-1 [1].

A.2.1. Débit d'émission neutronique

Le débit d'émission neutronique désigne le nombre de neutrons par seconde s'échappant de la source, sous 4π sr. Mathématiquement, elle est définie par le quotient de dN^* par dt , où dN^* est l'espérance mathématique du nombre de neutrons émis par la source pendant un intervalle de temps dt . L'unité d'émission d'une source est la s^{-1} .

$$B = \frac{dN^*}{dt} \quad (\text{A.1})$$

A.2.2. Émission spectrale d'une source

L'émission spectrale représente l'émission neutronique par unité d'énergie. C'est le quotient de dB par dE , où dB est la variation de l'émission d'une source de neutrons

dans l'intervalle d'énergie compris entre E et $E + dE$. L'unité d'émission spectrale est le $s^{-1}.J^{-1}$; on utilise fréquemment le $s^{-1}.eV^{-1}$.

$$B_E = \frac{dB}{dE} \quad (A.2)$$

A.2.3. Représentation graphique de l'émission spectrale

L'émission spectrale d'une source est souvent choisie lorsque l'on veut représenter graphiquement la distribution énergétique des neutrons émis. Si l'axe E est en échelle logarithmique, on utilise alors le "tracé en fonction de la léthargie", où :

$$E.B_E = \frac{dB}{d(\ln \frac{E}{E_0})} \quad (A.3)$$

Ainsi, les spectres sont représentés comme étant les tracés de $E.B_E$ (sur une échelle linéaire) en fonction de l'énergie des neutrons, E_N (sur une échelle logarithmique). Les courbes sont des histogrammes reflétant la connaissance limitée de la forme spectrale. Les valeurs des ordonnées, en échelle logarithmique, sont calculées par :

$$E_N.B_E = \frac{B_i}{\ln(\frac{E_{i+1}}{E_i})} \quad (A.4)$$

i étant le numéro de canal considéré dans l'histogramme.

A.2.4. Fluence neutronique

La fluence neutronique correspond au nombre de neutrons traversant l'espace par unité de surface. Elle s'écrit comme le quotient de dN par da , où dN est le nombre de neutrons incidents à la surface d'une sphère de section da . L'unité de fluence neutronique est le m^{-2} , l'unité la plus fréquemment utilisée étant le cm^{-2} .

$$\phi = \frac{dN}{da} \quad (A.5)$$

A.2.5. Débit de fluence neutronique

Le débit de fluence neutronique correspond à la fluence neutronique par unité de temps. Son unité est le $\text{m}^{-2}.\text{s}^{-1}$.

$$\varphi = \frac{d\phi}{dt} = \frac{\partial^2 N}{\partial a.\partial t} \quad (\text{A.6})$$

