

## Etude du signal optique des chambres à fission et évaluation de son exploitation pour un système de mesure neutronique d'un réacteur de génération IV

Maxime Lamotte

## ▶ To cite this version:

Maxime Lamotte. Etude du signal optique des chambres à fission et évaluation de son exploitation pour un système de mesure neutronique d'un réacteur de génération IV. Physique des Hautes Energies - Théorie [hep-th]. Université Grenoble Alpes [2020-..], 2021. Français. NNT: 2021GRALI023. tel-03230227

## HAL Id: tel-03230227 https://theses.hal.science/tel-03230227

Submitted on 19 May 2021

**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.





## **THÈSE**

Pour obtenir le grade de

## DOCTEUR DE L'UNIVERSITÉ GRENOBLE ALPES

Spécialité : MEP : Mécanique des fluides Energétique, Procédés

Arrêté ministériel : 25 mai 2016

Présentée par

#### Maxime LAMOTTE

Thèse dirigée par **Christian JAMMES**, Expert Sénior Instrumentation nucléaire, Université Grenoble Alpes

préparée au sein du Laboratoire CEA Cadarache dans l'École Doctorale I-MEP2 - Ingénierie - Matériaux, Mécanique, Environnement, Energétique, Procédés, Production

Etude du signal optique des chambres à fission et évaluation de son exploitation pour un système de mesure neutronique d'un réacteur de génération IV

Study of optical signals produced in fission chambers and evaluation as neutron measurement system for a generation IV reactor

Thèse soutenue publiquement le **12 mars 2021**, devant le jury composé de :

## **Monsieur CHRISTIAN JAMMES**

INGENIEUR HDR, CEA CENTRE DE CADARACHE, Directeur de thèse Madame MARIE-CLAUDE BORDAGE

CHARGE DE RECHERCHE HDR, INSERM DÉLÉGATION OCCITANIE PYRENEES, Rapporteure

## Monsieur BENOIT GALL

PROFESSEUR DES UNIVERSITES, UNIVERSITE DE STRASBOURG, Rapporteur

#### Monsieur PHILIPPE DESSANTE

PROFESSEUR DES UNIVERSITES, ECOLE SUPERIEURE D ELECTRICITE GIF/YVETTE. Président

#### **Monsieur GERARD HENRION**

DIRECTEUR DE RECHERCHE, CNRS DÉLÉGATION CENTRE-EST, Examinateur

## **Monsieur ULLI KOESTER**

DOCTEUR EN SCIENCES, INSTITUT LAUE-LANGEVIN, Examinateur

# Table des matières

| 1        | Intr | roduction 19                                          |
|----------|------|-------------------------------------------------------|
|          | 1.1  | Contexte                                              |
|          |      | 1.1.1 Notions de neutronique                          |
|          |      | 1.1.2 Utilisations des détecteurs de neutrons         |
|          |      | 1.1.3 Limitations des solutions actuelles             |
|          | 1.2  | Étude proposée                                        |
|          |      | 1.2.1 Phénomène physique exploité                     |
|          |      | 1.2.2 Retour d'expérience de la scintillation gazeuse |
|          |      | 1.2.3 Plan de thèse                                   |
| <b>2</b> | Dis  | positif d'étude analytique PSEG 43                    |
|          | 2.1  | Conception d'un dispositif de mesures en laboratoire  |
|          |      | 2.1.1 Source d'excitation                             |
|          |      | 2.1.2 Puissance du signal optique                     |
|          |      | 2.1.3 Réacteur à plasma                               |
|          | 2.2  | Exploitation du PSEG                                  |
|          |      | 2.2.1 Mise en service                                 |
|          |      | 2.2.2 Acquisitions spectroscopiques                   |
|          | 2.3  | Résultats                                             |
|          | 2.4  | Discussion                                            |
|          | 2.5  | Publications                                          |
| 3        | Mo   | dèle numérique et code de simulation SCENA 73         |
|          | 3.1  | Nécessité d'un code de calcul innovant                |
|          | 3.2  | Méthodes                                              |
|          | 3.3  | Validation                                            |
|          | 3.4  | Résultats                                             |
|          | 3.5  | Discussion                                            |
|          | 3.6  | Publications                                          |
| 4        | Irra | adiations en faisceau de neutrons froids              |
|          | 4.1  | Source de neutrons et instrumentation                 |
|          |      | 4.1.1 Réacteur à faisceaux froids ORPHÉE              |
|          |      | 4.1.2 Capteur de neutrons expérimental                |
|          |      | 4.1.3 Détecteur de photons                            |
|          | 4.2  | Expériences préparatoires, hors flux                  |
|          | 4.3  | Expériences sous flux de neutrons                     |
|          | 4.4  | Résultats                                             |

|              |              | 4.4.1Première irradiation sur ORPHÉE                                          | 117 |
|--------------|--------------|-------------------------------------------------------------------------------|-----|
|              | 4.5          |                                                                               |     |
|              | $4.5 \\ 4.6$ | Discussion                                                                    |     |
| 5            | Irra         |                                                                               | 127 |
|              | 5.1          | Opportunités                                                                  |     |
|              | 5.2          | Dispositifs et instrumentation                                                |     |
|              |              | 5.2.1 Réacteur de sûreté CABRI                                                |     |
|              |              | 5.2.2 CANOE et capteur optique                                                |     |
|              |              | 5.2.3 Système d'acquisition à grande dynamique                                |     |
|              | 5.3          | Expériences menées sur CABRI                                                  |     |
|              | 5.4          | Résultats                                                                     |     |
|              |              | 5.4.1 Mesures de divergences de CABRI                                         |     |
|              |              | 5.4.2 Tirs de pics de puissance de CABRI                                      |     |
|              | 5.5          | Analyse du signal résiduel                                                    |     |
|              | 5.6          | Discussion                                                                    |     |
|              | 5.7          | Publication                                                                   | 145 |
| 6            | Pers         | spectives d'études et d'applications                                          | 152 |
|              | 6.1          | Bilan des travaux effectués                                                   | 152 |
|              | 6.2          | Perspectives d'études                                                         | 154 |
|              |              | 6.2.1 Collecte optique                                                        | 154 |
|              |              | 6.2.2 Détection des photons                                                   | 155 |
|              |              | 6.2.3 Étanchéité                                                              |     |
|              |              | 6.2.4 Influence gamma                                                         |     |
|              |              | 6.2.5 Dégradation du gaz                                                      |     |
|              |              | 6.2.6 Réduction du signal fantôme                                             |     |
|              |              | 6.2.7 Multiplexage - indice de spectre                                        |     |
|              | 6.3          | Domaines d'application                                                        | 166 |
| 7            | Con          | clusion                                                                       | 168 |
| $\mathbf{A}$ | Sup          | plément au chapitre 2                                                         | 170 |
|              | Ι            | Code de calcul du spectre énergétique d'ions lourds en sortie de dépôt        | 170 |
|              | II           | Code de calcul de la proportion de photons sortant du PSEG                    |     |
|              | III          | Code de calcul du facteur de correction en réponse du spectromètre            |     |
|              | IV           | Code de calcul de la correction en réponse du spectromètre                    |     |
|              | V            | Routine de détection et intégration de pics d'émissions                       |     |
|              | VI           | Routine de générations de graphiques de Botlzmann                             |     |
|              | VII          | Résultats du code de calcul du spectre d'ions lourds en sortie de dépôt, pour |     |
|              |              | des matières réactives aux neutrons                                           | 183 |
|              | VIII         | Vue éclatée du dispositif PSEG                                                | 183 |

| $\mathbf{B}$ | Sup  | plément au chapitre 4                                                        | L <b>86</b> |
|--------------|------|------------------------------------------------------------------------------|-------------|
|              | I    | Code de calcul de la proportion de photons canalisée dans une fibre optique  | 186         |
|              | II   | Plans de la première version de CANOE jamais exploitée                       | 191         |
|              | III  | Plans de la seconde version de CANOE, chargé en bore                         | 194         |
|              | IV   | Résultats des mesures d'absorption des fibres                                | 195         |
|              | V    | Données techniques du SPAD Hamamatsu C1300-01                                | 196         |
|              | VI   | Acquisition de spectre par fibre optique avant irradiation                   | 197         |
|              | VII  | Image spectrale conduite par fibre optique                                   | 197         |
|              | VIII | Images brutes issues de la première irradiation                              | 198         |
|              | IX   | Sensibilité d'un SiPM à la température ambiante                              | 198         |
|              | Χ    | Essais de discrimination du signal par PHA                                   | 199         |
|              | XI   | Images brutes du spectromètre                                                |             |
|              | XII  | Spectres d'émission sous flux de neutron                                     | 201         |
|              | XIII | Montage pneumatique de terrain                                               | 202         |
| $\mathbf{C}$ | Sup  | plément au chapitre 5                                                        | 203         |
|              | I    | Création et validation d'un modèle FLUKA de l'expérience menée sur CABRI.    | 203         |
|              | II   | Routine de génération d'une «source tape» pour FLUKA à partir d'un flux      |             |
|              |      | MCNP/TRIPOLI                                                                 | 207         |
|              | III  | Carte d'entrée de FLUKA, simulant CANOE dans CABRI                           | 208         |
|              | IV   | Micrologiciel du FPGA utilisé pour compter les impulsions du SPAD            | 214         |
|              | V    | Logiciel de pilotage de l'intégrateur IVC102                                 | 224         |
|              | VI   | Interface graphique du pilote de l'IVC102                                    | 231         |
| $\mathbf{D}$ | Sup  | plément au chapitre 6                                                        | 233         |
|              | Ι    | Géométrie de la chambre simplifiée simulée sous GEANT4                       | 233         |
|              | II   | Plans d'une version de CANOE à indice de spectre                             |             |
|              | III  | Schéma de la géométrie étudiée pour l'optimisation de la collecte de photons |             |
|              | IV   | Résultats du code d'étude de l'optimisation du dépôt d'énergie dans le gaz   |             |
|              | V    | Résultats du code d'étude de l'optimisation de la collecte de photons        | 239         |
|              | VI   | Schémas des mécanismes de transfert d'énergie                                |             |

# Liste des figures

| 1.1 | Répartition des sources de production d'électricité en France pour l'année 2018.<br>548.6 TWh ont été produits, dont 86 TWh exportés. Source : RTE-France [2] .                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                            | 20  |
|-----|--------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------|-----|
| 1.2 | Vue en coupe du réacteur expérimental ASTRID dans sa phase de design pré-<br>liminaire (gauche), l'imposant récupérateur de corium (RC) en bas de la cuve<br>écranterait des détecteurs de neutrons placés sous celle-ci. Schéma des organes<br>principaux de ASTRID et emplacements étudiés pour les de détecteurs de neu-<br>trons (droite). 1 : Après réflecteur latéral (A/REFL), 2 : Après PNL, 3 : Après<br>PNL avec guide de neutrons (A/PNL-GN), 4 : Partie basse du BCC (B/BCC),<br>5 : Centre cœur (C/C), 6 : Support cœur (S/C) | 22  |
| 1.3 | Schéma simplifié d'une chambre à fission classique. La tension de polarisation se situe généralement dans la gamme de 100 à 800 V. Le circuit de mesure et                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                 |     |
| 1.4 | l'alimentation peuvent se trouver à des centaines de mètres de la chambre Courbe de puissance du réacteur ISIS mesurée par l'exploitant avec une chambre à ionisation utilisée en mode courant (bleu), par G.Galli avec une CFHT expérimentale en mode impulsion (rouge), cumulant 2ième (noir), et 3ième ordre                                                                                                                                                                                                                            | 25  |
|     | (vert). Données issues de [26]                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                             | 27  |
| 1.5 | Sections efficaces d'ionisation (trait plein) et d'excitation sommée sur les 42 premiers niveaux (tirets) de l'hélium par impact d'électrons [43] (gauche) et                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                              | 0.0 |
| 1.6 | par impact de protons [44] [45] (droite)                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                   | 33  |
| 1.7 | pas de haute-tension                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                       | 35  |
| 2.1 | Gauche : placement du porte-dépôt avec le <sup>238</sup> Pu sur une des électrodes du PSEG. Droite : photographie du PSEG dans une boîte à gant, prêt à être                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                               |     |
| 2.2 | refermé et gonflé                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                          | 46  |
|     | sont ceux considérés pour l'émission proche infrarouge. Source : LX-Cat Project.                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                           | 47  |

| 0.0        |                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                               |          |
|------------|-----------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------|----------|
| 2.3        | Diagramme de Grotrian partiel des niveaux de l'argon neutre sélectionnés pour notre étude et leurs embranchements. Les fleches rouges indiquent une transition dans la zone proche infrarouge intense. Énergies en eV. Source : NIST-ASD [8].                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                 | 48       |
| 2.4<br>2.5 | Gauche : cuve de peinture achetée pour modification. Droite : PSEG usiné Gauche : Vue de la simulation utilisée pour l'estimation de la proportion de photons traversant le hublot du PSEG en fonction des paramètres géométriques et de remplissage. Les particules alphas du <sup>238</sup> PuO <sub>2</sub> émises aléatoirement depuis le dépôt noir émettent un photon à l'étoile mangenta. Les photons partent avec une direction aléatoire (trait rouge). Seuls les photons partant vers le haut de la cuve sont représentés. Droite : Proportion de photons traversant le hublot / générés dans la cuve en fonction de la pression d'argon et de la distance entre le centre de la pastille et le hublot. On note une inflexion de la courbe à basse pression car la portée des particules alphas augmente, en résulte un plasma plus | 50       |
| 2.6        | diffus                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                        | 51       |
| 2.7        | même plasma au sein du PSEG. Dimensions en millimètres                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                        | 52<br>55 |
| 3.1        | Schéma simplifié de la fonction de distribution en énergie des électrons dans un gaz soumis à un faisceau d'électrons. On note les seuils 1 : électrons sources énergétiques, 2 : électrons issus d'ionisations sous le seuil au potentiel Vi, 3 : électrons dans la zone d'excitation au dessus du seuil Im, 4 : électrons ther-                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                             | <b></b>  |
| 3.2        | miques et en cours de collisions élastiques. Données issues de [14] Allure typique d'une fonction de distribution en énergie d'électrons en régime stationnaire dans un plasma d'hélium excité par des fragments de fissions, telle que calculée par Lo et Miley du groupe Plasma d'origine Nucléaire. Schneider et al [10] emphasent le besoin récurrent de données plus précises dans la zone délimitée, peu exploitables avec les modèles stationnaires employés jusque là.                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                | 75       |
| 3.3        | Données issues de [17]                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                        | 76       |
|            | de $[23]$                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                     | 77       |

| 3.4 | Représentation de la trajectoire d'un fragment de fission lourd (trace rouge) et de son essaim d'électrons énergétiques (bulles) émis au fur et à mesure de sa progression dans du néon à une atmosphère. Un champ électrique réduit de 10 Td est appliqué verticalement, entrainant une dérive des électrons vers le haut. Dimensions en mètres, la couleur des électrons correspond à leur énergie                                                        |       |
|-----|-------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------|-------|
| 3.5 | cinétique, en eV                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                            |       |
| 3.6 | EEDF des électrons graines et secondaires produit par impact d'un fragment de fission lourd dans du néon à 1 atm. Résultats avec une fonction de distribution initiale au premier millimètre du parcours de l'ion projectile (gauche), et dernier (droite). La simulation comprend environ 100 fois plus de particules qu'observable en situation réelle, le nombre d'électrons capable d'exciter le gaz après 10 ps serait statistiquement inférieur à un. |       |
| 3.7 | Caption for LOF                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                             |       |
| 4.1 | Répartition du flux de neutron en sortie du canal d'irradiation G3-2 du réacteur ORPHÉE. Données issues de [3].                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                             | . 108 |
| 4.2 | Représentation 3D d'un CANOE chargé d'un tube recouvert de <sup>10</sup> B <sub>4</sub> C. On note la fibre optique industrielle RS-PRO 425-8584 à raccord SMA en regard d'une lentille de focalisation. La distance focale est ajustable par un pas de vis entre                                                                                                                                                                                           |       |
| 4.3 | la bride porte-hublot (bleu) et l'adaptateur (orange)                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                       |       |
| 4.4 | d'adaptation ont été retirés pour les besoins de la photographie                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                            |       |
| 4.5 | représentés pour plus de clarté                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                             | . 111 |
| 4.6 | signal n'est visible entre 350 nm et 585 nm                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                 | . 113 |
| 4.7 | pour 7 cps de signal d'obscurité                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                            | . 115 |
|     | à 2 atmosphères et excité par 65 cm <sup>2</sup> de <sup>10</sup> B. L'ouverture du faisceau de neutron est clairement visible, avec une réduction du délai entre chaque impulsion                                                                                                                                                                                                                                                                          | . 118 |

| 5.1  | Vue de la cuve de CABRI. L'emplacement de nos irradiations est marqué par un carré magenta. Les 5 chaînes de mesure du transitoire de puissance sont marquées par les lettres G. Les 2 chaînes de mesure servant au pilotage à puissance stationnaire sont marquées par un H. Les tubes verts correspondent aux barres de contrôle tandis que les tubes d <sup>3</sup> He sous pression sont représentés en                                                                              |       |
|------|------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------|-------|
| 5.2  | rouge                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                    | . 129 |
| J.∠  | puissance                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                | . 132 |
| 5.3  | Courbes théoriques et expérimentales de la réponse de l'amplificateur logarithmique basé sur une puce LOG114. La compression du courant issu, par exemple, d'une photodiode avec une fonction logarithmique permet d'interfacer simplement le mode courant d'un photodétecteur vers des convertisseurs analogiques standards                                                                                                                                                             |       |
| 5.4  | Mise en place de CANOE excité par 750 µg d' <sup>235</sup> U et gonflé par 2 atm de néon dans la boîte à eau APIC du réacteur CABRI                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                      |       |
| 5.5  | Divergences du réacteur CABRI avant le troisième tir, vues par les détecteurs HN1 et HN2 utiles au pilotage, et par CANOE situé dans la boîte à eau, près du cœur. Haut : échantillonnage de 1 ms ré-échantillonné à 1 seconde pour réduire l'incertitude sur le comptage de CANOE. SP : correction du Signal Parasite. L'axe de la puissance en logarithme permet d'apprécier la linéarité du signal. Bas : signal brut de CANOE échantillonné à 400 ms lors de la troisième            |       |
| 5.6  | divergence.  Haut : Réponse de CANOE à proximité du coeur et de deux chambres à dépôt de bore situées derrière une protection de plomb durant le second transitoire de puissance. Le taux de comptage est donné pour le seul CANOE. Bas : Détail de la réponse de la chambre à dépôt de bore G22 et de CANOE associé au SPAD Hamamatsu C13001-01 lors du transitoire de puissance numéro 1. On note une déviation de la linéarité de la réponse dès 2E+6 cps en sortie et une saturation |       |
| 5.7  | à 3.74E+7 cps. La chambre G22 sature à 465 MW                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                            | . 138 |
|      | pour contribution majeure l' <sup>28</sup> Al, la courbe de décroissance a pour valeur ini-                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                              | 120   |
| 5.8  | tiale celle de CANOE                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                     |       |
| 5.9  | Énergie déposée dans le gaz de CANOE après un transitoire de puissance de 21.6 GW par les décroissances des produits de fission de deux dépôts d'épaisseur variable, et d'un corps de CANOE. Un agrandissement est proposé (bas) pour identifier la diminution nette de la contribution d'un dépôt fin et épais dans la dynamique de décroissance. Le fit d'une courbe de décroissance radioactive de                                                                                    |       |
| 5.10 | l'aluminium sert de référence pour l'expérimentation                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                     | . 141 |
|      | dissante des produits de fission avec la masse active déposée                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                            | . 143 |