B. Fichier d'entrée de la modélisation MCNPX

Voici ci-dessous le fichier d'entrée de la modélisation du bain de manganèse réalisée sous MCNPX. Les lignes commençant par "C" sont des commentaires destinés à la compréhension du programme. Les modélisations complémentaires effectuées (géométrie simplifiée, neutrons mono-énergétiques) décrites en section 3.3.2 se basent sur une version simplifiée du code ci-dessous.

```
Mn bath LNHB Saclay - Source AmBe X3 - rho=1.12g/cm**3 - MCNPX
C Fichier mncvr4 - edition may 2011 - MODE n p
C volumic neutron source
C isotropic neutron emission from each point in the radioactive material
C neutron weighing for normalizing source emission to 1
C!!!weight : 0.9815
C!!!bunker environment
C!!!walls with borated concrete and steel sheets + water windows
C!!!determination of the neutron field anisotropy through
C!!!point detectors (tally F5) at points on a 70cm radius
C!!!sphere
C!!!tallies F4 with SF card
C!!!Photon production
C!!!point detectors on surface 22 - R=70cm - anisotropy
C!!! photonuclear interactions : ON
C cross sections : ENDFB-VII
C Carbone(6),silicium(14),argon(18),iron(26),
C nickel(28),chromium(24),molybden(42)
C manganese 55 (100 p.cent),beryllium 9 (100 p.cent)
C hydrogen (1), oxygen (16)
C!!!! specific characteristics applied in the input file
C air in capsule and around Mn bath sphere in the bunker
C 4 S isotopes : 32, 33, 34, 36
C choice : isotope majoritaire pour chaque element
C traitements thermiques be.00t, hh2O.00t, hch2.00t Endfb7
C cellules
C Mn bath description
1 4 -7.90 (1 -2) imp :n,p=1 $steel sphere
2 5 -1.20484e-3 (2 -22) imp :n,p=1 $1st air ext. sphere
22 5 -1.20484e-3 (+22 +101 -100 +103 -102 +104 -105) imp :n,p=1
$air cell between sphere 22 and walls
3 0 (+400 :+402 :-403 :-401 :+405 :-404) imp :n,p=0 $outside world
```

```

4 1 -1.12 (-16 +17 -18) imp :n,p=1 $source material
5 4 -7.90 (-15 11 -6) #4 imp :n,p=1 $source capsule
6 5 -1.20484e-3 (-10 +11 -5) #4 #5 imp :n,p=1 $air source holder
7 3 -1.19 (-11 +12 -4) :(-9 +10 -4) :(-10 +11 +5 -4)
imp :n,p=1 $nacelle PMMA
8 3 -1.19 (-13 +9 -7) imp :n,p=1 $nacelle sup
9 3 -1.19 (-12 +14 -7) imp :n,p=1 $nacelle inf
10 4 -7.90 (-14 +19 -8) imp :n,p=1 $elingue inf
11 4 -7.90 (-20 +13 -8) imp :n,p=1 $elingue sup
12 2 -1.288 -1 #4 #5 #6 #7 #8 #9 #10 #11 imp :n,p=1 $MnSO4 bath
C bunker description
C ceiling A
150 4 -7.90 (+100 -200 +103 -102 +204 -205) imp :n,p=1
151 11 -1.90 (+200 -300 +303 -302 +304 -305) imp :n,p=1
152 4 -7.90 (+300 -400 +303 -302 +404 -405) imp :n,p=1
C wall B left
250 4 -7.90 (+203 -103 +201 -200 +204 -205) imp :n,p=1
251 11 -1.90 (+303 -203 +201 -200 +204 -205) imp :n,p=1
252 4 -7.90 (+403 -303 +401 -400 +404 -405) imp :n,p=1
C wall C right
350 4 -7.90 (+102 -202 +201 -200 +204 -205) imp :n,p=1
351 11 -1.90 (+202 -302 +201 -200 +204 -205) imp :n,p=1
352 4 -7.90 (+302 -402 +401 -400 +404 -405) imp :n,p=1
C wall D floor
450 4 -7.90 (+201 -101 +103 -102 +204 -205) imp :n,p=1
451 11 -1.90 (+301 -201 +303 -302 +304 -305) imp :n,p=1
452 4 -7.90 (+401 -301 +303 -302 +404 -405) imp :n,p=1
C wall E back
550 4 -7.90 (+204 -104 +103 -102 +101 -100) imp :n,p=1
551 11 -1.90 (+304 -204 +303 -302 +201 -200) imp :n,p=1
552 4 -7.90 (+404 -304 +303 -302 +301 -300) imp :n,p=1
C wall F front
C F high
650 4 -7.90 (+105 -205 +103 -102 +602 -100) imp :n,p=1
651 11 -1.90 (+205 -305 +303 -302 +602 -200) imp :n,p=1
652 4 -7.90 (+305 -405 +303 -302 +602 -300) imp :n,p=1
C F middle left
653 4 -7.90 (+105 -205 +103 -603 +601 -602) imp :n,p=1
654 11 -1.90 (+205 -305 +303 -603 +601 -602) imp :n,p=1
655 4 -7.90 (+305 -405 +303 -603 +601 -602) imp :n,p=1
C F middle (left water window 1)
656 12 -1.00 (+105 -405 +603 -604 +601 -602) imp :n,p=1
C F middle (between water window 1 and water window 2)
657 4 -7.90 (+105 -205 +604 -605 +601 -602) imp :n,p=1
658 11 -1.90 (+205 -305 +604 -605 +601 -602) imp :n,p=1
659 4 -7.90 (+305 -405 +604 -605 +601 -602) imp :n,p=1
C F middle (right water window 2)
660 12 -1.00 (+105 -405 +605 -606 +601 -602) imp :n,p=1
C F middle right
661 4 -7.90 (+105 -205 +606 -102 +601 -602) imp :n,p=1

```


662 11 -1.90 (+205 -305 +606 -302 +601 -602) imp :n,p=1
 663 4 -7.90 (+305 -405 +606 -302 +601 -602) imp :n,p=1
 C F low
 664 4 -7.90 (+105 -205 +103 -102 +101 -601) imp :n,p=1
 665 11 -1.90 (+205 -305 +303 -302 +201 -601) imp :n,p=1
 666 4 -7.90 (+305 -405 +303 -302 +301 -601) imp :n,p=1
 C surfaces
 1 SO 49.75 \$internal sphere radius
 2 SO 50.0 \$external sphere radius
 22 SO 70.0 \$control sphere (Bologne)
 4 CZ 1.8 \$PMMA source holder ext. limit
 5 CZ 1.6 \$PMMA source holder int. limit
 6 CZ 1.12 \$steel capsule external limit
 7 CZ 0.75 \$PMMA block radius
 8 CZ 0.1 \$steel elingue radius
 9 PZ +3.04 \$PMMA holder upper part - upper surf.
 10 PZ +2.04 \$PMMA holder upper part - lower surf.
 11 PZ -1.46 \$capsule lower plane
 12 PZ -1.66 \$PMMA holder lower part _ lower surf.
 13 PZ +4.54 \$upper PMMA block - upper surf.
 14 PZ -3.16 \$lower PMMA block - lower surf.
 15 PZ +1.39 \$capsule upper plane
 16 PZ +0.815 \$source material sup
 17 PZ -0.815 \$source material inf
 18 CZ 0.88 \$source material radius
 19 PZ -48.0 \$lower steel elingue - lower surf.
 20 PZ +48.0 \$upper steel elingue - upper surf.
 C bunker walls
 100 PZ +223.5 \$ walls ceiling
 200 PZ +224.5
 300 PZ +264.5
 400 PZ +265.5
 101 PZ -111.5 \$ walls floor
 201 PZ -112.5
 301 PZ -152.5
 401 PZ -153.5
 102 PY +323.0 \$ walls C
 202 PY +324.0
 302 PY +364.0
 402 PY +365.0
 103 PY -123.0 \$ walls B
 203 PY -124.0
 303 PY -164.0
 403 PY -165.0
 104 PX -111.5 \$ walls E
 204 PX -112.5
 304 PX -152.5
 404 PX -153.5
 105 PX +111.5 \$ walls F
 205 PX +112.5

305 PX +152.5
 405 PX +153.5
 601 PZ +8.5 \$ horiz. windows walls
 602 PZ +58.5
 603 PY -15.3 \$ vert. windows walls
 604 PY +49.7
 605 PY +92.0
 606 PY +182.0
 C Autres elements du probleme
 MODE n p
 VOL 2J 3.188167e+7 42J
 C volumic source model
 SDEF ERG=D1 CEL=4 RAD=D2 AXS=0 0 1 EXT=D3 WGT=0.9815
 \$ normalized AmBe volumic source
 SI1 H 4.14E-7 0.11 0.33 0.54 0.75 0.97 1.18 1.40 1.61 1.82
 2.04 2.25 2.47 2.68 2.90 3.11 3.32 3.54 3.75 3.97
 4.18 4.39 4.61 4.82 5.04 5.25 5.47 5.68 5.89 6.11
 6.32 6.54 6.75 6.96 7.18 7.39 7.61 7.82 8.03 8.25
 8.46 8.68 8.89 9.11 9.32 9.53 9.75 9.96 10.18 10.39
 10.60 10.82 11.03 11.09 \$ISO 8529-1 (2001)
 SP1 D 0.0 1.44E-2 3.34E-2 3.13E-2 2.81E-2 2.50E-2
 2.14E-2 1.98E-2 1.75E-2 1.92E-2 2.23E-2
 2.15E-2 2.25E-2 2.28E-2 2.95E-2 3.56E-2
 3.69E-2 3.46E-2 3.07E-2 3.00E-2 2.69E-2
 2.86E-2 3.18E-2 3.07E-2 3.33E-2 3.04E-2
 2.74E-2 2.33E-2 2.06E-2 1.82E-2 1.77E-2
 2.04E-2 1.83E-2 1.63E-2 1.68E-2 1.68E-2
 1.88E-2 1.84E-2 1.69E-2 1.44E-2 9.68E-3
 6.52E-3 4.26E-3 3.67E-3 3.81E-3 5.06E-3
 6.25E-3 5.52E-3 4.68E-3 3.70E-3 2.78E-3
 1.51E-3 3.63E-4 0.0 \$ISO 8529-1 (2001)
 C Source geometry
 SI2 0 0.88 \$emission homogene et isotrope
 SP2 -21 1 \$dans tout le volume du cylindre
 SI3 -0.815 +0.815 \$rayon source 0.88 cm
 SP3 -21 0 \$hauteur 2x0.815 cm
 C Resultats
 FC1 Neutron leakage total current on external sphere surface 2 - radius=50cm
 F1 :N 2
 E1 1.001E-9 20
 EM1 1 1
 C
 c FC11 Neutron leakage total current on surface 22 - radius=70cm (P5)
 C F11 :N 22
 C E11 1.001E-9 20
 C EM11 1 1
 C
 FC21 Neutron angular distribution on external sphere surface 2 - radius=50cm
 F21 :N 2
 C21 -.96593 -.86603 -.70711 -.5 -.25882 0 .25882 .5 .70711

```

.86603 .96593 1 T
E21 1.001E-9 20
EM21 1 1
C
C FC31 Neutron angular distribution on surface 22 - radius=70cm (P5)
C F31 :N 22
C C31 -.96593 -.86603 -.70711 -.5 -.25882 0 .25882 .5 .70711
C .86603 .96593 1 T
C E31 1.001E-9 20
C EM31 1 1
C
FC2 Neutron leakage total fluence on external sphere surface 2 - radius=50cm
F2 :N 2
E2 1.001E-9 20
EM2 1 1
C
FC12 Neutron leakage total fluence on surface 22 - radius=70cm
F12 :N 22
E12 1.001E-9 20
EM12 1 1
C
FC102 Photon leakage total fluence on external sphere surface 22
- radius = 70cm
F102 :P 22
E102 1.01e-3 10
EM102 1 1
C
FC112 Photon leakage fluence spectrum on surface 22 - radius=70cm
C energy
F112 :P 22
E112 1.01e-3 0.010 999I 10.010 $ option bin de 10 keV
EM112 1 1001R $ option bin de 10 keV
C E112 1.01e-3 0.010 9999I 10.010 $option bin de 1 keV
C EM112 1 10001R $option bin de 1 keV
C
FC22 Neutron leakage fluence spectrum/lethargy interval on surface 2 R=50cm
F22 :N 2
E0 1.001E-9 2.E-9 3.E-9 5.E-9 7.E-9
1.E-8 1.4E-8 2.E-8 3.E-8 4.E-8
5.E-8 6.E-8 7.E-8 8.E-8 9.E-8
1.4E-7 2.E-7 4.14E-7 1.E-6 1.E-5
5.E-5 1.E-4 2.E-4 4.E-4 7.E-4
1.E-3 3.E-3 6.E-3 1.E-2 2.E-2
2.2E-2 2.6E-2 3.E-2 4.E-2 6.E-2
8.E-2 0.11 0.33 0.54 0.75
0.97 1.18 1.40 1.61 1.82
2.04 2.25 2.47 2.68 2.90
3.11 3.32 3.54 3.75 3.97
4.18 4.39 4.61 4.82 5.04
5.25 5.47 5.68 5.89 6.11