| 6.1 | Solutions disponibles pour augmenter sensiblement l'efficacité d'un couplage optique de chambre à fission optique. Gauche : Cône «taper» consitué de milliers de fibres optiques en silice fusionnées à l'étranglement. D'autres formes existent. Droite : Assemblage «bundle» de fibres optiques en silice avec revêtement d'aluminium, souble, robuste et offrant une redondance au signal |
|-----|----------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------|
| 6.2 | Modes d'opération d'une photodiode classique. Gauche : photovoltaïque (sans biais), Droite : photoconducteur (avec biais négatif)                                                                                                                                                                                                                                                            |
| 6.3 | Mécanisme d'amplification intrinsèque du signal dans un APD. Une large zone intrinsèque permet de mieux détecter les photons proche-infrarouge et amplifier le photo-signal                                                                                                                                                                                                                  |
| 6.4 | Schémas d'un SPAD basé sur une APD-Geiger, et un SiPM                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                        |
| 6.5 | Évolution du signal d'un SiPM en fonction de l'illumination. Un courant moyen                                                                                                                                                                                                                                                                                                                |
| 6.6 | peut être mesuré à haut flux                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                 |
| 6.7 | flux de 1E+11 $\gamma$ .cm <sup>-2</sup> .s <sup>-1</sup> , 540 JEPP                                                                                                                                                                                                                                                                                                                         |
| A.1 | Spectre des ions lourds en sortie de dépôt réactifs aux neutrons en fonction de son épaisseur. Gauche : bore de 0.1 (noir), 0.2 (rouge), 0.5 (bleu), 1 (vert), 5 (violet) µm. Droite : uranium de 0.2 (noir), 0.5 (rouge), 1 (bleu), 5 (vert), 15                                                                                                                                            |
| A.2 | (violet) µm                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                  |
| B.1 | Spectres d'une lampe à ruban de tungstène vue à travers deux mètres de fibre optique. On note une très forte atténuation du signal dans la fibre en plastique PMMA ainsi que des bandes d'absorption autour de 735 nm et 810 nm. Les valeurs sont données en unités relatives à cause d'une correction logicielle                                                                            |
| B.2 | intrinsèque au spectromètre                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                  |
| B.3 | linéarité de la réponse dès 1E+6 cps en sortie et une saturation autour de 3E+7 cps.19 CANOE chargé en <sup>238</sup> Pu et en argon pour des expériences hors flux. Une fibre optique EO-58-397 canalise les photons émis dans le gaz vers le spectromètre dont la fente d'entrée est réglée grande ouverte. On identifie clairement                                                        |
|     | le spectre d'émission de l'argon sous forme de taches                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                        |

| B.4  | Image en sortie du capteur CCD obtenue après 20 minutes de pose. On note des taches blanches du même diamètre que la fibre optique RS-PRO 425-8584 utilisée, soit 200 µm. CANOE était rempli d'une atmosphère d'argon et excité par la pastille de 1.8 mg de <sup>238</sup> Pu utilisée dans le PSEG. L'efficacité de détection du système optique n'est pas corrigée, ainsi, la raie à 912 nm est plus |       |
|------|---------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------|-------|
| B.5  | intense qu'elle n'apparait sur l'image. Le rapport largeur/hauteur de l'image a été modifié pour l'édition du document                                                                                                                                                                                                                                                                                  | . 197 |
| B.6  | taches identifiées à 750 nm et 763 nm, qui correspond aux désexcitations des niveaux ${}^2P_1$ et ${}^2P_6$ de l'Ar I                                                                                                                                                                                                                                                                                   | . 198 |
|      | tion de sa température. L'alimentation stabilisée étant également plongée dans le bain d'huile, il n'était pas possible de modifier sa valeur une fois l'ensemble scellé. La tension d'avalanche du SiPM évoluant avec la température du milieu, le taux de comptage ne pu être relevé qu'une fois la température ambiante                                                                              |       |
| B.7  | permettant l'avalanche. Le point à 21 °fut mesuré pour $U=39\ V.$ Histogrammes des hauteurs d'impulsions en sortie du SiPM RB refroidi à - 40 °Cavec et sans neutrons impactant CANOE. L'intégrale des signaux est                                                                                                                                                                                      | . 198 |
| B.8  | strictement égale, traduisant l'acquisition de bruit de mesure                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                          | . 199 |
| B.9  | pour l'édition du document                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                              | . 200 |
| B.10 | spectrale rouge dans la fibre plastique semble expliquer ce résultat Schéma du système de vidange et remplissage en gaz rares utilisé lors de la seconde et troisième campagne de mesure sur ORPHÉE                                                                                                                                                                                                     |       |
| C.1  | Vue de la géométrie représentative de CANOE. Certains détails comme les pas de vis ont été omis, mais les masses restent scrupuleusement les mêmes que celles du capteur réel. Le volume PROBE analyse le spectre des neutrons le                                                                                                                                                                       |       |
| C.2  | traversant avant interaction sur CANOE                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                  | . 204 |
|      | énergie dans le cas de la méthode de fonction probabilité cumulée.                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                      | . 206 |

| C.3 | Vue du logiciel de pilotage de l'intégrateur IVC102, compilé sur ordinateur monocarte Raspberry Pi IV                                                                                                                               |
|-----|-------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------|
| D.1 | Paramètres et variables utilisés dans le code de calcul de la proportion de photons canalisés dans la fibre optique                                                                                                                 |
| D.2 | Proportions d'énergie transmise au gaz tampon d'une chambre à fission non polarisée en fonction de sa géométrie. Gauche : Proportion transmise en fonction                                                                          |
|     | de la longueur de la partie active (hu) et de la pression de remplissage (P), diamètre (Rc) fixé à 40 mm. Droite : Proportion transmise en fonction du diamètre du détecteur et de la pression du remplissage, longueur active (hu) |
|     | fixée à 100 mm. Le gaz tampon est de l'argon, et la distance entre le haut de                                                                                                                                                       |
|     | la surface active et le fibre optique (z0h-hu) est de 100 mm                                                                                                                                                                        |
| D.3 | Proportions et nombre de photons générés dans le gaz / acceptés par la fibre                                                                                                                                                        |
|     | optique en variant divers paramètre d'un détecteur cylindrique. 1 : fonction de                                                                                                                                                     |
|     | la longueur de matériau de conversions. 2 : fonction du diamètre de l'enveloppe.                                                                                                                                                    |
|     | 3 : fonction de la pression de remplissage. 4 : fonction de la distance entre la                                                                                                                                                    |
|     | fibre et le haut de la matière active. 5 : fonction de l'ouverture numérique de la                                                                                                                                                  |
|     | fibre. 6 : fonction du diamètre de la fibre                                                                                                                                                                                         |
| D.4 | Diagrammes de Sankey représentant les mécanismes de transfert d'énergie des                                                                                                                                                         |
|     | fragments de fission au gaz. Les valeurs sont données par fission. f : points                                                                                                                                                       |
|     | d'optimisations, analysés en VII. Les pourcentages se portent sur le flux résultant240                                                                                                                                              |
| D.5 | Diagramme de Sankey représentant la distribution et la perte des photons jus-                                                                                                                                                       |
|     | qu'au détecteur. Les valeurs sont données par cm² de surface active épaisse de                                                                                                                                                      |
|     | $1~\mu\mathrm{m}$ d'uranium dans une géométrie décrite en $$ III avec $$ R $c=25~\mathrm{mm},$ hu $=$                                                                                                                               |
|     | 100 mm. Les points d'améliorations de la collecte sont analysés en V. Les va-                                                                                                                                                       |
|     | leurs sont données pour une surface de collection de 2 et 25 mm de diamètre,                                                                                                                                                        |
|     | respectivement. Les pourcentages se portent sur le flux résultant                                                                                                                                                                   |

## Liste des tableaux

| 2.1        | Niveaux d'excitation de l'argon neutre générant d'intenses raies dans la gamme 840-1000 nm. %P : Probabilité de peuplement du niveau par un spectre plat d'électron compris entre 20 et 60 eV, %d : Embranchement de désexcitation du niveau produisant les raies IR retenues pour notre étude. Source : NIST-ASD [8] 49 Prépondérance des mécanismes d'élargissement de raies d'émission d'une hypothétique transition passant par un niveau résonnant de l'argon, autour de 800 nm dans un plasma affichant une densité électronique de 1E+16 e <sup>-</sup> .cm <sup>-3</sup> 54 |
|------------|-------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------|
| 4.1        | Caractéristiques des fibres optiques utilisées ou pressenties pour les expérimentations à froid et en réacteur. A : Atelier chambres à fissions, O : ORPHÉE, C :CABRI                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                               |
| 5.1<br>5.2 | Caractéristiques des chaînes de mesure neutronique servant au pilotage et au suivi du transitoire de puissance du réacteur CABRI                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                    |
| 6.1<br>6.2 | NEP à 1 Hz de différents photodétecteurs sous une illumination monochromatique à 900 nm, et leur prix indicatif                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                     |
| C.1        | Débits de fluence mesurés et estimés à l'emplacement d'irradiation en considérant un spectre monoenergétique à 25.3 meV (th) et complet (sim) en irradiation à puissance stationnaire durant 2700 s (S) ou pulsée (P) avec une LMH de 8.95 ms (P). Les activités estimées par FLUKA présentent une incertitude de 4.1 % et 6.1 % pour l'or et le cobalt, respectivement                                                                                                                                                                                                             |

## Liste des sigles

**ABS** Acrylonitrile Butadiène Styrène

ADC Analogue to Digital Converter

**APD** Avalanche Photodiode

APIC Assemblage Postiche Instrumenté CABRI

BCC Bouchon Couvercle Coeur BEP Boucle à Eau Pressurisée

CANOE CApteur de Neutrons à Optique Expérimentale

**CCD** Charged Coupled Device

CEA Commissariat à l'Énergie Atomique et aux Énergies Alternatives

**CERN** Organisation européenne pour la recherche nucléaire

**CF** Chambre à Fission

CFHT Chambre à Fission Haute-TempératureCFTM Chambre à Fission de Tests et Modèles

**CSP** Charge Sensitive Preamplifier

**DCR** Dark Count Rate

**DNDI** Détection de Neutrons Différés Intégrée

**DP** Décharge Partielle

**EEDF** Electron Energy Distribution Function

FPGA Field Programmable Gate Array
GPIO General Purpose Input Output

**HCF** Hollow Core Fibers

HEU High Enrichment UraniumHFF Heavy Fission FragmentHOC Higher Order Campbelling

IN2P3 Institut National de Physique Nucléaire et de Physique des Particules

INB Installation Nucléaire de Base

INFN Istituto nazionale di fisica nucleares

IR Infrarouge

IRO Isolant Rigide Ordinaire

IRSN Institut de Radioprotection et de Sûreté Nucléaire

**JEPP** Jours Équivalents Pleine Puissance

LISTE DES SIGLES 14

LDCI Laboratoire de Dosimétrie, Capteurs et Instrumentation

LED Light Emitting Diode
 LEU Low Enrichment Uranium
 LFF Light Fission Fragment
 LLB Laboratoire Léon Brillouin
 LMH Largeur à Mi-Hauteur

MONTLUCON MONitoring LUminescent Conversion Of Neutrons

MOX Mixed Oxide Fuel

MPPC Multi-Pixels Photon Counters

MSV Mean Squared ValueNA Numerical ApertureNEP Noise Equivalent Power

NIST National Institute of Standards and Technology

OES Optical Emission Spectroscopy
PDE Photon Detection Efficiency

PHA Pulse Height Analysis

PIN Positive Intrinsic Negative diode
PMMA Polyméthacrylate de méthyle

PMT Photomultiplier TubePN P-type N-type junction

PNL Protections Neutroniques Latérales

**PRM** Petit Réacteur Modulaire

**PSEG** Prototype de Scintillateur Electrodes-Gaz

PVC Polychlorure de vinyle
 RC Récupérateur de Corium
 REP Réacteur à Eau Pressurisée

**RF** Radiofréquence

**RIA** Radio Induced Absorption

RIB Remontée Intempestive de Barre
RNR Réacteur à Neutrons Rapides
RTE Réseau de Transport d'Électricité

SCENA Simulation des Collisions Électrons-Neutres en Atmosphères

SDCS Singly Differential Cross-Section
SIA Switched Integrator Amplifier

SiPM Silicon Photomultiplier
SMA SubMiniature version A

**SMN** Système de Mesure Neutronique

LISTE DES SIGLES 15

SNR Signal to Noise RatioSoC System on a Chip

**SPAD** Single Photon Avalanche Detector

TIA Transimpedance Amplifier

TIG Tungsten Inert Gas

**TTL** Time To Live

UOX Uranium Oxide Fuel

**URT** Uranium de Retraitement

UV Ultra-violet

**UVC** Ultra-violet bande C

"Tout le monde veut sauver la planète mais personne ne veut descendre les poubelles."

Jean Yanne

## Remerciements

Il y a du monde, beaucoup de monde à remercier, et par qui commencer? Par Grégoire qui a répondu à un étrange coup de téléphone venant du Portugal? Par Christian qui n'a pas cru au canular du physicien avec sa valise en carton, ou par ceux qui ont de près ou de loin contribué à ces 3 années de chasse au neutron?

Tout d'abord, à ceux dans la chaîne de commandement qui ont jugé bon d'une recherche expérimentale originale, assurant un épanouissement certain du premier intéressé. Merci à ceux qui pendant presque trois ans (le télétravail aidant) ont du supporter mil jours de doutes, de plaintes, de bières, de questions plus ou moins utiles, de discussions sans aucun rapport avec le sujet, de code qui plante, de transports nucléaires et de mesures... extraordinaires : Grégoire et Christian.

Il y a des rencontres qui changent le cours d'une thèse, merci à Alain et sa fine équipe, Francis, Florence, Anne ainsi que l'équipe d'exploitation du défunt réacteur ORPHÉE.

Merci à «ceux de CABRI» de m'avoir ouvert leurs portes et leurs tiroirs, l'implication de Johann et Jean-Daniel toute particulière pour effectuer ces expériences est à saluer.

Merci à Alexandra d'avoir passé autant de temps sur la «couscoussière» qu'il fallait assembler, gonfler, sortir, re-démonter, re-gonfler, et qui était toujours aussi lourde au fond de la boite à gant.

Il y a encore ceux dans l'ombre qui ont fait beaucoup, Éric, Isabelle, Philippe, Gilles et tant d'autres. Merci à mon ancienne équipe Portugaise qui n'a vraiment pas a rougir de ses méthodes vu les résultats obtenus ici où là-bas. Une fois de plus, je passe, et les réacteurs s'éteignent.

Il y a ensuite ceux qui m'ont aidé à titre personnel, simples piliers de bars, co-voitureurs, bons amis ou véritable moitié. À ceux-ci je veux dire merci... et surtout à bientôt.

## Résumé

Cette thèse de doctorat expose l'étude de la luminescence induite dans des capteurs à gaz de type chambre à fission, afin d'évaluer son utilisation dans le suivi de puissance des réacteurs nucléaires de quatrième génération comme ASTRID.

Le dépôt d'énergie dans un gaz par des ions lourds produits lors de fissions nucléaires dans une chambre à fission est d'ordinaire exploité pour sa capacité à produire des charges libres, qui peuvent être collectées avec des électrodes. Cette méthode, utilisée depuis le début de l'ère atomique, n'est pas sans inconvénients, et des axes d'amélioration ont été clairement identifiés. En estimant la production d'états excités du gaz d'une chambre à fission classique, on déduit que de la lumière peut être émise en son sein, et être détectée par un photo-détecteur. L'utilisation du signal optique plutôt qu'électrique apporte une robustesse accrue aux systèmes de mesures neutroniques, insensibles au bruit électromagnétique.

L'étude spectroscopique d'un plasma d'origine nucléaire dans un dispositif analytique dimensionné et conçu par nos soins permet d'enregistrer des spectres de raies d'émission caractéristiques de la scintillation du gaz. L'analyse de ses raies permet d'affirmer la supériorité de la détection optique de neutrons, car la pression et la composition du gaz de remplissage peuvent alors être estimées en ligne.

Parallèlement à nos activités expérimentales, un code de simulation de la dynamique de peuplement des niveaux des plasmas froids excités par ions-lourds a été développé afin d'optimiser de futurs détecteurs basés sur ce principe. Les temps caractéristiques nécessaires à la génération d'états radiatifs et la position des excitations autour d'une trace d'ionisation ont été estimés.

Plusieurs prototypes de capteurs de neutrons fonctionnant uniquement sur un principe optique ont été exploités dans des faisceaux de neutrons froids du réacteur ORPHÉE afin de vérifier la preuve de concept d'un tel système de mesure neutronique. Des essais dans le réacteur CABRI permettent quant à eux de quantifier la limite de détection, la linéarité et la dynamique du système.

Les très bons résultats apportés par ces trois volets valident la preuve de concept de la détection passive et en ligne de neutrons, capable d'auto-diagnostic, pour des applications exigeantes en milieu difficile.

## Abstract

This PhD thesis details the study of luminescence produced in gaseous detectors as fission chambers, to evaluate its use in 4th generation nuclear reactor power monitoring, as ASTRID. Energy deposition in the gas, from heavy-ions produced during nuclear fission in a fission chamber is usually used for its charge generation ability, that can be collected with electrodes. Such method has been used since the beginning of atomic era present disadvantages, and necessary improvements have been assessed.