```

6.32 6.54 6.75 6.96 7.18
 7.39 7.61 7.82 8.03 8.25
 8.46 8.68 8.89 9.11 9.32
 9.53 9.75 9.96 10.18 10.39
 10.60 10.82 11.03 12.0 13.0
 14.0 15.0 16.0 17.0 20.0
 C Multiplication de la fluence dans (Esup - Einf)
 C par $1/[\ln(Esup) - \ln(Einf)]$
 EM0 0.434290 1.444780 2.466303 1.957615 2.972013
 2.803673 2.972013 2.803673 2.466303 3.476059
 4.481420 5.484814 6.487159 7.488875 8.490187
 2.263299 2.803673 1.374478 1.133929 0.434294
 0.621335 1.442695 1.442695 1.442695 1.786940
 2.803673 0.910240 1.442695 1.957615 1.442695
 10.49205 5.986085 6.988078 3.476059 2.466303
 3.476059 3.140173 0.910239 2.030553 3.044102
 3.887679 5.102726 5.849396 7.155023 8.156452
 8.763219 10.20512 10.71949 12.25510 12.67524
 14.30369 15.30407 15.58556 17.35234 17.54070
 19.40046 20.40067 20.45047 22.44866 22.40537
 24.49659 24.36021 26.54447 27.54459 27.26967
 29.59242 29.22442 31.64022 32.64030 32.13377
 34.68807 34.08846 36.73582 37.73588 36.99774
 39.78361 38.95240 41.83134 40.90705 43.87905
 44.87909 43.81629 46.92679 45.77090 48.97448
 49.97452 48.68010 52.02220 11.86411 12.49333
 13.49382 14.49425 15.49462 16.49494 6.153129
 FQ0 E F
 C
 FC32 Neutron leakage fluence spectrum/lethargy interval on surface 22- R=70cm
 F32 :N 22
 C
 FC4 Neutron capture in PMMA (nacelle + cylindres PMMA)
 F4 :N 7 8 9 T
 FM4 1.073658E-1 3 -2
 E4 1.001E-9 20
 EM4 1 1
 C
 FC14 Neutron capture in steel (source capsule + holders)
 F14 :N 5 10 11 T
 FM14 8.621955E-2 4 -2
 E14 1.001E-9 20
 EM14 1 1
 C
 FC24 Neutron capture in MnSO4 solution
 F24 :N 12
 FM24 1.037218E-1 2 -2
 E24 1.001E-9 20
 EM24 1 1
 C