By estimating fission chamber gas excited states production, one can deduce intrinsic light emission, and its detection by appropriate photo-detectors. Use of an optical signal against an electric one improves dependability on a neutron flux monitoring system, immune to electromagnetic noise.

Spectroscopic studies of a nuclear plasma in a self-designed analytical device allows observation of typical gas scintillation emission lines. Analysis of emission lines reinforce optical detection attraction, as pressure and gas composition can be monitored online.

Alongside our experiments, a simulation code dedicated to heavy-ions induced cold-plasma excited levels population has been produced to optimise future detectors relying on optical emission. Typical times encountered for excited states generation and their position around an ionization track have been estimated.

Several neutron detector prototypes based on the sole gas scintillation principle have been assessed in cold neutron beam lines of the ORPHÉE reactor, to validate a proof of concept for neutron monitoring. Experiments on the CABRI reactor allowed quantification of detection limit, linearity and dynamic range of our system.

The positive outcomes provided by these 3 lines of work validate the proof of concept of passive, on-line, and self-diagnosed neutron detection with high dependability in harsh environments.

# Introduction

## 1.1 Contexte

L'énergie est un enjeu actuel majeur et dont les moyens de production sont voués à évoluer avec la prise de conscience mondiale du dérèglement climatique. L'électrification du parc automobile Européen, la révolution numérique et la hausse globale de la consommation des pays en développement nécessitent d'augmenter sensiblement les capacités de productions électriques de base à faible coût et idéalement sans émissions carbonées tout en encourageant la sobriété énergétique des nouveaux habitats, véhicules et appareils électriques.

L'énergie nucléaire, choisie dès les années 70 comme socle de la production électrique française génère 72% de la production électrique métropolitaine, comme visible sur la Fig. 1.1. Le bouquet énergétique du pays fut choisi initialement pour assurer une indépendance vis à vis de la production électrique suite au choc pétrolier de 1973. Après 40 années d'exploitation, le parc électronucléaire français a évité le rejet massif de dioxyde de carbone dans l'atmosphère, permettant à la France de prétendre à un taux d'émission de gaz à effet de serre par habitant parmi les plus bas des pays industrialisés [1].

L'ensemble des opérations amont et aval du combustible d'une centrale nucléaire française ne représente que 15% du coût d'exploitation d'un réacteur avec un plan de recharge par tiers et sans recyclage [3]. Une centrale à gaz de grande puissance voit elle la majorité de son coût d'exploitation dans son combustible, 78% [4]. Cette spécificité permet à l'énergie électrique d'origine nucléaire d'absorber la volatilité éventuelle du prix de l'uranium, maintenant une compétitivité industrielle de la France [5]. Un doublement du prix des énergies primaires résulterait en une augmentation de 75% du prix du MWh produit par combustion du gaz, contre moins de 5% par fission d'uranium frais (UOX).

Malgré l'absence de rejets de gaz à effet de serre dans l'atmosphère, l'énergie d'origine nucléaire produit des déchets radioactifs à vie longue, valorisables.

Afin de réduire la quantité de déchets à vie longue produite par ses centrales nucléaires, la France a développé le recyclage des matière fissiles et fertiles dès la divergence de ses premiers réacteurs de puissance. Le combustible nucléaire MOX (Mixed OXides), un mélange d'uranium

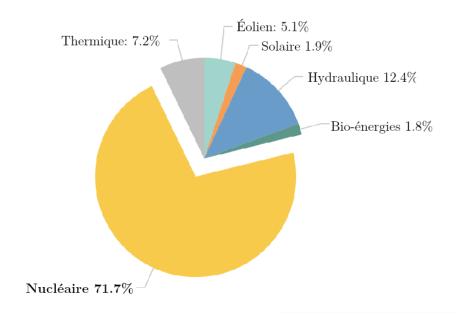


FIGURE 1.1 – Répartition des sources de production d'électricité en France pour l'année 2018. 548.6 TWh ont été produits, dont 86 TWh exportés. Source : RTE-France [2]

frais faiblement enrichi  $^1$  et de plutonium, permet de recycler une seule fois  $^2$  le plutonium issu des combustibles nucléaires usagés français (soit 4 % du volume) dans les Réacteurs à Eau Pressurisée (REP) de première génération —promis à l'arrêt à partir de 2020—, alors que l'uranium appauvri de retraitement (URT) est stocké comme réserve stratégique  $^3$ .

L'URT n'est à ce jour pas encore valorisé dans le circuit de fabrication du MOX car il présente des isotopes de l'uranium nécessitant des mesures de télémanipulation à cause de sa conteneur en  $^{232}$ U et  $^{234}$ U, émetteurs gammas  $^4$ .

Le multi-recyclage des combustibles nucléaires usés dans des réacteurs de nouvelle génération autoriserait une indépendance énergétique quasi-totale, une optimisation du taux de combustion des métaux lourds<sup>5</sup>, tout en réduisant significativement la durée de vie des déchets hautement radioactifs [6] actuellement stockés en surface, dans l'attente d'une solution d'enfouissement profond [7].

Le Commissariat à l'Énergie Atomique et aux Énergies Alternative a expérimenté dès les années 1960 des Réacteurs à spectre de Neutrons Rapides (RNR), autorisant la transmutation de déchets à vie longue, mais également la sur-génération de matière fissile [8][9].

Un RNR nécessite un caloporteur interagissant peu avec les neutrons issus des fissions du combustible afin de conserver un spectre énergétique centré autour du méga-électronvolt (MeV) au lieu des quelques milli-électron-volts (meV) exploités pour la fission en REP <sup>6</sup>. Les neutrons

<sup>1.</sup> L'enrichissement d'un combustible nucléaire vise à augmenter la proportion d'isotope fissile d'un élément, souvent de l' $^{235}\rm U$  dans un mélange  $^{235}\rm U$  et  $^{238}\rm U$ 

<sup>2.</sup> La trop grande radioactivité des assemblages MOX usés, et une isotopie défavorable ne rendent pas leur recyclage en REP viable.

<sup>3.</sup> Aujourd'hui environ 40 000 tonnes, soit 40 années de réserve s'il est valorisé à 100%

<sup>4.</sup> Un élément de combustible UOX neuf se manipule à la main, sans protection radiologique.

<sup>5.</sup> L'énergie extraite du combustible, exprimée en GW-jour/tonne de métaux lourds, ou encore la fraction des atomes ayant subit une fission, en pourcent.

<sup>6.</sup> L'énergie la plus probable des neutrons se situe autour de 130 meV en REP, contre 300 keV en RNR.

rapides ont une probabilité plus grande <sup>7</sup> de fissionner ou transmuter des actinides mineurs que les neutrons thermiques. Les produits de fission ont une durée de vie n'excédant pas 300 ans, alors que les actinides mineurs, actuellement non valorisables en REP, restent radioactifs pendants des centaines de millier d'années. Fissionner ces éléments dans un réacteur rapide réduirait l'inventaire radioactif pour les générations à venir tout en produisant de l'énergie thermique et électrique [10].

L'apport de RNR dans le parc suivant présente les avantages suivants;

- 1. Meilleur rendement de combustion, en passant de 60  $GW_j/t_{ML}$  8 à plus de 140  $GW_j/t_{ML}$
- 2. Meilleur rendement thermodynamique grâce à une température du caloporteur plus élevée (de 31% à 38%  $^9)$
- 3. Valorisation d'un stock de 67.7 tonnes de plutonium civil $^{10}$
- 4. Valorisation d'un stock de 345 275 tonnes d'uranium appauvri 11
- 5. Réduction d'un stock de déchets radiotoxiques jusqu'à un facteur  $120 [11]^{12}$ .

À ce jour, le Canada, Le Royaume-Uni, l'Inde, la Chine et la Russie construisent des réacteurs à neutrons rapides, de types sels-fondus, gaz et sodium liquide. Le projet de réacteur électronucléaire à caloporteur sodium ASTRID (Advanced Sodium Technological Reactor for Industrial Demonstration), porté par le CEA prévoyait la construction d'un démonstrateur technologique affichant une puissance électrique de 600 MW [12]. Profitant des dernières avancées technologiques, des nouvelles normes de sûreté et du retour d'expérience significatif obtenu sur les réacteurs Superphénix, ASTRID se présentait comme un réacteur intégré en piscine à coefficient de vide <sup>13</sup> négatif [13][14][15] disposant d'un récupérateur de corium <sup>14</sup> [16] afin de satisfaire les niveaux sûreté actuel.

## 1.1.1 Notions de neutronique

Un réacteur nucléaire produit en son cœur des réactions de fission, où un noyau de métal lourd rendu instable par la capture d'un neutron va se scinder en au moins deux fragments, qui s'accompagnent de quelques <sup>15</sup> neutrons. Ces neutrons libres peuvent à nouveau engendrer des fissions dans d'autres atomes *fissiles* ou être capturés par une espèce qui deviendra fissile : c'est la capture *fertile*. Le type de réacteur (thermique ou rapide) conditionne le type de combustible à utiliser et la géométrie du cœur. Un réacteur à neutrons thermiques ne peut fissionner que du <sup>239</sup>Pu,<sup>235</sup>U <sup>16</sup> ou <sup>233</sup>U, mais la forte présence (> 95 %) d'<sup>238</sup>U se transformant en <sup>239</sup>Pu dans le combustible apporte un supplément de matière fissile durant l'utilisation. Un réacteur rapide consiste en un petit cœur nourricier habituellement composé de <sup>239</sup>Pu

<sup>7.</sup> Une plus grande section efficace, usuellement exprimée en barns, valant 1E-24 cm<sup>2</sup>.

<sup>8.</sup> Taux prévu pour l'EPR, 55 sur un REP

<sup>9.</sup> Superphénix avait un rendement de 41.3% grâce à un échangeur sodium-eau au lieu de sodium-azote

<sup>10.</sup> La fission d'un gramme dégage une énergie de 40 GJ, la même quantité d'énergie qu'une tonne d'équivalent pétrole, TEP.

<sup>11.</sup> Si tout ce stock fissionnait, cela assurerait plus de 5000 ans de production électrique de 2020.

<sup>12.</sup> En considérant un parc de 12 RNR et 60 réacteurs REP.

<sup>13.</sup> Un coefficient de vide du cœur positif entraîne l'emballement de la réaction nucléaire en cas de perte ou ébullition du réfrigérant. Un coefficient négatif auto-régule la puissance vers une valeur stable.

<sup>14.</sup> Le Corium est un magma de combustible nucléaire et de matériaux fondus à son contact.

<sup>15.</sup> En moyenne 2.5, mais certains seront absorbés.

<sup>16.</sup> Seul cet isotope fissile existe dans la nature, à hauteur de 0.7~% de l'uranium Terrien.

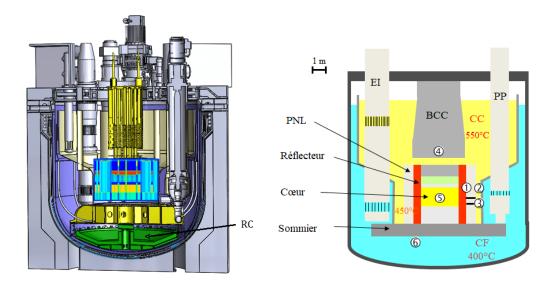


FIGURE 1.2 – Vue en coupe du réacteur expérimental ASTRID dans sa phase de design préliminaire (gauche), l'imposant récupérateur de corium (RC) en bas de la cuve écranterait des détecteurs de neutrons placés sous celle-ci. Schéma des organes principaux de ASTRID et emplacements étudiés pour les de détecteurs de neutrons (droite). 1 : Après réflecteur latéral (A/REFL), 2 : Après PNL, 3 : Après PNL avec guide de neutrons (A/PNL-GN), 4 : Partie basse du BCC (B/BCC), 5 : Centre cœur (C/C), 6 : Support cœur (S/C)

fortement enrichi, et de couvertures fertiles en <sup>238</sup>U ou de <sup>232</sup>Th <sup>17</sup>. Le type de métal lourd fertile sélectionné dans les couvertures dépend de la politique énergétique du pays où sont implantés les réacteurs rapides <sup>18</sup>. Les Eq. 1.1 et 1.2 présentent une réaction de fission et de capture fertile telles qu'identifiables dans le cœur nourricier et les couvertures de ASTRID :

$$^{239}Pu + n \rightarrow HFF + LFF + 2.3 \ n + \gamma + 189.5 \ MeV$$
 (1.1)

$$^{238}U + n \rightarrow ^{238}U + \beta^{-}(23.46 \ min) \rightarrow ^{239}Np + \beta^{-}(2.36 \ jours) \rightarrow ^{239}Pu$$
 (1.2)

où HFF et LFF sont respectivement les fragments de fission lourds et légers moyens <sup>19</sup>. Plus de 99 % des neutrons générés par la fission nucléaire sont émis instantanément, le flux de neutron est ainsi proportionnel à la puissance générée dans le cœur. Une faible proportion de neutrons dite «retardée» sera émise par des produits de fission, les *précurseurs*, dans un temps variable allant de quelques centaines de millisecondes à un minute <sup>20</sup>. Ce sont ces neutrons retardés qui permettent de piloter un réacteur nucléaire car ils apportent une constante de temps suffisamment longue pour être compatible avec des systèmes mécaniques et électriques. On rappelle l'équation cinétique d'un réacteur nucléaire homogène sans source de démarrage

<sup>17.</sup> Une surgénération de matière fissile est alors possible.

<sup>18.</sup> L'Inde compte valoriser ses vastes ressources de Thorium dans des réacteurs rapides pour ensuite alimenter ses réacteurs thermiques en  $^{233}$ U. La France et le Royaume-Uni s'orientent vers la combustion de stocks d' $^{238}$ U et de  $^{239}$ Pu.

<sup>19.</sup> Dans la réalité, les masses des deux espèces sont réparties sur une distribution continue, avec des pics autour de 95 et 135 amu.

<sup>20.</sup> Ils sont classés dans des groupes structurés par leur période radioactive, 6 à 8 pour les études de réactivité.

en ne considérant qu'un groupe de précurseurs :

$$\frac{dN_n(t)}{dt} = \frac{\rho - \beta}{\Lambda} N_n + \lambda C \tag{1.3}$$

$$\frac{dC}{dt} = \frac{\beta}{\Lambda} N_n - \lambda C \tag{1.4}$$

avec  $N_n$  la population de neutrons, C celle des précurseurs de neutrons retardés,  $\rho$  la réactivité,  $\Lambda$  la durée de génération moyenne des neutrons prompts,  $\beta$  la fraction de neutrons retardés du groupe de précurseurs et  $\lambda$  sa constante de décroissance.

La réactivité  $\rho$  dépend de la position des barres de contrôle, de la température du modérateur et de celle du combustible, entre autres. Elle doit être inférieure à la fraction effective des neutrons retardés,  $\beta$ , afin de garantir des chaînes de fission de longueur finie tel que  $\rho < \beta$ . À puissance stationnaire, le ratio du nombre de neutrons produit à chaque fission sur ceux

À puissance stationnaire, le ratio du nombre de neutrons produit à chaque fission sur ceux absorbés par les structures, les réactions de fission, de captures et autres fuites est strictement égal à 1. Si les barres de modération se relèvent, moins de neutrons seront absorbés, ce qui portera le ratio à plus de 1. Ce facteur  $k_{eff}$  de multiplication effective peut être relié à la réactivité  $\rho$  par :

$$\rho = \frac{k_{eff} - 1}{k_{eff}} \tag{1.5}$$

Les variations de  $k_{eff}$  étant très faibles, on approxime souvent  $\rho$  par :

$$\rho = \log k_{eff} \tag{1.6}$$

Un réacteur en fonctionnement stationnaire aura donc une réactivité nulle.

### 1.1.2 Utilisations des détecteurs de neutrons

La population de neutrons étant proportionnelle au taux de fission, une mesure du flux de neutrons permet d'estimer trois paramètres :

- 1. La puissance globale du réacteur à partir du flux de neutrons (contrôle)
- 2. La réactivité du cœur à partir du temps de doublement du flux (contrôle)
- 3. Une puissance locale, pour éviter une fusion partielle du cœur (sûreté)

Des détecteurs de neutrons sont également placés dans le ciel de pile  $^{21}$  et dans le circuit primaire de sodium afin de détecter les neutrons retardés émis par des produits de fission relâchés par des aiguilles de combustible ayant subi une rupture de gaine (DNDI  $^{22}$ ).

Compte tenu de leur criticité dans une chaîne de pilotage et contrôle d'un réacteur nucléaire, les détecteurs de neutrons doivent afficher une fiabilité exemplaire. Le taux de disponibilité planifié pour ASTRID —80% [17]— demandait une instrumentation de suivi de puissance particulièrement robuste et capable d'auto-diagnostic afin d'établir des plans de maintenance préventive sur la base de signaux précoces. Un arrêt intempestif du réacteur en parfait état de marche dû à un défaut de mesure de puissance serait incompatible avec le taux de disponibilité

<sup>21.</sup> Zone entre le modérateur et le couvercle, généralement remplie d'argon.

<sup>22.</sup> Détection de Neutrons Différés Intégrée.

recherché, même pour un démonstrateur.

Une kyrielle de détecteurs de neutrons est d'ordinaire insérée dans des canaux d'instrumentation en cuve ou hors cuve afin d'assurer une redondance de la mesure globale (intégrée) et de vérifier l'homogénéité de la puissance dans le cœur. Chaque détecteur produit un faible courant électrique (quelques microampères) qui est acheminé par des câbles blindés contre les perturbations électromagnétiques vers des chaînes d'acquisition et de traitement du signal. Les informations caractérisant la répartition du flux dans différentes zones du cœur nucléaire sont envoyées au système de contrôle-commande afin de protéger le cœur contre toute excursion de puissance ou point chaud qui pourrait conduire à une fusion locale du combustible.