FC34 Neutron capture : Total or(n,gamma) in Mn
 F34 :N 12
 FM34 1.308203E-3 6 -2
 E34 1.001E-9 20
 EM34 1 1
 C
 FC44 Neutron capture in S : Total;(n,gamma);(n,p);(n,alpha)
 F44 :N 12
 FM44 1.304051E-3 7 (-2) (102) (103) (107)
 E44 1.001E-9 20
 EM44 1 1
 C
 FC54 Neutron capture in O : Total;(n,gamma);(n,alpha)
 F54 :N 12
 FM54 3.736221E-2 8 (-2) (102) (107)
 E54 1.001E-9 20
 EM54 1 1
 C
 FC64 Neutron capture in H : Total [or (n,gamma)]
 F64 :N 12
 FM64 6.374733E-2 9 -2
 E64 1.001E-9 20
 EM64 1 1
 C
 FC74 Neutron capture in source material (AmO2/Be)
 F74 :N 4
 FM74 6.982094E-2 1 -2
 E74 1.001E-9 20
 EM74 1 1
 C
 FC84 Neutron fission in Am
 C 6.982094x(10)**22at/cm**3 -> Am seul en x0.0022
 C = 1.536060 (10)**20 at d'Am/cm**3 = 1.536060 E-4 at/barn.cm
 C remplacement par 1.838 (10)**20 (voir calcul avec data source)
 F84 :N 4
 FM84 1.838060E-4 10 -6
 E84 1.001E-9 1.0E-6 1.0E-3 1.0E-2 1.0E-1 1 2 5 10 20
 EM84 1 9R
 C
 FC114 Neutron capture in steel holders
 F114 :N 10 11 T
 FM114 8.621955E-2 4 -2
 E114 1.001E-9 20
 EM114 1 1
 C
 FC124 Neutron capture in steel source capsule
 F124 :N 5 T
 FM124 8.621955E-2 4 -2
 E124 1.001E-9 20
 EM124 1 1

```

C
C
PHYS :N 20 0 0 -1 -1 0 0 $default sauf Emax=20MeV
PHYS :P 20 0 0 -1 1 $ analog photonuclear=-1 (tables et models)
C PHYS :P 20 0 0 1 1 $ photonuclear=1 (models)
C PHYS :P 20 0 0 0 1 $ photonuclear : OFF ; Doppler broadening OFF
C PHYS :P 20 0 0 0 0 $ photonuclear : OFF ; Doppler broadening ON
C
C Materials
M1 95241.70c 0.00220 4009.70c 0.99339 8016.70c 0.00441
$AmO2/Be material atomic fractions
MT1 be.00t $Trait. therm. Be Endfb7
M2 25055.70c -0.09266 16032.70c -0.05103 16033.70c -4.213e-4
16034.70c -2.45e-3 16036.70c -1.209e-5
8016.70c -0.77059 1001.70c -0.08284 $solution SO4Mn,H2O
MT2 hh2o.00t $ Trait. therm. H dans H2O Endfb7
M3 6000.70c -0.599848 8016.70c -0.319614 1001.70c -0.080538 $PMMA
MT3 hch2.00t $Trait. therm. H dans polyeth. Endfb7
M4 26056.70c -0.66704 24052.70c -0.17000 28058.70c -0.11000
25055.70c -0.01400 14028.70c -0.00720 15031.70c -0.01020
16032.70c -0.00020 6000.70c -0.00026 42098.70c -0.02110 cond=1
$ steel 316L
MT4 fe.00t $ Trait. therm. Fe Endfb7
M5 6000.70c -0.000125 7014.70c -0.755267 8016.70c -0.231781
18040.70c -0.012827 $air
M6 25055.70c 1 $Mn
M7 16032.70c 0.9493 16033.70c 0.0076 16034.70c 0.0429
16036.70c 0.0002 $S atomic fractions
M8 8016.70c 1 $O
M9 1001.70c 1 $H
MT9 hh2O.00t $Trait. thermique H dans H2O - Endfb7
C
M10 95241.70c 1
C $Am (fission)
M11 13027.70c -0.2135 5011.70c -0.0073 20040.70c -0.0727
26056.70c -0.0265 1001.70c -0.0456 8016.70c -0.6344 $borated concrete
MT11 hh2O.00t
C
M12 1001.70c 0.667 8016.70c 0.333 $water (cell windows)
MT12 hh2O.00t
C
NPS 100000000
DBCN 3623785728047
PRINT 110 10 140 40

```

C. Schéma du code implémenté dans la carte numérique FPGA pour la gestion des coïncidences

Les fonctions assurées par la carte FPGA sont les suivantes :

- Coïncidence entre les deux voies des photomultiplicateurs,
- Retard ajustable des signaux photomultiplicateurs coïncidents,
- Coïncidences entre les photomultiplicateurs et les entrées des analyseurs monocal de la voie gamma,
- Synthèse des diverses horloges nécessaires au fonctionnement de l'ensemble, de 10 kHz à 200 MHz,
- Synthèse des signaux de temps mort reductibles pour l'ensemble des voies,
- Horloges temps-réel associées à chaque unité de temps mort,
- 16 compteurs 40 bits pour chaque voie de comptage et horloges temps-réel associées,
- 16 registres à décalage cascades pour la sortie série des contenus des compteurs vers le bus SPI,
- Gestion des entrées-sorties de début de comptage et remise à zéro des compteurs, en liaison avec la carte microcontrôleur.

Le schéma global du programme FPGA apparaît sur la figure C.1. Il comporte les signaux d'entrée suivants :

- IN_A et IN_B : signaux de sortie des discriminateurs des photomultiplicateurs,
- IN_50M : horloge 50 Mhz (incluse sur la carte Nexys2),
- SW0 à SW7 : interrupteurs de réglage du retard du signal de coïncidence entre les photomultiplicateurs,
- IN-G, IN_SCA1, IN_SCA, IN_SCA3 à SCA_7 : signaux de sortie des analyseurs monocal, - Start : signal logique d'autorisation de comptage,
- RAZ : remise à zéro des compteurs et registres,
- Load_sr : transfert du contenu des compteurs vers les registres à décalage.