Le réacteur ASTRID possédant un épais récupérateur de corium sous sa double-cuve blindée, représenté en vert sur la Fig. 1.2, il n'est pas possible de positionner les détecteurs de neutrons aux endroits principalement utilisés sur SUPERPHÉNIX : le flux de neutron étant trop atténué par la distance, les matériaux céramiques fusibles. Un placement en cuve des détecteurs de neutrons s'avère incontournable vu l'obstacle que représente le récupérateur de corium. La Fig. 1.2 présente les emplacements étudiés pour les détecteurs de neutrons, en cuve, avec deux régions d'implantation retenues : au dessus et en dessous du cœur, sous le sommier. Ces emplacements offrent un positionnement au plus près de toute déformation longitudinale du flux afin de détecter un incident de type remontée intempestive de barre de contrôle (RIB) pouvant conduire à un échauffement local, mais présentent toutes des conditions d'exploitation difficiles. L'emplacement 4 de la Fig 1.2, sous le bouchon couvercle cœur (BCC) est retenu pour la suite de notre étude, il présente les conditions suivantes [18][19] :

- 1. Température ambiante entre 430 et 550 °C
- 2. Environnement sodium liquide
- 3. Débit de fluence neutron à pleine puissance de l'ordre de 1E+10 n.cm<sup>-2</sup>.s<sup>-1</sup>
- 4. Débit de dose de rayons gamma jusqu'à 600 Gy/h
- 5. Débit de fluence gamma à pleine puissance de l'ordre de 1E+11  $\gamma$ .cm<sup>-2</sup>.s<sup>-1</sup>
- 6. Aucune inspection visuelle possible

La technologie de détecteurs de neutrons en cuve de RNR-Na repose sur des capteurs à gaz de type chambre à fission car leur pouvoir de discrimination neutron/gamma est sensiblement plus élevé que celui des chambres d'ionisation à dépôt de bore [20]. Le domaine d'utilisation des chambres à fission peut dépasser dix décades de puissance, une étendue nécessaire pour un suivi neutronique depuis les états de démarrage ou d'arrêt jusqu'à la pleine puissance.

Une chambre à fission est une chambre d'ionisation fonctionnant dans la zone de saturation : aucune amplification du signal n'est effectué par avalanche électronique mais le capteur est capable d'une excellente discrimination en énergie et ne souffre pas d'un temps de relaxation <sup>23</sup>. Les fragments de fission issus de dépôt fissile mince positionné sur une électrode produisent des charges dans le gaz de remplissage, plus d'un million par fragment. Si une différence de potentiel est appliquée entre les électrodes, les charges dérivent dans l'espace inter-électrodes sous l'action du champ électrique et induisent un courant, comme représenté Fig. 1.3.

Une chambre à fission produit un signal électrique qui peut être mesuré de trois manières : Si la fréquence de production des charges, et donc le flux de neutron, est faible ; il est possible

<sup>23</sup>. Une chambre d'ionisation en mode Geiger, souffre par exemple d'un temps mort nécessaire à l'extinction de l'avalanche électronique

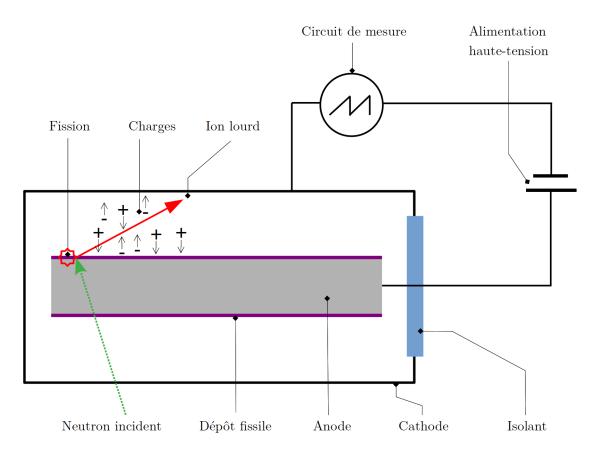


FIGURE 1.3 – Schéma simplifié d'une chambre à fission classique. La tension de polarisation se situe généralement dans la gamme de 100 à 800 V. Le circuit de mesure et l'alimentation peuvent se trouver à des centaines de mètres de la chambre.

de **compter des impulsions** de faible durée (de l'ordre de la dizaine de nanosecondes) dans un circuit de conditionnement du signal, généralement constitué d'un amplificateur de charge (CSP) et d'un analyseur de hauteur d'impulsion (PHA) ou d'un compteur d'impulsions. Ce système n'est en général pas utilisé pour le suivi neutronique et seul le courant moyen est acquis par un TIA <sup>24</sup>.

Lorsque le taux de production des impulsions est important, et qu'un recouvrement des impulsions s'opère, le signal peut être alors mesuré comme un **courant continu**.

L'acquisition de la valeur moyenne de ce signal est appelée «mode courant», il est employé dans nombre d'applications de suivi de puissance des réacteurs à spectre thermiques, hors cuve. La mesure de la moyenne du courant produit ne permet pas d'identifier la proportion du signal provenant du champ gamma, intense dans le cas d'un placement loin du cœur dans un bain de Sodium activé, particulièrement radioactif. Une forte température ambiante tend à augmenter le courant de fuite du détecteur <sup>25</sup>, dont le signal est alors fonction du flux de neutron, du champ gamma et de la température locale [21]. Pour ces raisons de biais en fonction de la température, le mode courant n'a pas été retenu pour ASTRID, avec un placement des détecteurs en cuve.

La discrimination des contribution gamma et neutron au signal résultant d'une chambre à fission est possible en observant la variance de son signal. Les ions lourds issus du dépôt fissile produisant sensiblement plus de charges que les photons frappant les structures, une discrimination est réalisable : c'est le **mode Campbell**.

Le mode Campbell à l'ordre 2 (ou  $MSV^{26}$ ) et ses ordres supérieurs ( $HOC^{27}$ ) sont étudiés au CEA pour discriminer le signal gamma induit par l'activation du sodium de ASTRID [22][19][23][24][25]. Le cumulant à l'ordre 2 du signal d'une chambre à fission, qui est une distribution de Poisson, est égal à la variance  $^{28}$  de ce signal. Il est possible de généraliser cette méthode qui lie le cumulant  $k_n^{(st)}$  au taux de comptage  $s_0$  tel que :

$$k_n^{(st)} = s_0 \langle x^n \rangle \int_{-\infty}^{+\infty} f(t)^n dt$$
 (1.7)

où la forme de l'impulsion f(t) et la distribution de l'amplitude  $x^n$  sont connus par calibration et regroupés dans un coefficient  $C_n$ , l'équation devient alors simplement :

$$k_n^{(st)} = s_0 \cdot C_n \tag{1.8}$$

où la proportionnalité entre le taux de comptage et le cumulant est directement exploitable. La Fig. 1.4 présente le profil d'une montée en puissance du réacteur ISIS <sup>29</sup> avec une chambre à fission haute-température gonflée au xénon, telle que proposée pour ASTRID. On note que les domaines de linéarité du mode Campbell à l'ordre 2 et le mode impulsion ne se recouvrent pas, un système de mesure basé uniquement sur ces deux modes aurait donc un domaine puissance

<sup>24.</sup> Transimpedance Amplifier. Un amplificateur convertissant un courant vers une tension.

<sup>25.</sup> Les quelques ppm de polluants dans les isolants en Alumine transforment ceux-ci en semi-conducteurs, à haute température.

<sup>26.</sup> Mean-Squared Value.

<sup>27.</sup> Higher-Order Campbell

<sup>28.</sup> Égale au carré de l'écart type.

<sup>29.</sup> Réacteur de recherche de 700 kW, définitivement arrêté.

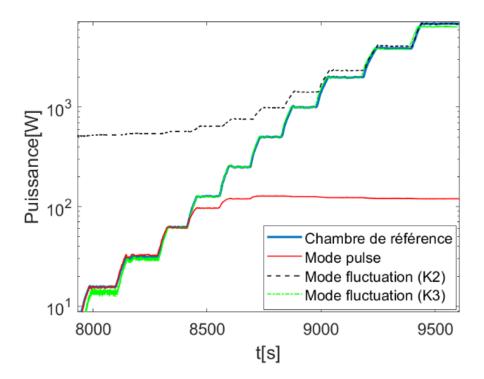


FIGURE 1.4 – Courbe de puissance du réacteur ISIS mesurée par l'exploitant avec une chambre à ionisation utilisée en mode courant (bleu), par G.Galli avec une CFHT expérimentale en mode impulsion (rouge), cumulant 2ième (noir), et 3ième ordre (vert). Données issues de [26].

qui ne peut être évalué avec certitude.

Un recouvrement des modes impulsion et Campbell à l'ordre 3 a lieu sur plusieurs décades de puissance, ce qui permet de vérifier le bon fonctionnement de la chaîne de mesure lors de la montée en puissance du réacteur, mais il produit un biais à haut flux, ce qui limite sa plage d'utilisation.

Seule une réduction de la largeur des impulsions produites dans une chambre à fission pourrait permettre le recouvrement des modes impulsion et Campbell ordre 2, elle est généralement effectuée en ajoutant 4 % d'azote dans le gaz de remplissage, ce qui est impossible dans ASTRID pour des raisons détaillées plus bas.

D'autres détecteurs de neutrons comme les collectrons [27], les calorimètres [28], les scintillateurs [29] ou les fibres scintillantes [30] existent mais leur domaine d'utilisation s'avère incompatible avec les conditions rencontrées en cuve de ASTRID.

Ces différents capteurs, peu encombrants et pour certains optimisés pour des mesures à fort flux rapide, ne sont pas adaptés à une exploitation à long terme, manquent de dynamique, et se bornent à la cartographie de cœurs de démarrage ou aux maquettes critiques <sup>30</sup> [31]. Les chambres à fission dites «Haute-Température» exploitées en mode Campbell furent pressenties pour l'instrumentation en cuve d'un RNR-Na de puissance [25] [22] [32] [20] [33], ce choix présente néanmoins des limitations techniques identifiées que nous récapitulons ci-après. Une description détaillée des chambres à ionisation classiques existe dans les ouvrages [34] et [31].

#### 1.1.3 Limitations des solutions actuelles

Les capteurs à gaz basés sur l'ionisation d'un gaz ou d'un mélange de gaz sont une technologie éprouvée de détection des rayonnements ionisants et des neutrons en milieu difficile. Le Laboratoire de Dosimétrie, Capteurs et Instrumentation (LDCI), anciennement rattaché aux maquettes critiques Éole et Minerve<sup>31</sup> développe des solutions de mesure de flux de neutrons pour les réacteurs expérimentaux français et étrangers. Le laboratoire dispose d'un atelier de fabrication de chambres à fission équipé d'une machine de soudage par laser, d'un laboratoire de chimie, d'un appareil de radiographie X, de diverses boîtes à gants et d'un système de pompage-remplissage de gaz à haute pureté. Ces atouts permettent au LDCI de produire des chambres à fission en petite série avec une vaste gamme de matière fissiles et fertiles.

Le choix de matières fissiles plutôt que du bore ou du lithium dans les chambres d'ionisation permet d'améliorer la discrimination du signal neutron de celui généré par les gammas en induisant 10 à 50 fois plus de charges par neutron détecté dans l'espace inter-électrode. N'étant pas une panacée, les chambres d'ionisation se heurtent néanmoins aux problématiques suivantes, étudiées dans ce laboratoire;

## Décharges partielles

Dans un réacteur rapide, la forte température ambiante (jusqu'à 600°C) change notablement les propriétés des matériaux isolants employés dans une chambre à fission, comme

<sup>30.</sup> Réacteurs ne produisant que quelques Watts, pour des expériences de physique.

<sup>31. 1</sup> kW et 100 W, respectivement, fermés en 2017

l'Alumine. Le phénomène parasite de Décharge Partielle (DP) génère une impulsion d'intensité similaire à une collecte de charge réelle et représente un défi pour le suivi neutronique. Ces décharges électriques peuvent être dues à l'avalanche électronique générée par un électron accéléré au-delà du potentiel d'ionisation dans des poches de gaz incrustées dans les isolants électriques [35], comme ceux supportant les électrodes recouvertes de matière fissile. Des champs électriques faibles, de l'ordre de 200 V/mm suffisent à produire des décharges partielles, bien en deçà des tensions de claquage des gaz nobles employés dans l'enceinte gazeuse. Avec l'utilisation d'isolants de grande qualité préalablement dégazés pour la fabrication des CFHT <sup>32</sup>, les décharges partielles restent un signal parasite rare, de quelques dizaines de coups par seconde mais pouvant générer plus de 50 % des impulsions enregistrées par la chaine de mesure à bas taux de comptage.

Une discrimination du signal induit par les DP s'avère possible par traitement numérique des données [25] [36] d'impulsions produites par la chambre à fission, permettant de mitiger leur effet. L'utilisation du xénon à la place de l'argon comme gaz de remplissage pour diminuer les décharges à l'intérieur du détecteur semble privilégié pour une utilisation sur ASTRID, mais il produit des impulsions sensiblement plus longues, de l'ordre de 300 ns, et l'impact sur la limite haute du cumulant d'ordre 3 est encore peu étudié. En outre, un gaz adjoint (usuellement de l'azote) visant à réduire la largeur des impulsions n'est pas envisageable vu la décomposition rapide du gaz polyatomique sous l'effet conjugué des radiations et de la chaleur ainsi que sa migration dans les matériaux de la structure.

Des essais menés sur SUPERPHÉNIX ont montré la disparition totale du gaz adjoint dès 3000 h d'irradiation [37]. Cette limitation a poussé à l'adoption de l'argon ou du xénon [38] ultra-pur comme gaz de remplissage exclusif des futures chambres à fission utilisées en réacteur rapide, et a l'exploitation de leur signal avec les cumulants d'odre 2 et 3.

#### Perturbation extérieure du signal électrique

Un réacteur de puissance possède son électronique de contrôle-commande loin de la source de rayonnements afin de ne pas risquer d'erreurs informatiques et d'assurer une maintenance possible en cas de contamination de l'îlot nucléaire. Le préamplificateur du signal du détecteur de neutron est situé au plus près du passage de dalle, pour éviter que les câbles ne fassent antenne et n'affaiblissent le signal <sup>33</sup>. Les centaines de mètres de câble nécessaires jusqu'aux automates sont d'autant plus d'antennes pour les perturbations électromagnétiques générées par les nombreuses pompes, ventilateurs et convertisseurs de tension en tout genre. Des impulsions de haute fréquence (de l'ordre de la centaine de MHz) et de faible amplitude (de l'ordre du micro-ampère) doivent être totalement blindées sur des distances dépassant la centaine de mètre.

## Fuite du gaz de la chambre d'ionisation

Les capteurs à gaz sont gonflés à basse pression (entre 1 et 15 bars suivant la géométrie) d'un gaz noble de haute pureté.

Les passages étanches, nécessaires à l'introduction des électrodes et des câbles électriques dans

<sup>32.</sup> Chambre à Fission Haute Température, concues pour des applications en réacteurs rapides.

<sup>33.</sup> En général, une vingtaine de mètres entre le détecteur et l'amplificateur.

un capteur à gaz, et l'enveloppe soudée sont autant de points faibles à l'usure. Une fuite lente du à une microfissure du capteur réduit peu à peu l'intensité du signal de sortie, ce qui peut, selon le mode de mesure utilisé être interprété comme une irrégularité du flux neutronique dans le cœur. Cette information, transmise au contrôle-commande, peut mener à la chute des barres de contrôle sur un cœur parfaitement sain, réduisant d'autant plus la disponibilité du réacteur. Si la fuite s'opère lentement, une identification du mécanisme est possible par analyse du signal.

#### Courant de fuite d'une chambre à fission

La résistance interne des chambres à fission est dépendante de la température d'utilisation et du flux de radiation incident, influant des défauts et des polluants dans les matériaux. À des températures proches de  $600^{\circ}$ C, l'alumine se comporte comme un semi-conducteur extrinsèque [21], du fait de la présence d'impuretés (entre 1% et 3%) et voit sa résistivité fortement chuter. Une chambre à fission haute-température CFUC07 exploitée sur PHÉNIX passerait d'une résistance de  $2.6E+12~\Omega$  à l'ambiante, à  $3.7E+7~\Omega$  à  $650^{\circ}$ C [39]. Pour compenser ce courant de fuite, un anneau de garde et une paire de conducteurs blindés sont nécessaires, ce qui complexifie significativement le système de mesure et double le nombre de traversées de dalles.

La solution envisagée dès la genèse du projet ASTRID est le recours aux mode de comptage d'impulsion et l'exploitation des signaux aux cumulants d'ordre 2 et 3. À haut taux de comptage, au delà de 1E+8 cps, le cumulant d'ordre 3 souffre d'un biais sous-estimant le flux réel.

## Encombrement général

Placer les détecteurs de neutrons en cuve oblige l'établissement de traversées étanches au sodium à haute température, et au gaz de ciel de pile. Le diamètre d'une traversée de cuve est directement proportionnel à celui de la chambre à fission sélectionnée. Si un placement hors-cœur est retenu, des chambres à fission comportant 2 ou 3 paires d'électrodes [40] sont requises pour assurer une masse fissile déposée importante (jusqu'à 1.7 grammes pour une CFHT07). Une chambre à fission optique ne nécessitant pas de polarisation et d'électrodes, un encombrement final plus réduit est attendu.

#### Charges d'espace

Le phénomène de charge d'espace est problématique lors de pics de puissance. La conception de ASTRID et les niveaux de flux rencontrés ne provoquent pas ce problème de charge d'espace, mais nous le mentionnons pour le développement de capteurs dédiés aux très forts flux.

Les ions créés lors de l'ionisation le long du trajet de l'ion lourd projectile (fragment de fission) au sein du gaz peuvent subir des recombinaisons, une diffusion et un déplacement induits par le champ électrique de polarisation.

Parce que les ions sont plus lourds que les électrons — d'un facteur de 73E+3 pour l'argon—, leur vitesse de dérive est également inférieure de plusieurs ordres de grandeur à celle des électrons : leur collecte en est d'autant plus longue.

En cas de fort flux incident de neutrons sur une chambre à fission, l'accumulation locale des charges positives génère une perturbation du champ électrique autour de la cathode, modifiant ainsi la vitesse de dérive des charges et donc la forme et l'amplitude des impulsions. En mode Campbell, si l'on considère la forme d'impulsion constante en fonction du type de particule incidente, l'effet de charges d'espace fausse la mesure. De manière similaire, en mode courant, le courant moyen produit par chaque impulsion se retrouve modifié, ce qui induit une déviation de la courbe de réponse de la chambre d'ionisation. Même si une calibration de la chambre permet de corriger à posteriori la linéarité du signal, cet effet contraint fortement la quantité de matière fissile à déposer, et donc la plage de mesure de la chambre à fission.

Une mitigation de ce phénomène est possible en réduisant la distance inter-électrode, diminuant ainsi le temps de collecte des ions [41].

## 1.2 Étude proposée

L'objet de cette thèse n'est pas d'apporter des solutions éventuelles aux différentes limitations d'un système de mesure neutronique classique basé sur une chambre à ionisation, mais d'étudier une technologie de rupture non soumise à ces différentes contraintes.