Les signaux de sortie des divers modules logiques permettent le contrôle des signaux et en particulier le réglage de synchronisation entre les voies des photomultiplica-

Bibliographie

- [1] International Standard ORGANIZATION : Rayonnements neutroniques de référence – Partie 1 : Caractéristiques et méthodes de production. 2000.
- [2] G. GIORGINIS, V. KHRYACHKOV, V. CORCALIUC et M. KIEVETS : The cross section of the $^{16}\text{O}(\text{n},\alpha)^{13}\text{C}$ reaction in the MeV energy range. *International Conference on Nuclear Data for Science and Technology*, 2007.
- [3] J. BOUCHARD et B. CHAUVENET : A simple, powerful, 4pi beta/gamma coincidence system based on the pulse-mixing method. *Nuclear instruments and methods in physics research. Section A*, 422:395–399, 1999.
- [4] C. BOBIN : Validation du dossier de méthode R12 relatif à la méthode des coïncidences. *Note technique du LNHB*, (26), 2008.
- [5] Glenn F. KNOLL : *Radiation detection and measurements*. Wiley, 1999.
- [6] L. LEBRETON, A. ZIMBAL et D. THOMAS : Experimental comparison of ^{241}Am -Be neutron fluence energy distributions. *Radiation Protection and Dosimetry*, 126(1-4):3–7, May 2007.
- [7] M. E. ANDERSON et R. A. NEFF : *Nucl. Instrum. Meth*, 99:231, 1972.
- [8] K. W. GEIGER et L. Van der ZWAN : *Health Physics*, 21:120, 1971.
- [9] E. A. LORCH : *Applied Radiation and Isotopes*, 24:585, 1973.
- [10] Rolf J. ROSENBERG et Jacques GUIZERIX : *Bulletin de l'AIEA*, 2, 1987.
- [11] R. DELMAS, C. MARIET, M. MOSKURA et D. GUIOT : Analyse par activation neutronique instrumentale, 2009.
- [12] Paul REUSS, 2003.
- [13] R. C. MARTIN et J. H. MILLER : Applications of ^{252}Cf neutron sources in medicine, research, and industry, 2002.
- [14] Ulf ROSENGARD, Thomas DOLAN, Dmitri MIKLUSH et Massoud SAMIEI, 2001.
- [15] 2012.
- [16] M. W. JOHNSON : The industrial use of neutrons. *Applied radiations and isotopes*, 46:673–680, 1995.
- [17] V. GRESSIER : *Rapport scientifique et technique de l'IRSN*, page 231, 2008.
- [18] N.J. ROBERTS, L.N. JONES, Z. WANG, Y. LIU, Q. WANG, X. CHEN, H. LUO, C. RONG, M. KRALIK, H. PARK, K.O. CHOI, W.W. PEREIRA, E.S. da FONSECA, P. CASSETTE, M.S. DEWEY, N.N. MOISEEV et I.A. KHARITONOV : International key comparison of measurements of neutron source emission rate (1999-2005) - CCRI(III)-K9.AmBe. *Metrologia*, 48, 2011.

- [19] K. W. GEIGER : Recent Improvements in the Absolute Calibration of Neutron Sources. *Metrologia*, 4:8, 1968.
- [20] Nikolai MOISEEV et Igor KHARITONOV : Methods of neutron source strength measurements. *Proceedings of the International Workshop on Fast Neutron Detectors*, 2006.
- [21] V. M. BEZOTOSNY et Yu. S. ZAMYATNIN : Measurements of the absolute intensities of neutron sources. *Report Acad. Sci. USSR*, 1956.
- [22] A. E. KONYAEV, V. F. KOSITSYN, E. A. KHOL'NOVA et M. F. YUDIN : First-class activity measures for ^{252}Cf spontaneous fission. *Meas. Tech.*, 34:507, 1991.
- [23] A. G. BARDELL, K. J. ZIEBA, R. BOTTGER et H. KLEIN : Bilateral intercomparison of the neutron emission rate of a ^{252}Cf spontaneous fission source between the National Physical Laboratory, Teddington, UK and the Physikalisch-Technische Bundesanstalt, Braunschweig. *NPL Report RSA(EXT)*, 47, 1994.
- [24] D. M. GILLIAM, A. T. YUE et M.S. DEWEY : Calibration of a manganese bath relative to ^{252}Cf nu-bar. *Reactor Dosimetry State of the Art*, page 361, 2008.
- [25] R. D. O'NEAL et G. SCHARFF-GOLDHABER : Determination of Absolute Neutron Intensities. *Physics Reviews*, 56:R368, 1942.
- [26] K. W. GEIGER et G. N. WHYTE : Absolute standardization of radioactive neutron sources. *Canadian Journal Of Physics*, 37:256, 1959.
- [27] V. NAGGIARL : Report on international comparison of the neutron emission rate of national research council RaBe source No 200-1 by the method of slowing down neutrons in a manganese sulphate solution. *BIPM report*, 5:128, 1967.
- [28] A. De VOLPI : Absolute calibration of neutron sources having a wide range of emission spectra. *Metrologia*, 1969.
- [29] V. SPIEGEL : Neutron source calibrations at NBS for calibration checks of neutron radiation instruments. *NBS Report*, page 87, 1976.
- [30] J. M. ADAMS : Present and future trends for neutron source calibrations at the National Insititute of Standards and Technology. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Section B*, 213:218, 2004.
- [31] H. PARK, K-O. CHOI, J-M. LEE, K. B. LEE et M. S. HAHN : Absolute measurement of the neutron emission rate with a manganese sulphate bath system. *Journal of the Korean Physical Society*, 47:603, 2005.
- [32] Sun-Tae HWANG et Kun Jai LEE : Absolute neutron emission rate measurement of a ^{252}Cf source by the manganous sulfate bath method. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Section A*, 273:381, 1988.
- [33] C. H. WESTCOTT : Effective cross section values for well-moderated thermal reactor spectra. *Technical Report*, 1958.
- [34] W. M. MURPHEY : The correction factor for fast neutron reactions on sulfur and oxygen in the manganous sulfate bath calibration of neutron sources. *Nuclear Instruments and Methods*, 37:13–21, 1965.