## 1.2.1 Phénomène physique exploité

Compte-tenu des nombreuses limitations et modes de défaillance possibles d'une chambre à ionisation classique, une approche différente de la détection en ligne des neutrons est proposée. La scintillation d'un gaz rare à pression atmosphérique le long de la trace de ralentissement d'un ion lourd est un phénomène peu documenté pour le suivi de puissance d'un réacteur <sup>34</sup>, mais qui apparaît prometteur.

Les collisions effectuées par un ion projectile P sur un gaz cible A ionise ce dernier et génère des électrons graines le long de sa trajectoire, et ce dans toutes les directions et suivant une distribution en énergie continue, d'une moyenne autour de 40 eV:

$$P + A \rightarrow A^{+} + e^{-} + \sim 40 \ eV \quad \text{(ionisation)}$$
 (1.9)

Ces électrons dont l'énergie initiale est de quelques dizaines d'électrons-volts peuvent exciter et ioniser le gaz initialement neutre :

$$e^- + A \rightarrow A^* + e^-$$
 (excitation) (1.10)

$$e^- + A \rightarrow A^+ + e^- + e^-$$
 (ionisation) (1.11)

Notons que l'excitation directe par collision avec des ions lourds est possible, mais que les sections efficaces sont en général au moins un ordre de grandeur inférieures à l'ionisation par impact d'ions, comme visible Fig. 1.5. L'excitation et l'ionisation du même gaz par des électrons peu énergétiques (environ 40 eV) ont en revanche des sections efficaces du même ordre de grandeur (Fig. 1.5).

L'énergie moyenne nécessaire à la création d'une paire ion-électron dans un gaz est dénotée W, elle est supérieure au potentiel d'ionisation de l'électron situé sur la couche externe de l'atome,  $B_i$  et vaut entre 20 et 47 eV pour les gaz usuels [42].

W est pratiquement constant quel que soit le type de projectile, sa charge et son énergie cinétique car le transfert d'énergie est principalement opéré par les électrons graines et leurs générations futures. De cette remarquable propriété, on peut donc estimer le nombre de paires ions-électrons généré par le ralentissement d'un ion d'énergie  $E_0$  en négligeant les collisions nucléaires :

$$N_{pair} = \frac{E_0}{W} \tag{1.12}$$

Un proton de 1 MeV produirait 2.1E+4 paires électrons-ions dans de l'Hélium, une quantité non négligeable d'excitation, 1.2E+4 et de collisions élastiques, majoritairement dues à ces rayons delta et non pas directement à l'ion projectile. Ainsi l'excitation d'un gaz compte jusqu'à 40% de l'énergie transmise par un ion-lourd à des énergies cinétiques de l'ordre du MeV/amu [46][42], son exploitation a côté de l'ionisation est donc pertinente.

Si les atomes de gaz se désexcitent spontanément en émettant des photons compris dans la

<sup>34.</sup> La luminescence des gaz a été principalement étudiée pour les lasers nucléaires à vocations militaires.

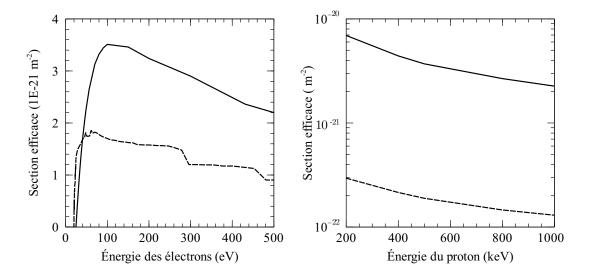


FIGURE 1.5 – Sections efficaces d'ionisation (trait plein) et d'excitation sommée sur les 42 premiers niveaux (tirets) de l'hélium par impact d'électrons [43] (gauche) et par impact de protons [44] [45] (droite).

zone visible et proche-infrarouge, on obtient alors un capteur passif dont le signal utile n'est plus électrique (transmis par câble), mais optique (transmis par fibre optique, puits de lumière ou assemblée). Le spectre ultraviolet, mal transmis dans les fibres optiques et absorbé par l'air, n'est pas adapté à la mesure en réacteur.

L'utilisation d'un signal optique plutôt qu'électrique supprime les points suivants :

- 1. décharge partielle
- 2. perturbation d'un signal électrique par un champ électromagnétique
- 3. effet de la charge d'espace sur le signal (sur réacteur de recherche)
- 4. passage étanche pour l'insertion d'une électrode
- 5. électronique haute-tension (source de pannes)
- 6. amplificateur près du réacteur (maintenabilité)
- 7. conducteur à faible rayon de courbure

L'excitation et l'ionisation du gaz au passage d'un ion lourd projectile ayant lieu, qu'il y ait ou non un courant de polarisation, ce dernier devient inutile si l'on ne souhaite pas collecter les charges électriques.

## 1.2.2 Retour d'expérience de la scintillation gazeuse

La scintillation d'un gaz rare sous l'effet de radiation, testée dans les années 50 par le CEA de Saclay sur la pile EL2 a fait l'objet d'une thèse [47], de trois notes techniques [48] [49] [50] et de deux publications [51] [52]. À l'époque, la technologie de détection de faible flux de photons reposait sur des tubes photo-multiplicateurs (PMT), aveugles dans la zone spectrale du

proche-infrarouge et des ultra-violets bande C. Un convertisseur de longueur d'onde (composé organique fluorescent) était déposé sur la fenêtre du PMT afin de rendre détectable les émissions ultraviolettes (UVC) entre 126 et 147 nm du xénon excité par les fragments de fission de l'Uranium 235. Le spectre visible et infrarouge, n'était lui pas utilisé. La très grande réactivité de ce système de détection couplée à une résolution énergétique encore jamais atteinte s'étaient pourtant heurtées aux points suivants :

- 1. nécessité d'un tube parfaitement poli en pile atomique, canal de fuite des neutrons
- 2. dégazage rapide du convertisseur de longueur d'onde
- 3. réalisation dans des ampoules de silice transparentes aux UV
- 4. électronique d'acquisition trop sensible aux rayons gammas

Aucune mention des scintillateur à gaz pour le suivi de puissance des réacteurs n'est observée dans les documents du CEA civil après 1967.

Dans le cadre d'une thèse en physique nucléaire, S. Achek-Youssef à l'IN2P3 reprend la conception et l'utilisation d'un scintillateur à gaz basé sur le xénon [46], permettant d'analyser les fragments de fission de l'<sup>234</sup>U produits sur accélérateur Van de Graaf. Finalement, en 1978, l'université Paris-Sud s'intéresse aux laser-nucléaires avec la thèse de D. Auphelle, expérimentant le pompage du néon sur l'accélérateur Empereur [53][54]. Des campagnes expérimentales sur le réacteur d'irradiation CALIBAN du CEA militaire auront lieu [55].

Si l'objectif était plus d'obtenir des données fondamentales pour la compréhension des mécanismes d'excitation par impact d'ions que la réalisation d'une arme stratégique, cette étude de la luminescence du néon permettra l'élaboration d'un modèle physique [56].

Bien que l'utilisation d'un signal lumineux semblait un temps utile à la conduite de pile atomique —un temps pressentie pour équiper la pile Minerve [47]—, des obstacles technologiques bloquants à l'époque restèrent insurmontables jusqu'à l'avènement des technologies suivantes :

- 1. Conducteurs de lumière souples (fibre optique)
- 2. Détecteurs de photons à haute efficacité dans la gamme proche-infrarouge
- 3. Détecteurs de photons à substrat de silicium robustes et sans haute-tension
- 4. Électronique d'acquisition à haute fréquence

D'autres groupes de travail exploitant la scintillation gazeuse avec pour objectif la réalisation d'un laser nucléaire de forte puissance dans la bande X <sup>35</sup>. Des essais dans le domaine visible et proche infrarouge, menés en réacteur de recherche ont produit de nombreux résultats et modèles de pompage du plasma froid excités par ions lourds, ils sont documentés dans le chapitre 3 de cette thèse.

Forts de ces données historiques et de la disponibilité de nouvelles briques technologiques, nous proposons un détecteur de neutron basé sur la scintillation d'un gaz rare excités par ion lourd tel que décrit Fig. 1.6. La tenue aux radiations des fibres optiques est apparue comme un point capital pour la viabilité d'un tel projet. Fort heureusement, le CEA a mené une campagne de tests intensive en conditions extrêmes sur les réacteurs OSIRIS, TREATS et ATR dès l'apparition des fibres optiques industrielles [57]. La figure 1.7 rapporte l'absorption radio-induite dans les fibres optiques à cœur de silice et à cœur creux en fonction de la longueur d'onde transmise, lors de l'irradiation en champ mixte de réacteur. Toutes les fibres affichent un vieillissement fonction de la dose déposée. Dans tous les cas, une courte zone spectrale

<sup>35.</sup> Le projet Excalibur a produit un laser intense en bande X, pompé par une bombe atomique : l'expérience Dauphin du 14 Novembre 1980.

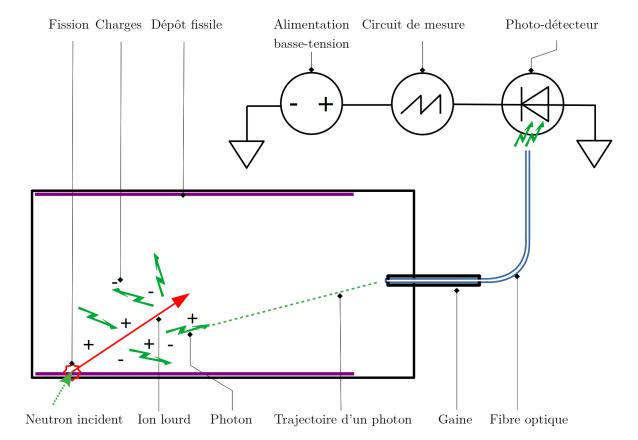


FIGURE 1.6 – Schéma simplifié d'une chambre d'ionisation optique. Aucune polarisation n'est nécessaire : les charges ne sont pas collectées. Les photons émis par dé-excitation du gaz tampon sont canalisés en partie dans une fibre optique. La détection s'effectue avec un compteur de photon unique à substrat silicium, ne nécessitant pas de haute-tension.

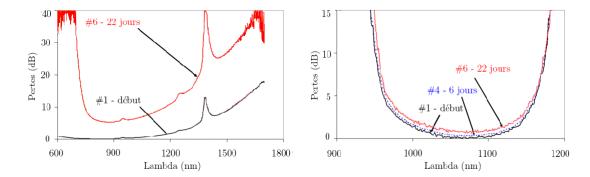


FIGURE 1.7 – Courbes d'atténuation radio-induite par irradiation en champ mixte sur des fibres multimodes en silice standard (gauche) et sur des fibres à corps creux (droite). 3.2E+20 n.cm<sup>2</sup> et 3.8E+9 Gy furent déposés en 6, après 22 jours dans le réacteur OSIRIS. De telles fluences et doses seraient accumulées par le détecteur après environ 800 ans dans ASTRID à pleine puissance.

comprise entre 850 nm et 1000 nm avec un minimum à 900 nm est visible. Dans cette zone spectrale, le signal lumineux sera peu atténué par la dose cumulée et présente donc le meilleur choix pour une utilisation prospective des chambres d'ionisation optiques avec de fibres en silice standard.

#### 1.2.3 Plan de thèse

Le sujet de cette thèse s'intitule «Étude du signal optique d'une chambre à fission et évaluation de son exploitation pour un système de mesure neutronique d'un réacteur de génération IV». Initialement, le plan de travail était le suivant :

- 1. Étude bibliographique avec en particulier l'objectif de récolte de données spectroscopiques
- 2. Estimation du signal avec des modèles simples
- 3. Irradiation d'un prototype avec une source de neutron d'intensité suffisante
- 4. Estimation d'un modèle prédictif du détecteur

Le banc de mesure PROMÉTHÉE <sup>36</sup> étant à l'arrêt pour défaillance du nouveau générateur de neutrons Génie 36, et les deux réacteurs accolés au laboratoire en phase d'arrêt définitif, une irradiation n'était plus programmée lors de ma prise de fonction au CEA, fin 2017. Le plan de la thèse fut modifié en conséquence et le sera d'avantage avec d'autres opportunités d'expériences.

Les premiers mois de la thèse ont été consacrés à l'étude bibliographique afin de collecter des données de base pour l'établissement d'un modèle simplifié de scintillation gazeuse induite par des ions lourds.

Grâce à ce modèle et aux codes de calculs crées pour l'occasion, le dimensionnement d'un dispositif d'étude analytique hors flux, représentatif d'une chambre à fission fut réalisé. Ce dispositif analytique permet d'effectuer des mesures d'intérêt pour la détection et la caractérisation du signal lumineux, et de confronter des données expérimentales à un modèle théorique plus abouti.

Au long des **publications I et II**, les estimations de puissance du signal, sa discrimination, puis la mise œuvre de la détection optique sont exposées. Des résultats de spectroscopie d'émission optique sont présentés, permettant d'identifier les contours d'un modèle de plasma froid et une méthode de diagnostic en ligne d'une chambre à fission.

Un code de calcul permettant la simulation du fonctionnement micro et macroscopique d'une chambre à fission optique est présenté dans les publications III et IV, il fut principalement écrit lors d'une phase de convalescence, à l'été 2018. Ce code innovant a pour but une meilleure compréhension des phénomènes en jeu —grâce à la comparaison aux données expérimentales— mais aussi l'optimisation du système de mesure neutronique, novateur donc non documenté, et de s'assurer de la dynamique des détecteurs maquettes. La validation des briques élémentaires de ce code fut effectuée au travers d'éléments de référence indépendants, non reliés à nos expérimentations pour assurer leurs bons fonctionnements.

Les résultats présentés questionnent les rares modèles jusque là établis pour la simulation de ces plasmas froids hors équilibres, une nouvelle approximation fut donc proposée.

Fin novembre 2018, une opportunité d'irradier un dispositif dans le réacteur CABRI le mois suivant nous est annoncée, je dessinais en conséquence une chambre à fission optique rudimentaire et fis procéder à son usinage rapide. Cette possibilité fut avortée quelques heures avant

<sup>36.</sup> Générateur de neutrons Génie 26 modéré par des blocs de graphite, très faible flux thermique, de l'ordre de 2.6E+4 n.cm², utilisé pour l'analyse de fûts de déchets.

le début de l'expérience, malgré tout, la préparation des systèmes de mesure se révélera utile pour le reste de cette thèse.

Une rencontre avec le directeur du Laboratoire Léon Brillouin, Alain Menelle scella la suite de cette thèse, en m'octroyant l'utilisation de deux faisceaux de neutrons durant les 6 mois de fonctionnement restants au réacteur ORPHÉE. La réalisation rapide d'une autre **chambre à fission prototype**, à mi-chemin entre le banc d'essai et un modèle de pré-industrialisation est détaillée dans la **publication V**. L'objectif de cette maquette, non optimisée pour la mesure en réacteur d'exploitation est l'atteinte de la preuve de concept par un essai en réacteur et la récolte de données spectroscopiques. Elle fut par la suite optimisée grâce au code de calcul précédemment développé.

Les mesures effectuées lors de 3 campagnes cumulant 120h d'irradiation avec deux détecteurs permirent d'identifier des systèmes de détections et des fibres optiques compatibles avec le signal lumineux issu des chambres à ionisation optiques.

Devant les résultats très probants des détecteurs maquettes au sein de ORPHÉE, je proposais à nouveau à l'équipe d'exploitation du réacteur CABRI d'effectuer des irradiations lors des essais de démarrage. Grâce à la volonté du chef d'installation et de l'ensemble du groupe d'exploitation du réacteur, une série de divergences et de pics de puissance furent monitorés par méthode optique, ce qui permis de vérifier la linéarité de la réponse en fonction du flux de neutron incident sur une très large gamme de puissance (10 décades). À nouveau, la conception, l'installation et le test de systèmes de mesure uniques étaient nécessaire dans un temps très court, mais les excellents résultats produits lors de cette expérience conclurent à la supériorité de la mesure de flux de neutron par méthode optique face aux chambres à ionisation. Fort de tous ces éléments, nous proposerons une conclusion, des perspectives d'étude à court terme et une pré-étude de dimensionnement pour optimiser encore la mesure de flux de neutrons par voie optique.

# Bibliographie

- [1] Eurostat, Emissions de gaz à effet de serre par habitant T2020-RD300, Tech. rep., Eurostat Europa (2020).
  - $\label{eq:url} URL & \texttt{https://ec.europa.eu/eurostat/databrowser/view/t2020\_rd300/default/bar?lang=fr} \\$
- [2] RTE-France, Bilan Électrique 2018 france métropolitaine, Tech. rep., RTE-France (2019).
  - $\label{eq:url_loss} \begin{tabular}{ll} $\rm URL\ https://bilan-electrique-2018.rte-france.com/wp-content/uploads/2019/02/BE-PDF-2018v3.pdf \end{tabular}$
- [3] E. Bertel, G. Naudet, L'économie de l'énergie nucléaire, Édition Diffusion Presse Sciences, 2012.
- [4] W. N. Association, Economics of nuclear power, Tech. rep., World Nuclear Association (2020).
  - $\label{eq:url} URL \quad \text{https://www.world-nuclear.org/information-library/economic-aspects/economics-of-nuclear-power.aspx\#OperatingCosts}$
- [5] L. SFEN, sa section technique Économie et Stratégie Énergétique, Les coûts de production du parc nucléaire français, Revue Générale Nucléaire (5) (2017) 47–49.
- [6] L. Patarin, Le cycle du combustible nucléaire, Édition Diffusion Presse Sciences, 2012.
- [7] Bataille, Loi n° 91-1381 du 30 décembre 1991, Journal Officiel (1991).