- [35] Mien-Win WU et Jen-Chang CHOU : Absolute Determination of the Fast Neutron Fluxes by Using the Flow-Type Manganese Bath Method. *Chinese Journal of Physics*, 1973:97, 1965.
- [36] J. R. SMITH : The ^{252}Cf ν discrepancy and the sulfur discrepancy. 1979.
- [37] E. J. AXTON et A. G. BARDELL : Re-evaluation of Neutron Source Emission Rates Measured at the National Physical Laboratory. *Metrologia*, 18:97–102, 1982.
- [38] E. J. AXTON, A. G. BARDELL, S. J. FELGATE et E. M. R. LONG : The Ratio of the Thermal Neutron Capture Cross-Sections for Hydrogen and Manganese and its Impact on the Measurement of Neutron Source Emission Rates by Manganese Bath Techniques. *Metrologia*, 21:181–191, 1985.
- [39] E. J. AXTON : Intercomparison of Neutron-Source Emission Rates (1979- 1984). *Metrologia*, 23:129–144, 1987.
- [40] Kyung-Ju LEE, Kil-Oung CHOI, Sun-Tae HWANG et Kun Jai LEE : Determination of Neutron Absorption fraction factor in manganese sulfate bath system. *journal of the Korean Nuclear Society*, 21:12, 1989.
- [41] N. J. ROBERTS et Lawrence N. JONES : Commissioning of the new Manganese Bath Suite at the National Physical Laboratory. *Report of the National Physical Laboratory, UK*, 2008.
- [42] Kil-Oung CHOI, Sun-Tae HWANG, Young-Seok LEE, Kwang pil LEE et Keung-Shik PARK : Impurity correction factor of MnSO_4 compound for the determination of neutron emission rate on the manganese bath method. *journal of radioanalytical and nuclear chemistry*, 239:605–608, 1999.
- [43] Guilherme Rodrigues BITTENCOURT, Karla Cristina de SOUZA PATRAO, Sandro Passos LEITE, Walsan Wagner PEREIRA et Evaldo Simoes da FONSECA : Determining of semi-empirical relationship between the manganese and hydrogen atoms ratio, physical density and concentration in an aqueous solution of manganese sulphate. *Radiation Measurements*, 45:1505–1508, 2010.
- [44] Etalonnage d’une source de ^{252}Cf . *Bulletin du BNM*, 1977.
- [45] A. HOFFMANN, F. JEANPIERRE, A. KAVENOKY, M. LIVOLANT et H. LORAIN : note *CEA-N-1610*, 1972.
- [46] N. J. ROBERTS : MCNP Calculations of Correction Factors for Radionuclide Neutron Source Emission Rate Measurements using the Manganese Bath. *Report of the National Physical Laboratory, UK*, 2001.
- [47] N. J. ROBERTS et Lawrence N. JONES : Recent developments in radionuclide neutron source emission rate measurements at the National Physical Laboratory. *Applied Radiation and Isotopes*, 68:626–630, 2009.
- [48] A. G. BARDELL, M. BURKE, J.B. HUNT, H. TAGZIRIA et D.J. THOMAS : Anisotropy of emission from radionuclide neutron sources. *NPL Report CIRM24*, 1998.