  URL https://www.legifrance.gouv.fr/affichTexte.do?cidTexte=
  JORFTEXT000000356548&categorieLien=id
- [8] E. Levallet, L. Costa, J. Mougniot, J. Boudry, J. Robin, et al., Rapsodie: A closed fuel cycle, Tech. Rep. IAEA-CN-36/266, International Atomic Energy Agency (1977).
- [9] P. Reuss, L'épopée de l'énergie nucléaire : Une histoire scientifique et industrielle, EDP sciences, 2012.
- [10] J. Guidez, B. Bonin, Réacteurs nucléaires à caloporteur sodium, E-den, Une monographie de la Direction de l'énergie nucléaire, CEA Saclay; Groupe Moniteur, 2014. URL https://hal-cea.archives-ouvertes.fr/cea-01152795
- [11] C. Bataille, R. Galley, Rapport sur l'aval du cycle nucléaire, Rapports de l'Office parlementaire d'évaluation des choix scientifiques et technologiques 978, Assemblée Nationale, enregistré à la Présidence de l'Assemblée nationale, annexe au procès-verbal de la séance du 11 juin 1998 (1998).
  - URL http://www.assemblee-nationale.fr/11/rap-off/i0978.asp
- [12] J.-F. Sauvage, J.-P. Serpantie, et al., Sodium-cooled fast reactors: the ASTRID plant project, Revue Générale Nucléaire (5) (2011) 39–44.
- [13] F. Bertrand, N. Marie, G. Prulhière, J. Lecerf, J. Seiler, Comparison of the behaviour of two core designs for ASTRID in case of severe accidents, Nuclear engineering and Design 297 (2016) 327–342.

BIBLIOGRAPHIE 40

[14] M. Chenaud, N. Devictor, G. Mignot, F. Varaine, C. Venard, L. Martin, M. Phelip, D. Lorenzo, F. Serre, F. Bertrand, et al., Status of the ASTRID core at the end of the pre-conceptual design phase 1, Nuclear Engineering and Technology 45 (6) (2013) 721– 730.

- [15] F. Gauché, Generation IV reactors and the ASTRID prototype: Lessons from the Fukushima accident, Comptes Rendus Physique 13 (4) (2012) 365–371.
- [16] F. Serre, P. Allegre, F. Bertrand, C. Journeau, J. Robin, C. Suteau, J. Champigny, C. Viala, R&D and design studies for the ASTRID core-catcher, Tech. Rep. IAEA-CN– 199 (2013).
- [17] CEA, Tech. rep., CEA (2013).

  URL http://www.cea.fr/multimedia/Documents/publications/rapports/
  rapport-gestion-durable-matieres-nucleaires/Tome%203.pdf
- [18] C. Jammes, ASTRID : Architecture du Système de Mesures Neutroniques (SMN), Tech. rep., CEA DEN (2015).
- [19] P. Filliatre, C. Jammes, A comprehensive numerical modelling of a fission chamber to be operated over a wide dynamics in the vessel of a sodium-cooled reactor, in: PHYSOR 2016, 2016.
- [20] P. Filliatre, C. Jammes, B. Geslot, L. Buiron, In vessel neutron instrumentation for sodium-cooled fast reactors: Type, lifetime and location, Annals of Nuclear Energy 37 (11) (2010) 1435–1442.
- [21] P. Filiatre, C. Jammes, B. Gelsot, Le courant de fuite des chambres à fission dans les conditions SFR, Tech. Rep. NT-SPEX-LDCI-10-12, CEA Cadarache (2012).
- [22] C. Jammes, P. Filliatre, B. Geslot, T. Domenech, S. Normand, Assessment of the high temperature fission chamber technology for the french fast reactor program, IEEE Transactions on Nuclear Science 59 (4) (2012) 1351–1359.
- [23] Z. Elter, M. Bakkali, C. Jammes, I. Pázsit, Performance of higher order Campbell methods, part I: review and numerical convergence study, Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section A: Accelerators, Spectrometers, Detectors and Associated Equipment 821 (2016) 66-72.
- [24] Z. Elter, G. de Izarra, P. Filliatre, C. Jammes, I. Pázsit, Performance of higher order Campbell methods, part II: calibration and experimental application, Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section A: Accelerators, Spectrometers, Detectors and Associated Equipment 835 (2016) 86–93.
- [25] C. Jammes, P. Filliatre, Z. Elter, V. Verma, G. De Izarra, H. Hamrita, M. Bakkali, N. Chapoutier, A. Scholer, D. Verrier, et al., Progress in the development of the neutron flux monitoring system of the French GEN-IV SFR: simulations and experimental validations, in: 2015 4th International Conference on Advancements in Nuclear Instrumentation Measurement Methods and their Applications (ANIMMA), IEEE, 2015, pp. 1–8.
- [26] G. Galli, Etude des décharges partielles dans une chambre à fission haute température, Ph.D. thesis, Université de Paris-Saclay (2018).
- [27] D. Fourmentel, J. Villard, A. Lyoussi, C. Reynard-Carette, G. Bignan, J. Chauvin, C. Gonnier, P. Guimbal, J. Malo, M. Carette, et al., Combined analysis of neutron and

BIBLIOGRAPHIE 41

- photon flux measurements for the Jules Horowitz reactor core mapping, in: 2011 2nd International Conference on Advancements in Nuclear Instrumentation, Measurement Methods and their Applications, IEEE, 2011, pp. 1–5.
- [28] D. Fourmentel, C. Reynard-Carette, A. Lyoussi, J. F. Villard, J. Y. Malo, M. Carette, J. Brun, P. Guimbal, Y. Zerega, Nuclear heating measurements in material testing reactor: A comparison between a differential calorimeter and a gamma thermometer, IEEE Transactions on Nuclear Science 60 (1) (2013) 328–335.
- [29] A. Di Chicco, M. Petit, R. Jacqmin, V. Gressier, B. Stout, Investigation of the neutron-gamma ray discrimination performance at low neutron energy of a solution-grown stilbene scintillator, in: EPJ Web of Conferences, Vol. 225, EDP Sciences, 2020, p. 04013.
- [30] F. Vitullo, V. Lamirand, J.-B. Mosset, P. Frajtag, O. Pakari, G. Perret, A. Pautz, A mm<sup>3</sup> fiber-coupled scintillator for in-core thermal neutron detection in CROCUS, IEEE Transactions on Nuclear Science 67 (4) (2020) 625–635.
- [31] A. Lyoussi, Détection de rayonnements et instrumentation nucléaire, EDP sciences, 2012.
- [32] C. Jammes, P. Filliatre, B. Geslot, L. Oriol, F. Berhouet, J.-F. Villard, L. Vermeeren, Research activities in fission chamber modeling in support of the nuclear energy industry, IEEE Transactions on Nuclear Science 57 (6) (2010) 3678–3682.
- [33] P. Filliatre, L. Vermeeren, C. Jammes, B. Geslot, D. Fourmentel, Estimating the  $\gamma$ -ray contribution to the signal of fission chambers with Monte Carlo simulations, Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section A: Accelerators, Spectrometers, Detectors and Associated Equipment 648 (1) (2011) 228–237.
- [34] G. F. Knoll, Radiation detection and measurement, John Wiley & Sons, 2010.
- [35] G. Galli, H. Hamrita, C. Jammes, M. J. Kirkpatrick, E. Odic, P. Dessante, P. Molinie, B. Cantonnet, J.-C. Nappé, Characterization and localization of partial-discharge-induced pulses in fission chambers designed for sodium-cooled fast reactors, IEEE Transactions on Nuclear Science 65 (9) (2018) 2412–2420.
- [36] H. Hamrita, C. Jammes, G. Galli, F. Laine, Rejection of partial-discharge-induced pulses in fission chambers designed for sodium-cooled fast reactors, Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section A: Accelerators, Spectrometers, Detectors and Associated Equipment 848 (2017) 109–113.
- [37] G. Daphin, J. Duchene, Méthode de nitruration pour chambre à fission rapide fonctionnant à haute température, Tech. rep., CEA Saclay (1987).
- [38] C. Jammes, Programme de développement du Système de mesures neutroniques (SMN), Tech. Rep. SPESI/LDCI/NT/18/31/A, CEA Cadarache (2018).
- [39] C. Vaux, J.-C. Vuillemin, Qualification de la chambre à fission CFUC07 à PHENIX : installationdes appareils et tests de fonctionnement, Tech. Rep. DTA/LETI/DEIN/SAI-91-021, CEA Cadarache (1991).
- [40] P. Filliatre, C. Jammes, Chambres à fission pour ASTRID : Simulation de la CFUC07 et de la CFUE32, Tech. Rep. SPEx/LDCI/NT/2014/01/Indice A, CEA Cadarache (2014).
- [41] S. Chabod, Development and modelling of fission chambers designed for high neutron fluxes: applications at the HFR reactor (ILL) and the MEGAPIE target (PSI), Ph.D. thesis, Université de Paris-Sud (2006).
- [42] S. Melnikov, A. Sinyanskii, A. Sizov, G. H. Miley, Lasers with nuclear pumping 455 (2015).

BIBLIOGRAPHIE 42

[43] L. Alves, The IST-LISBON database on LXCat, in : Journal of Physics : Conference Series, Vol. 565, IOP Publishing, 2014, p. 012007.

- [44] D. Hasselkamp, R. Hippler, A. Scharmann, K. Schartner, Absolute excitation cross sections for the 4 1 s-, 4 1 d-and 3 1 p-levels of helium excited by fast protons, Zeitschrift für Physik 248 (3) (1971) 254–263.
- [45] M. Shah, H. Gilbody, Single and double ionisation of helium by h+, he2+ and li3+ ions, Journal of Physics B: Atomic and Molecular Physics 18 (5) (1985) 899.
- [46] S. Achek-Youcef, Contribution to the study of the <sup>234</sup>U(n, f) reaction, Ph.D. thesis, Université de Bordeaux I (1975).
- [47] L. Koch, Étude de la fluorescence desgaz rares excités par des particules nucléaires. utilisation pour la détection des rayonnements nucléaires., Ph.D. thesis, Université de Paris (1959).
- [48] L. Koch, R. Lesueur, Quelques résultats concernant la fluorescence de gaz excités par des particules chargées de grande énergie, Note Technique 869, CEA Saclay (1958).
- [49] L. Koch, Etude spectrale de la luminescence due à l'excitation des gaz rares par les rayons alpha, Note Technique 1567, CEA Saclay (1960).
- [50] L. Koch, Nouveau compteur à scintillation à très faible temps de résolution, Note Technique 2073, CEA Saclay (1961).
- [51] L. Koch, R. Lesueur, Quelques résultats concernant les scintillateurs gazeux et leurs états condensés, Journal de Physique et le Radium 19 (1) (1958) 103–105.
- [52] R. Bomal, L. Koch, The detection of thermal neutrons by scintillation with a resolving time of 10<sup>-8</sup> s, in : Proceedings of the Conference on Nuclear Electronics. V. III, 1962, pp. 299–307.
- [53] D. Auphelle, Study of a plasma created by a beam of fast ions, Ph.D. thesis, Université Paris 11 (1978).
- [54] D. Auphelle, F. Euve, M. Fitaire, A. Pointu, M. Vialle, L. Wartsky, Study of a nitrogenneon induced plasma, Journal de Physique 40 (1979) 397.
- [55] D. Auphelle, F. Euve, M. Fitaire, A. Pointu, M. Vialle, Recherche d'un effet laser dans le melange He Co2 irradie par le reacteur caliban : Groupe Plasma d'Origine Nucléaire, Physics Letters A 72 (6) (1979) 439-441.
- [56] A.-M. Pointu, D. Auphelle, F. Euve, M. Fitaire, M. Vialle, Calculation of the electron distribution function of a rare gas nuclear induced plasma, Journal de Physique 41 (10) (1980) 1101–1108.
- [57] G. Cheymol, H. Long, J. F. Villard, B. Brichard, High level gamma and neutron irradiation of silica optical fibers in CEA OSIRIS nuclear reactor, IEEE Transactions on Nuclear Science 55 (4) (2008) 2252–2258.

# 2

# Dispositif d'étude analytique PSEG

Ce chapitre présente les publications traitant de la conception et l'exploitation d'un dispositif d'étude des plasmas-froids <sup>1</sup> excités par rayonnements ionisants utilisé hors réacteur de recherche. Un tel outil permet d'effectuer des mesures spectroscopiques renseignant la composition et la dynamique du plasma froid au sein d'une chambre à fission optique, ainsi que l'évaluation de capteurs optiques. Les **publications I et II** évoquant les premières mesures effectuées et leurs conséquences sur le projet apporteront au lecteur des résultats spectroscopiques ainsi que des photographies.

Le cheminement de la conception du dispositif, et les conclusions tirées des résultats obtenus sont présentés ici.

# 2.1 Conception d'un dispositif de mesures en laboratoire

L'étude bibliographique que j'ai menée en début de thèse a souligné le manque de données expérimentales de qualité sur les plasmas d'origine nucléaire.

Les quelques spectres d'émission présentés dans les articles et thèses concernent des mélanges de gaz capables d'inversion de population —laser— qui n'ont que peu d'intérêt pour la détection de neutrons. Aussi, les quelques documents numérisés présentaient des raies et bandes moléculaires, caractéristiques d'une pollution par l'air.

Afin de sécuriser mon travail de recherche en cas d'échec d'obtention de temps de faisceaux sur une installation nucléaire, et explorer les méthodes de diagnostic optiques potentiellement exploitable sur les chambres à fission classiques, j'ai conçu puis construit un dispositif d'étude des plasmas nucléaires.

L'expérience en réacteur était compliquée, il n'existe plus, en France, de réacteur d'enseignement (Ulysse, Minerve, Éole, Siloette...). Les trois réacteurs civils restants (sur 38) n'étaient pas la pleine propriété du CEA (RHF, CABRI et ORPHÉE). Les contraintes d'encombrement dans les réacteurs subsistants et la tenue des matériaux sont trop drastiques pour permettre des mesures spectroscopiques de qualité.

<sup>1.</sup> Le PSEG: Prototype de Scintillateur Electrodes-Gaz

Devant ce constat, je me suis orienté vers un dispositif exploitant une source alphagène puisque, nous le verrons, il s'agit d'un bon modèle de source de plasma généré par fragments de fission lorsque l'on s'intéresse uniquement à la génération des plasmas nucléaires.

L'utilisation d'une source radioactive alphagène est attrayante vu les points suivants :

- 1. Activité de la source et dépôt d'énergie dans le gaz paramétrables
- 2. Énergie cinétique par nucléon semblable aux fragments de fission
- 3. W-value similaire à celle des fragments de fission dans les gaz rares
- 4. Portée des ions du même ordre de grandeur que les fragments de fission
- 5. Très faible dose gamma et X
- 6. Peu de contraintes géométriques et techniques

Ce dernier point permet de réaliser des études spectroscopiques sans contrainte sur le montage optique avec des miroirs, périscopes, lentilles, fenêtres de grand diamètre, sans restreindre non plus le temps de pose nécessaire.

Des dispositifs d'étude semblables, exploitant des sources alphas ont déjà été proposés par le passé. Koch [1], par exemple, utilisait comme source d'émission 30 mCi de <sup>210</sup>Po très volatile. La source radioactive était alors placée dans une ampoule en silice gonflée de xénon et scellée à la flamme. Cette méthode simple, adaptée pour l'observation des ultraviolets n'est aujourd'hui pas réutilisable, vu le risque que présente une enceinte fragile contenant une source radioactive. De plus, chaque modification de la configuration en pression ou en géométrie nécessite la fabrication d'une nouvelle ampoule et d'une nouvelle source radioactive.

Face à ces limitations, nous optons pour la réalisation d'un réacteur à plasma classique, avec un dessin inspiré de ceux utilisés dans le monde des plasmas froids [2]. Il s'agit principalement d'une cuve métallique disposant d'une large ouverture, de passages étanches, d'au moins un hublot et d'un système de pompage.

#### 2.1.1 Source d'excitation

La très forte activité massique de certains émetteurs alphas (1.66E+14 Bq/g pour le  $^{210}$ Po) a permis d'envisager des laser nucléaires excités par radionucléides plutôt que par fragments de fission, comme vu en [3], ce qui laisse présager un taux de dépôt d'énergie sensiblement plus élevé en conditions de laboratoire, qu'en cas d'irradiation en réacteur de production électrique ou de recherche. Couplée à une radioprotection plus simple qu'en cas d'utilisation de neutrons (californium), cette source d'ions lourds apparait comme idéale pour une étude préliminaire. Tout comme les fissions dans un matériau fissile, la génération de particules alphas dans un dépôt radioactif intervient à une épaisseur aléatoire. Compte tenu de la forte densité des oxydes de métaux lourds utilisés — $\rho$ : 11.5 g/cm³ pour le PuO<sub>2</sub>— et de l'énergie des particules alpha émises —typiquement 5 MeV— une forte absorption et ralentissement des particules est à prévoir en sortie de dépôt [4].

Pour caractériser plus facilement ce type de plasma peu étudié, il est souhaitable d'avoir une source quasi mono-énergétique, ainsi, un programme développé et présenté en annexe A I estime une épaisseur optimale de matériau alphagène à réaliser à l'atelier. Le <sup>238</sup>Pu comme source d'excitation apparait comme un choix judicieux : sa forte activité massique implique de faibles quantités de matières radioactives, réduisant ainsi l'épaisseur d'un dépôt et donc la

déviation du spectre d'une source monoénergétique. Le <sup>210</sup>Po a une demie-vie de 138 jours, le plasma perdrait donc en intensité au fil des semaines, le <sup>238</sup>Pu supprime cet inconvénient, avec une demie-vie de 87 ans. En outre, le <sup>238</sup>Pu est un émetteur alpha presque pur : peu de débit de dose gamma n'est à attendre même avec plusieurs giga-becquerels d'activité.

Des données de base telles que le pouvoir d'arrêt pour le couple  $\alpha-\text{PuO}_2$  sont nécessaires pour effectuer les calculs de spectre énergétique en sortie de dépôt. Faute d'expérimentations ou d'abaques rendus publics, on se référera aux travaux de Nitzki et Matzke [5] et des régressions de données de Ziegler [6] sur des métaux lourds pour estimer des valeurs plausibles pour l'oxyde de plutonium 238.

En appliquant la loi de Bragg-Kleeman [7], on estime la portée R de particules alphas de 5.5 MeV produites dans un dépôt uniforme de  $^{238}$ PuO<sub>2</sub> :

$$\frac{R_{238UO_2}}{R_{238PuO_2}} \approx \frac{\rho_{238PuO_2}}{\rho_{238UO_2}} \frac{\sqrt{A_{238UO_2}}}{\sqrt{A_{238PuO_2}}}$$
(2.1)

Ce qui donne  $11.51 \,\mu\text{m}$ , soit une masse surfacique de  $1.32 \,\text{mg/cm}^2$ , partant des données d'un oxyde d'uranium pur, indépendamment des résultats de SRIM ou Nitzki. Au delà de cette masse surfacique, les particules alpha ne sortiront pas du dépôt et ne feront que le chauffer, inutilement pour notre application.

Connaissant l'activité massique du plutonium 238 pur, 6.34E+11 Bq/g, on en déduit l'activité par centimètre-carré par unité d'épaisseur :

$$A_{238PuO_2}[Bq/cm^3] = A_{238Pu}[Bq/g] \times \frac{M_{238Pu}}{M_{238PuO_2}} \times \rho_{238PuO_2} \times purity$$
 (2.2)

Où  $M_{^{238}Pu}$  et  $M_{^{238}PuO_2}$  représentent les masses molaires du plutonium 238 et de son oxyde. 6.29E+12 Bq/cm<sup>3</sup> sont à attendre avec la pureté disponible à l'atelier (98%).

Si le dépôt est très fin devant la portée des particules alpha émises initialement à  $5.5~\rm MeV$ , ce sont  $6.29E+8~\rm Bq/cm^2$  par micromètre déposé qui sont émis dans le gaz, cela assure une puissance déposée de  $3.46E+15~\rm eV/s$ , mais seule la moitié ira dans le gaz.

Pour comparaison, le taux de dépôt d'énergie par centimètre-carré de  $^{238}$ PuO<sub>2</sub> épais d'un micromètre atteint 1.72E+15 eV/s soit 64 fois plus qu'avec un dépôt similaire d' $^{235}$ U<sub>3</sub>O<sub>8</sub> dans le flux nominal de ASTRID  $^2$  à l'emplacement retenu pour le détecteur (sous le bouchon couvercle cœur).

Connaissant la limite haute du diamètre des cellules d'électrodéposition —15 mm— on obtient au maximum une source de 1.10E+9 Bq/µm, soit comme Koch, 30 mCi.

Cette forte production est nécessaire pour réduire le temps de pose des clichés spectroscopiques et permettre de tester différentes technologies de détection optique.

La réalisation du dépôt d'oxyde de plutonium par méthode d'électro-déposition sur un substrat d'acier inoxydable 304L a été effectuée de manière artisanale mais suivant un protocole éprouvé dans l'atelier de réalisation de chambres à fission du CEA. Une intense phase d'étuvage du dépôt a suivi, afin de dégazer un maximum de résidus aqueux provenant de la solution mère. Une fois le dépôt effectué, il fut conservé sous atmosphère d'argon pour le protéger de l'humidité, les boites à gants n'étant pas inertées. Le placement de la source d'excitation est visible sur la Fig. 2.1

<sup>2.</sup> On compterait environ 3.25E+5 fissions par seconde dans ce dépôt.





FIGURE 2.1 – Gauche : placement du porte-dépôt avec le  $^{238}$ Pu sur une des électrodes du PSEG

Droite : photographie du PSEG dans une boîte à gant, prêt à être refermé et gonflé.

Connaissant les dimensions exactes du plasma en fonction de la pression et la répartition de son intensité lumineuse, il fut possible de viser une zone d'intérêt pour une analyse du spectre lumineux.

#### 2.1.2 Puissance du signal optique

Le nombre d'atomes de gaz excités chaque seconde  $Y_{exc}$  peut se calculer sommairement avec la  $W_{exc}$ -value tel que :

$$Y_{exc} = \frac{E_{dep}}{W_{exc}} \tag{2.3}$$

Avec  $W_{exc}$  égal à 68 eV pour l'argon, on obtient ainsi 2.53E+13 atomes excités par seconde et par centimètre-carré de surface active, si l'on considère un milieu semi-infini.

Malgré un grand nombre d'atomes excités le long d'une trace d'ionisation, seuls quelques uns généreront des photons dans une gamme de longueur d'onde comprise entre 840 nm et 1000 nm, une zone spectrale peu influencée par la RIA <sup>3</sup> des fibres irradiées en réacteur. Contrairement aux électrons d'une chambre à ionisation classique, les photons ne peuvent être déviés de leur trajectoire par une force à distance (ie. champ électromagnétique), une proportion considérable des photons produits dans le gaz partira donc dans des directions quelconques, sans pouvoir être observée à travers un hublot ou canalisée par une fibre optique.

Tentons de calculer le nombre de photons proche infrarouge, pouvant ensuite être collectés par seconde. Tous les atomes excités ne produiront pas d'émission infrarouge, chaque état excité peut se désexciter selon une ou plusieurs voies.

Parmi 44 niveaux analysés pour l'argon neutre, 12 se désexcitent en émettant des photons dans

<sup>3.</sup> Radiation Induced Absorbtion, obscurcissement des fibres optiques à la radiation ionisante.

la gamme spectrale recherchée, mais seuls 5 l'effectuent avec une intensité relative appréciable. L'analyse des sections efficaces d'excitation par impact électronique dans une gamme d'énergie comprise entre 20 et 60 eV montre que seuls 8.14% des excitations seront produites sur ces niveaux (Fig. 2.2).

www.lxcat.ne 11 May 2020

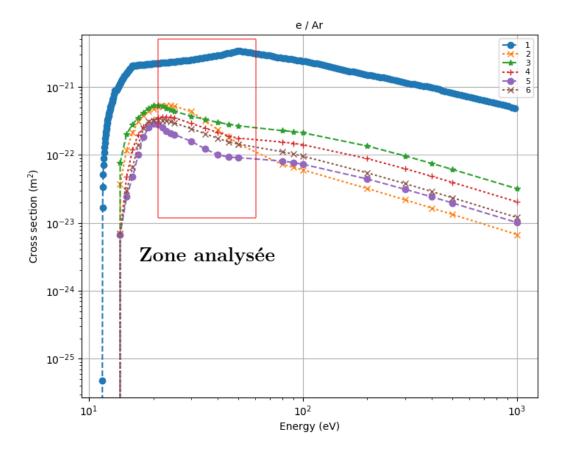


FIGURE 2.2 – Sections efficaces d'excitation de l'argon neutre par des électrons. La courbe bleue représente la somme des niveaux inférieurs 4S stériles, les 5 autres niveaux sont ceux considérés pour l'émission proche infrarouge. Source : LX-Cat Project.

À cette proportion, il est encore nécessaire de retirer les désexcitations produisant des photons hors de la gamme spectrale d'intérêt, comme représentées sur la Fig. 2.3. Cette grandeur étant plus délicate à chiffrer, on considérera que la proportion —embranchement—de photons émis par un niveau est uniquement fonction de son coefficient de désexcitation. Pour chacun des niveaux considérés, l'embranchement de désexcitation produisant les longueurs d'onde recherchées sont présentés dans le tableau. 2.1.

Ainsi donc, seul 4% des niveaux excités de l'argon pourront émettre des photons dans la gamme proche-infrarouge recherchée, si seul le mécanisme de désexcitation radiative spontanée est considéré dans ce plasma froid.

La proportion de lumière mesurable est liée à la géométrie du réacteur plasma, nous l'estime-

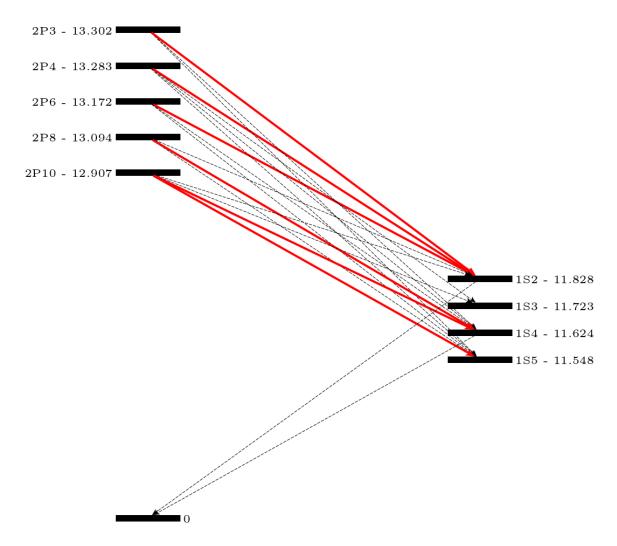


FIGURE 2.3 – Diagramme de Grotrian partiel des niveaux de l'argon neutre sélectionnés pour notre étude et leurs embranchements. Les fleches rouges indiquent une transition dans la zone proche infrarouge intense. Énergies en eV. Source : NIST-ASD [8]

rons dans la section suivante.

#### 2.1.3 Réacteur à plasma

Le placement de la plaquette radioactive dans un réacteur à plasma nécessite une étanchéité parfaite afin de satisfaire les règlementations de radioprotection des travailleurs. Les pressions étudiées vont de quelques millibars à 5 atmosphères afin de produire des conditions intéressantes pour les détecteurs optiques, mais aussi pour le diagnostic de chambre à fission. De fait, la réutilisation de composants industriels et issus de la technologie du vide a été possible, réduisant drastiquement le coût et le temps d'usinage du réacteur à plasma.

Une cuve de peinture automobile en acier inoxydable, certifiée pour une utilisation jusqu'à cinq atmosphères, fut percée de deux larges ouvertures par fraisage afin d'y loger des hublots. L'étanchéité du dispositif repose sur un joint en butyle logé dans une gorge sous le couvercle

| Niveau $3s^23p^5$          | Seuil(eV) | Raies IR (nm) | %P   | %d |
|----------------------------|-----------|---------------|------|----|
| $(^{2}P_{3/2})4p^{2}[1/2]$ | 12.907    | 912,965       | 1.11 | 60 |
| $(^2P_{3/2})4p\ ^2[5/2]$   | 13.094    | 842           | 2.27 | 66 |
| $(^{2}P_{3/2})4p^{2}[3/2]$ | 13.172    | 922           | 1.91 | 14 |
| $(^2P_{1/2})4p\ ^2[3/2]$   | 13.283    | 852           | 1.14 | 42 |
| $(^2P_{1/2})4p\ ^2[3/2]$   | 13.302    | 840           | 1.71 | 64 |

Table 2.1 – Niveaux d'excitation de l'argon neutre générant d'intenses raies dans la gamme 840-1000 nm. %P : Probabilité de peuplement du niveau par un spectre plat d'électron compris entre 20 et 60 eV, %d : Embranchement de désexcitation du niveau produisant les raies IR retenues pour notre étude. Source : NIST-ASD [8]

d'accès, et des soudures TIG le long des parties fixes. Des photographies de la cuve de peinture avant et après être transformée en réacteur à plasma sont présentées Fig. 2.4.



FIGURE 2.4 – Gauche : cuve de peinture achetée pour modification. Droite : PSEG usiné.

Connaissant les dimensions exactes du plasma en fonction de la pression et la répartition de son intensité lumineuse, il fut possible de viser une zone d'intérêt pour une analyse du spectre lumineux.

Défini comme polyvalent pour des études de Spectroscopie Optique d'Émission (OES), le Prototype de Scintillateur Électrodes Gaz (PSEG) dispose d'une paire d'électrodes plates de grand diamètre à écartement variable afin d'étudier l'influence d'un champ électrique sur la luminescence du gaz tampon. La position en hauteur du dépôt est réglable avec des jeux de cales isolantes tournées en Nylon. Des hublots démontables en acier de diamètre 30 mm équipés de fenêtres interchangeables en silice fondue autorisent la transmission d'un large spectre allant de l'ultraviolet (300 nm) au proche infrarouge (1500 nm). Une vue éclatée du dispositif est présentée en annexe A VIII.

Pour assurer la tenue en pression des hublots, on estime pour un hublot avec un diamètre interne non supporté de  $\emptyset$   $D_u$  30 mm l'épaisseur minimale de la vitre t est [9] :

$$t = 1.06.D_u.\sqrt{P/S_f} = 3 \ mm \tag{2.4}$$

Où P représente la différence de pression entre les deux faces de la vitre,  $S_f$  est la limite d'élasticité du matériaux : 55 MPa pour la silice [10]. Avec 4 mm d'épaisseur, une différence de

pression de 8.7 atmosphères peut être supportée par la fenêtre en silice, assurant un coefficient de sécurité de 1.74.

L'usinage de gueules de loups <sup>4</sup> pour la soudure des hublots implique une longueur minimale afin d'éviter la déformation de la tôle du corps lors de la soudure et donc la perte de coplanarité des deux hublots, nécessaire si dans le futur un miroir est utilisé en spectroscopie d'absorption. Après concertation avec l'usineur, la distance hublot-centre géométrique ne doit être réduite sous 100 mm.

J'ai estimé la proportion de photons traversant chaque hublot en fonction de la pression d'argon grâce à un code de calcul présenté en annexe A II. Pour cela, je considère que l'intégralité des photons traversant un hublot peut être focalisée par une assemblée optique en dehors du PSEG afin d'estimer la puissance lumineuse frappant un détecteur.

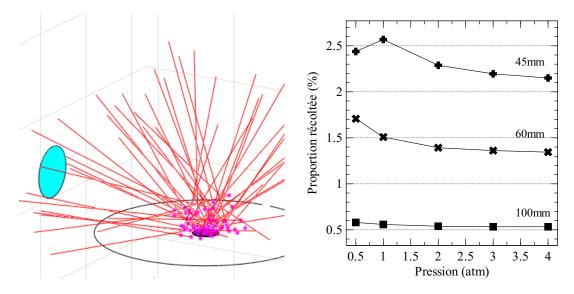


FIGURE 2.5 – Gauche : Vue de la simulation utilisée pour l'estimation de la proportion de photons traversant le hublot du PSEG en fonction des paramètres géométriques et de remplissage. Les particules alphas du <sup>238</sup>PuO<sub>2</sub> émises aléatoirement depuis le dépôt noir émettent un photon à l'étoile mangenta. Les photons partent avec une direction aléatoire (trait rouge). Seuls les photons partant vers le haut de la cuve sont représentés.

Droite : Proportion de photons traversant le hublot / générés dans la cuve en fonction de la pression d'argon et de la distance entre le centre de la pastille et le hublot. On note une inflexion de la courbe à basse pression car la portée des particules alphas augmente, en résulte un plasma plus diffus.

Seul environ 0.5 % des photons produits dans la cuve pourront traverser le hublot d'observation et être focalisés vers un détecteur ou un spectromètre.

En considérant un photon proche-infrarouge comme ayant une énergie de 2.21E-19 J, on espère collecter une puissance lumineuse de :

$$W_p = 2.53\text{E} + 12 \cdot 4\% \cdot 0.5\% \sim 1.12\text{E} - 9 W$$
 (2.5)

Malgré la faible puissance lumineuse mesurable en sortie de hublot— un nanowatt— ce dispositif, de par ses dimensions, permet d'étudier des configurations difficilement réalisables en

<sup>4.</sup> Découpe d'un tube permettant de souder des sections tubulaires

réacteur. Un grand volume, un gonflage en ligne et une reconfiguration du montage optique pour ne sonder que des zones d'intérêt seraient impossibles dans un dispositif placé en flux. Si un dépôt d'une surface plus grande est réalisé, il convient de multiplier cette valeur par le ratio des deux surfaces.

## 2.2 Exploitation du PSEG

#### 2.2.1 Mise en service

Une épreuve d'étanchéité par accumulation d'hélium à 3 atmosphères permit la mesure d'un taux de fuite sous le seuil de tolérance de 1E-9 mBar/ $\ell/h$  pour l'ensemble du dispositif. Une dizaine de cycles de pressurisation et dépressurisation du PSEG a permis d'éliminer les résidus chimiques laissés lors de la passivation de la cuve, et de vérifier l'étanchéité de l'ensemble. Gonflé sous cinq atmosphères d'hélium durant deux mois, le PSEG n'a laissé apparaître aucune chute de pression, autorisant son utilisation avec une source radioactive en son sein, en dehors de boite à gants.

Pour les premières études, l'argon a été choisi comme gaz de remplissage car il est bien connu : nombre de ses raies d'émissions et sections efficaces d'excitation ont été tabulées. Mon choix s'est porté vers le gaz Arcal Prime en raison de son faible prix —environ 40 euros par mètrecube, et de la disponibilité dans le circuit industriel. Il ne contient que 20 ppm de polluants comme l'eau ou l'azote et peut ainsi être qualifié de qualité spectroscopique.

Bien qu'une estimation de l'allure du plasma fut possible grâce au code exposé en annexe A II, une image de la scintillation était requise pour le réglage des organes de visée du spectromètre, dont l'image sur le capteur CCD ne saurait dépasser 2 mm de hauteur. La modification d'un appareil photo numérique à capteur CCD commercial<sup>5</sup> permit d'acquérir des photographie du plasma dans la gamma proche-infrarouge, pour en apprécier les dimensions et l'allure.

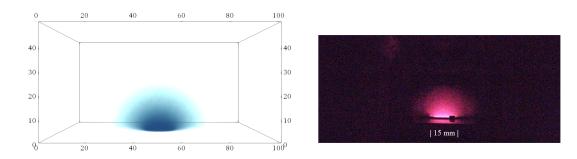


FIGURE 2.6 – Gauche : Simulation représentant la répartition de l'intensité lumineuse d'un plasma d'argon à deux atmosphères excité par une pastille de <sup>238</sup>Pu de 15 mm de diamètre. Droite : photographie dans le spectre visible-proche-infrarouge du même plasma au sein du PSEG. Dimensions en millimètres.

Connaissant les dimensions exactes du plasma en fonction de la pression et la répartition de son intensité lumineuse, il fut possible de viser une zone d'intérêt pour une analyse du

<sup>5.</sup> Les appareils photos numériques sont sensibles au proche infrarouge, mais un filtre devant le capteur bloque la majorité des rayons.

spectre lumineux.

### 2.2.2 Acquisitions spectroscopiques

Le spectromètre utilisé est de type Czerny-Turner de 50 cm de focale, équipé de trois réseaux de 1200, 600 et 300 traits/mm, blazés respectivement à 500 nm, 1000 um et 500 nm. Une caméra CCD refroidie rétro-illuminée Princeton Instrument Pixis BR-eXcelon dispose d'une résolution de 1340 par 100 pixels, chacun large de 20  $\mu$ m, affichant une efficacité quantique de l'ordre de 80 à 90 % dans une zone spectrale allant de 400 à 900 nm.

Le capteur CCD étant plan, la zone en périphérie n'est pas au plan focal, du fait d'un miroir concave placé en amont. Le spectre étant fortement dé-focalisé en bordure, celui-ci doit être acquis sur une surface réduite du capteur. Seule la partie centrale du capteur CCD est exploitée, réduisant sa surface à 700 par 100 pixels

Afin de réduire le bruit de nos clichés, un cliché «noir» est soustrait à l'original pour supprimer la contribution du courant d'obscurité qui peut être importante pour les longues poses. Des traces de forte intensité, dues aux rayons cosmiques, sont identifiés par leurs très fortes intensités, incohérentes avec celles des zones visées puis retirées par post-traitement.