- [49] A. CAPGRAS : Etalonnages d'une source de neutrons Ra-Be. *Rapport interne CEA/LMRI*, 1968.
- [50] A. CAPGRAS : Etalonnages de sources neutrons. *Rapport interne CEA/LMRI*, 1964.
- [51] Sandro P. LEITE, Walsan W. PEREIRA, Evaldo S. FONSECA et Karla C.S. PATRAO : Emission rate corrections for $^{241}\text{AmBe}$ sources in manganese bath of LNMRI/IRD. *Proceedings of the IMEKO XVIII World Congress*, 2006.
- [52] E. S. da FONSECA et W. W. PEREIRA : Present status of the manganese sulfate bath at the LNMRI. *Report of the CCRI(III)*, 2009.
- [53] Sandro P. LEITE, Walsan W. PEREIRA, Ademir X. SILVA, Evaldo S. FONSECA et Karla C.S. PATRAO : Alternative irradiation system for efficiency manganese bath determination. *Proceedings of the 2009 International Nuclear Atlantic Conference*, 2009.
- [54] Zhang HUI : Activities in the neutron metrology in 2009 and 2010. *NIM report to the 19th meeting of CCRI(III)*, 2010.
- [55] F. OGHEARD, J. L. CHARTIER et P. CASSETTE : Monte-Carlo simulations of the new LNHB manganese bath facility. *Applied Radiation and Isotopes*, 70:794–801, 2012.
- [56] RSICC : MCNPX - a general Monte-Carlo n-particle transport code, version 2.5. 2005.
- [57] S. Agostinelli et AL. : GEANT4 - a simulation toolkit. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research A*, 506:250–303, 2003.
- [58] G. Battistoni et AL. : The FLUKA code : description and benchmarking. *American Institute of Physics Conference Proceedings*, 896:31–49, 2007.
- [59] A. D. Carlson et AL. : International Evaluation of Neutron Cross Section Standards. *Nuclear Data Sheets*, 110:3215–3324, 2009.
- [60] J.L. CHARTIER et P. CASSETTE : Problem 5 : manganese bath calibration facility. *CONRAD Work Package 4 Proceedings of the International Workshop on Uncertainty Assesment in Computational Dosimetry*, 2007.
- [61] M. Chadwick et AL. : ENDF/B-VII.0 : next generation evaluated nuclear data library for nuclear science and technology. *Nuclear Data Sheets*, 107:2931–3060, 2006.
- [62] C. FERGUSON : General purpose source particle module for GEANT4/SPARSET. *Technical note, UoS-GSPM-Tech*, 2000.
- [63] R. Lemrani et AL. : Low energy neutrons propagation in MCNPX and GEANT4. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research A*, 560:454–459, 2006.
- [64] Yung-Shun YEH : simulating neutrons propagations with FLUKA, GEANT4 and MCNP. *IEEE Nuclear Science Symposium Conference Record*, 2007.

- [65] O. Petit et AL : TRIPOLI-4 - A 3D continuous-energy Monte-Carlo transport code. *ICRM Meeting proceedings*, November 2006.
- [66] E. Mendoza et AL. : Low energy neutrons in Geant4. *N-ToF Meeting Proceedings*, 2011.
- [67] E. MENDOZA et D. CANO-OTT : New neutron cross section libraries for GEANT4. *proceedings of the 6th Geant4 Space Users Workshop*, 2009.
- [68] A. Shirin Enger et AL. : Monte Carlo calculations of thermal neutron capture in gadolinium : a comparison of GEANT4 and MCNP with measurements. *Medical Physics*, 33:337–342, 2006.
- [69] D. WHALEN, D. CARDON, J. UHLE et J. HENDRIC : MCNP : Neutron Benchmark Problem. *Los Alamos National Laboratory Technical Note*, LA-12212.
- [70] M.-M. BÉ, V. CHISTÉ, C. DULIEU, E. BROWNE, V. CHECHEV, N. KUZMENKO, R. HELMER, A. NICHOLS, E. SCHÖNFELD et R. DERSCH : Table of Radionuclides. *Monographie BIPM-5*, 2004.
- [71] J. V. JELLEY : Cerenkov Radiation and Its Applications. *Pergamon Press*, 1958.
- [72] L. E. GLENDENIN : *nucleonics*, 2, 1948.
- [73] J. V. JELLEY : Measurement of Beta-Emitting Nuclides Using Cerenkov Radiation. *Analytical Chemistry*, 41:1260–1265, 1969.
- [74] Xiongxin DAI, Etienne ROLLIN, Alain BELLERIVE, Cliff HARGROVE, David SINCLAIR, Cathy MIFFLIN et Feng ZHANG : Wavelength shifters for water Cherenkov detectors. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research A*, 589:290–295, 2008.
- [75] W. B. MANN, A. RYTZ et A. SPERNOL : Radioactivity Measurements, principles and practice. *Applied radiation and Isotopes*, 39, 1988.
- [76] A. P. BAERG : Measurement of Radioactive Disintegration Rate by the coincidence Method. *Metrologia*, 2, 1966.
- [77] C. BOBIN : Primary standardization of activity using the coincidence method based on analogue instrumentation. *Metrologia*, 44:27–31, 2007.
- [78] P. CASSETTE : *Note technique du LPRI, DAMRO/LPRI, CEA-Saclay*, 307, 1992.
- [79] F. SALVAT, J. FERNANDEZ-VAREA et J. SEMPAN : Penelope - A code system for Monte Carlo Simulation of Electron and Photon Transport. *OECD Communication*, 2003.
- [80] JCGM 101 :2008 : Evaluation of measurement data - Supplement 1 to the "Guide to the expression of uncertainty in measurement" - Propagation of distributions using a Monte Carlo Method. *First edition*, 2008.