Le spectromètre est employé à des fins de caractérisation du plasma, puisque le spectre d'émission peut renseigner sur sa composition chimique, le degré d'ionisation et la répartition spatiale des espèces (ions, neutres, électrons).

La calibration du spectromètre en longueur d'onde est nécessaire pour tout diagnostic, et des raies d'émission de référence sont nécessaires pour assurer plusieurs points de repère et une linéarité du déplacement du goniomètre portant le réseau de diffraction. Les spectres d'émission du mercure et de l'argon sont fréquemment utilisés car ils possèdent de nombreux doublets clairement identifiables, et couvrent la gamme spectrale allant de l'ultraviolet à l'infrarouge. En utilisant une lampe de calibration spectrale à basse pression d'argon-mercure, nous calibrons l'instrument grâce au logiciel LightField fourni, et estimons sa résolution spectrale à 0.36 nm avec une ouverture de la fente avant de  $10~\mu m$ .

La calibration en intensité, dite absolue, est elle plus délicate puisque nécessitant des lampes de références telles que :

- Lampe à ruban de tungstène fournie par le NIST
- LED calibrée fournie par le fabriquant

Dans les deux cas, ces appareils coutent plusieurs milliers d'euros, nécessitent une assemblée optique fixe, pour une utilisation très occasionnelle.

Si la valeur absolue de l'intensité du spectre lumineux incident n'est pas indispensable, un simple rapport entre les intensité des raies d'émission suffit à estimer les paramètres les plus importants du plasma, comme le peuplement des niveaux et éventuellement la température des espèces par le biais des graphiques de Boltzmann [11] [12] si l'équilibre thermodynamique local est établi.

Pour s'assurer de la validité des rapports de raies, il est nécessaire de corriger l'efficacité de l'ensemble spectrométrique, à savoir l'assemblée optique, le spectromètre et la caméra CCD. Un corps noir, dont le spectre d'émission peut être simplement estimé par la loi de Planck, représente ainsi une source d'émission continue et caractérisée facile à obtenir. Suivant les instruction de De Izarra [13] [14], nous effectuons la calibration «relative» de notre spectromètre grâce à une alimentation de laboratoire et une ampoule de clignotant de voiture de 21 W,

seules ampoules à incandescence encore autorisées à la vente.

Les spectres, acquis par le logiciel LightField de Princeton Instruments, sont ensuite exportés en données brutes sans unités et post-traités grâce à des routines de calcul présentées en annexe A III et A IV, afin de corriger l'efficacité du système optique.

## 2.3 Résultats

Plusieurs spectres furent enregistrés avec des temps d'expositions et des points de visées différents sur des plasmas d'argon et d'hélium à des pressions variables. Les publications attachées à la fin de ce chapitre comprennent des spectres d'émissions, des graphes de Boltzmann et des photographies des plasmas générés.

L'absence de continuum sur les spectres d'émissions optiques peut traduire un plasma très faiblement ionisé, puisque la recombinaison radiative des électrons libres a lieu à toute énergie incidente. Cette observation renforce l'hypothèse d'un très faible taux d'ionisation du gaz, puisque l'on observe aucune des raies d'émission de l'argon ionisé (Ar II). L'absence de bande d'émissions moléculaires dans la partie UV-visible du spectre traduit elle une excellente pureté du gaz et la bonne étanchéité du PSEG, permettant d'effectuer de longues poses sans avoir à renouveler le gaz par un balayage permanent.

La réalisation de graphes de Boltzmann grâce à une routine présentée en annexes A V et A VI sur les principales raies d'émissions enregistrées ne permet pas de statuer d'un équilibre thermodynamique local

Les mécanismes d'élargissement de raies spectrales [12] permettent d'obtenir une information sur la pression de remplissage, la densité électronique, ou encore la température des constituants. Le Tableau 2.2 présente une estimation de l'importance de chaque mécanisme dans l'élargissement de raies appliquée à une hypothétique transition de l'argon à 1 atm et faible densité électronique ( $\sim 1\mathrm{E} + 16~\mathrm{cm}^{-3}$ ) émettant autour de 800 nm. Seul un mécanisme appara

| Mécanisme              | Dépendance              | Profil     | Valeur typique (Å) |
|------------------------|-------------------------|------------|--------------------|
| Naturel                | $A(s^1)$                | Lorentzien | 0.0001             |
| Doppler thermique      | $\sqrt{\mathrm{T}}$     | Gaussien   | 0.07               |
| $\operatorname{Stark}$ | $\mathrm{R}^{-2}$       | Lorentzien | 0.09 (826  nm)[15] |
| Résonance              | $R^{-3}$ , $N(at.cm-3)$ | Lorentzien | 1 à 10             |
| Van der Waals          | $\mathrm{R}^{-6}$       | Lorentzien | 0.004              |

Table 2.2 – Prépondérance des mécanismes d'élargissement de raies d'émission d'une hypothétique transition passant par un niveau résonnant de l'argon, autour de 800 nm dans un plasma affichant une densité électronique de 1E+16 e<sup>-</sup>.cm<sup>-3</sup>.

rait suffisamment intense pour permettre une détection sans grands moyens spectroscopiques dans l'optique d'une future utilisation industrielle : l'auto élargissement de pression (Resonance ou Pressure broadening en anglais).

Les profils des raies élargies ne sont pas *principalement* décrits par des fonctions Gaussiennes mais Lorentziennes, disqualifiant l'effet Doppler, seul phénomène responsable d'un profil Gaus-

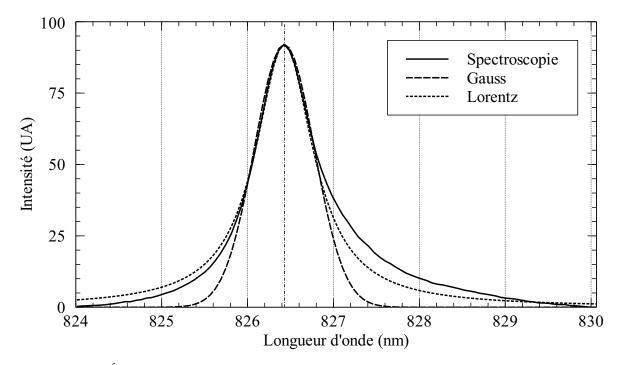


FIGURE 2.7 – Élargissement spectral de la raie de l'Ar I à 826.45 nm. Des distributions Gaussienne et Lorentzienne sont apposées pour comparaison. On note une courbe expérimentale au profil de Voigt, convolution d'une Gaussienne due à la fonction d'appareil, et de l'élargissement de résonance au profil Lorentzien. L'asymétrie positive relevée peut être en partie due à la fermeture excessive des fentes d'entrée du spectromètre, à 10 μm, et un défaut de position de la caméra.

sien <sup>6</sup>. Une superposition de profils Gaussiens liés à la fonction d'appareil du spectromètre et Lorentziens purs sur une raie élargie de l'argon acquise par spectroscopie est présentée Fig. 2.7 L'effet Van der Waals peut également être négligé dans notre plasma puisque aucun élargissement des raies d'émissions issues de niveaux ne passant pas par des niveaux résonnants n'a été relevé.

## 2.4 Discussion

Un prototype de chambre à fission analytique a été développé et exploité. L'utilisation d'une source radioactive alphagène pour mimer les fragments de fissions de l'uranium sans flux de neutrons est possible et autorise une grande liberté d'expérimentation. L'obtention d'une image du plasma à des fins de visée des organes optiques est réalisable avec une caméra CCD grand public défiltrée, en quelques minutes avec un plasma d'argon excité par une source d'un GBq. Une scintillation des gaz rares excités par des ions lourds est observable, avec une composante spectrale dans la gamme proche infrarouge sous forme de raies d'émissions résolues. L'analyse des spectres d'émission laissent présager un très faible taux d'ionisation du plasma froid vu l'absence de composante continue, et l'impossibilité d'un équilibre thermody-

<sup>6.</sup> La convolution des deux profils donne en fait un profil de Voigt

namique, même partiel en son sein.

Cette observation restreint l'utilisation de codes de calcul de plasmas déjà existants puisque la majorité, utilisée dans le cas de plasma RF ou capacitifs se basent sur un modèle d'équilibre thermodynamique local partiel. En conséquence, un code de calcul dédié à ce type de plasma peu commun doit être développé autour d'un autre modèle, élaboré Chapitre 3.

Des acquisitions de spectres d'émission du plasma étagées sur son axe vertical permettraient de mieux cerner les dynamiques de peuplement des niveaux du gaz en fonction du ralentissement des ions lourds, et d'appliquer une inversion d'Abel. Le manque de luminosité d'un tel plasma rend la méthode peu pratique car les temps de pose sont très longs, même sur l'intégralité du plasma. L'utilisation d'un gaz dont la gamme de longueur d'onde où les photodétecteurs silicium sont les plus sensibles, comme le néon, pourrait permettre de palier à cet obstacle.

L'utilisation d'une seule espèce de gaz monoatomique dans une chambre à fission optique permet un diagnostic en ligne de son remplissage grâce au mécanisme d'élargissement de résonance, visible sur certaines raies de désexcitations des gaz rares. Cette technique, réalisable avec un simple réseau de diffraction fixe et une rangée de photodiodes ou un spectromètre miniature offre une simplicité de mise en œuvre décisive pour une future application industrielle. La composition chimique du gaz peut également être estimée en ligne par spectroscopie d'émission, ce qui ouvre la voie à l'auto-diagnostic de futures chambres à fission optiques.

L'augmentation de la température du gaz d'un futur détecteur de neutron basé sur la scintillation gazeuse n'aura pas d'effet sur son spectre d'émission puisque l'effet Doppler à des températures comme celles rencontrées en réacteur à caloporteur sodium reste négligeable.

Les parois du détecteur vont émettre un rayonnement de type corps noir ou gris, qui peut être simplement supprimé car ne s'agissant que d'un continuum, alors que le plasma émet des raies discrètes.

# 2.5 Publications



RECEIVED: June 27, 2019 Accepted: September 2, 2019 Published: September 17, 2019

 $3^{\rm RD}$  European Conference on Plasma Diagnostics (ECPD2019) 6–10 May 2019 LISBON, PORTUGAL

## Heavy-ions induced scintillation experiments

#### M. Lamotte, 1 G. De Izarra and C. Jammes

CEA, DEN, DER, Instrumentation, Sensors and Dosimetry Laboratory, Cadarache, F-13108 Saint-Paul-Lez-Durance, France

E-mail: maxime.lamotte@cea.fr

ABSTRACT: The French Alternative Energies and Atomic Energy Commission (CEA) is developing fission chambers relying on gas luminescence capable of high gamma signal rejection and self-diagnostic capabilities allowing high dependability level. Scintillation yield of noble gases by energetic ions (average initial energy between 68 MeV to 99 MeV) is evaluated for nuclear power reactor instrumentation application. Neutron interaction with fissile material can provide energetic heavy ions at a rate proportional to the neutron flux. The understanding of fission fragments as excitation source is required for noble gas scintillation neutron detectors. This work deals with evaluation of the optical signal heavy-ions induced in cold plasma. A dedicated experimental device (PSEG) is presented. Plutonium 238 is selected as a continuous source of heavy ions in order to avoid technological constraints of neutron flux tests, as a first step in the experimental validation process. Estimation of signal power is performed as well as Optical Emission Spectrum analysis. As expected, no Partial Local Thermodynamic Equilibrium is satisfied from experiments. The effect of pressure on the visible to infrared emission spectrum is analysed.

Keywords: Plasma diagnostics - charged-particle spectroscopy; Gaseous detectors; Neutron detectors (cold, thermal, fast neutrons)

| Corres | ponding   | author  |
|--------|-----------|---------|
| ^COHES | poliuling | auunoi. |

1

1

3

4

| C | Contents               |  |  |  |  |  |  |
|---|------------------------|--|--|--|--|--|--|
| 1 | Introduction           |  |  |  |  |  |  |
| 2 | Material and methods   |  |  |  |  |  |  |
| 3 | Results and discussion |  |  |  |  |  |  |
| 1 | Conclusion             |  |  |  |  |  |  |
|   |                        |  |  |  |  |  |  |

#### 1 Introduction

Nuclear power reactors relies on available and dependable instrumentation for general control and protection [1]. The French Alternative Energies and Atomic Commission (CEA) proposes a new generation of radiation-hardened neutron detectors for reactor power monitoring, based on optical fission chambers. This alternative design requires no electrical power on the sensor side, while the signal may be transmitted with regular optical-fibres over tens of metres in harsh environment, ensuring a high dependability level. In such gaseous detectors, heavy ions with a high ionization power (initial charge between +15 and +22) are generated by fission reaction with a fissile coating. As the fission fragments slow-down in the rare gas by inelastic collisions, they generate deltarays (namely electrons) up to several keV, bringing the gas' atoms to excited and ionised states. That ionised gas forms a cold plasma emitting de-excitation lines from spontaneous radiative decay of the excited gas' species, rising emission of photons in the visible-to-near-infrared (around 1 μm) spectrum. The very high ionization potential of heavy ions in the gas ensures rejection of gamma-induced photoelectrons by level discrimination. This paper addresses the first milestones towards development of passive (in terms of voltage bias) neutron detection systems. A heavy-ion pumped cold plasma is produced in a dedicated plasma reactor and Optical Emission spectroscopy is performed.

#### 2 Material and methods

A heavy ion-induced plasma reactor is designed, the PSEG, with its main goals being to mock up the slowing down of fission fragments in a future detector. The device is optimized for collecting Optical Emission Spectroscopy (OES) data to validate under development numerical plasma simulation code (figure 1).

The excitation source consists of  $1.8 \, \mathrm{mg}$  of  $^{238}\mathrm{PuO}_2$ , an alpha particles emitter, with a 98% purity. Alpha particles have the same pair-production energy spent ( $W_{\mathrm{exc}}$ ) on noble gases as that of heavy ions [2]. The plutonium is coated atop a planar stainless steel  $\varnothing$  18 mm sheet. The plutonium-coated surface is about  $1.76 \, \mathrm{cm}^2$  and  $0.9 \, \mu\mathrm{m}$  thick. A total activity of 1 GBq is expected, half of which will contribute to excite the gas, as 50% of the emitted ions will be stopped in the

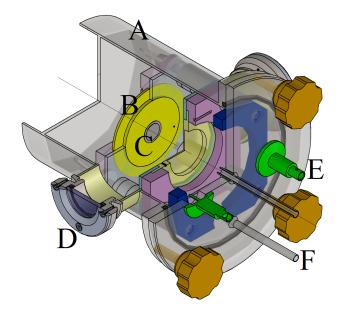


Figure 1. CAD model of PSEG. A: steel envelope, B: electrode, C: Plutonium layer D: view-port E: BNC connector F: gas inlet. Overall dimensions:  $\emptyset$ 180 mm  $\times$  220 mm

substrate. Given the main decay mode of  $^{238}$ PuO<sub>2</sub>, one can estimate the energy flux deposited in the gas:

$$\phi_E[eV.s^{-1}] = \frac{1}{2} \cdot A \cdot \int_{h=0}^{h=t} \int_{\theta=0}^{\pi} \int_{\phi=0}^{\pi/2} E dh d\theta d\phi$$
 (2.1)

where in the half-infinite substrate of thickness t, h is the height at which the alpha particle is generated at random angles  $\theta$  and  $\phi$  with a production rate A.

Selecting a thin layer of radioactive material (with respect to the mean range of the alpha particles in the coating:  $\approx 11\,\mu\text{m}$ ) is appealing for early development: the monoenergetic characteristic allows easier modelling of primary electron generation by means of semi-empirical simply differential ion-atom ionisation cross-sections. The increase of radioactive coating thickness only increases the emission rate at the coating interface in the limit of the range of the particles. A trade-off between energy deposition rate and alpha particles energy spectrum was performed as further thickness will screen alpha particles generated deeper in the coating. The rate of excited atom production in the cold plasma is roughly estimated by equation (2.2) relying on the  $W_{\text{exc}}$ -value of the target gas:

$$Q_{\rm exc} = \phi_E / W_{\rm exc} \tag{2.2}$$

where  $W_{\rm exc}$  is the energy required to produce an excited atom in a medium taking into account all phenomena such as primary electron excitation, electron collision cascade, heavy-ion excitation, etc... [3]  $W_{\rm exc}$  in rare gases excited by alpha particles and fission fragments has been measured by several authors and values about 53.8 eV for Argon [4]. Fore pure rare gases, no substantial pressure effect on the W-values have been measured [7] Recalling equation (2.2), about 5.16E+13

argon atoms can be excited every second. The range of 5.56 MeV alpha particles in argon at STP (Standard conditions for Temperature and Pressure) is about 37 mm [5]: a nuclear-excited plasma of argon at atmospheric pressure of the shape of a half sphere if the excitation source is punctual will therefore have a volume of about 100 mℓ. This value was used reference for the design of PSEG. Two high purity silica windows ensure a 93% transmission of the optical signal between the ultraviolet to near-infrared range. The Ø30 mm windows are mounted on machined stainless flanges, sealed with silicone o'rings, and sized for operations between rough vacuum to 7 atm filling. Materials used to manufacture PSEG imply slow degassing properties (polymers are avoided) in order to prevent pollution of the gas during and out of operation. A pair of high-voltage feedtrough with BNC connectors are welded on the lid of PSEG for a possible polarization of electrodes. Helium and argon fillings from standard industrial-welding cylinders are injected at various pressure in the  $1.1\,\ell$  PSEG. The typical Arcal Prime industrial argon contains less than 100 ppm of pollutants. A Princeton Instrument SP2558 spectrometer with a focal length of 50 cm, Silver-coated mirrors and CCD Pixis camera with resolution of 1340x100 pixels record emission spectra with 600 grooves/mm 1 µm blazed grating. Near-infrared pictures of the plasma helps to locate specific regions of the nuclear-excited gas as no radiation is visible by the naked eye. A standard CCD general purpose camera without infrared filter captures an image of the plasma in 3 minutes after background subtraction.

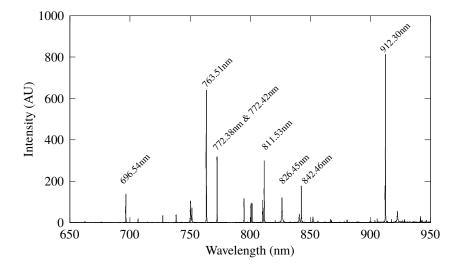
#### 3 Results and discussion

Figure 2 shows a photography of a 2 and 4 atm argon plasma excited by  $^{238}$ PuO<sub>2</sub> alpha source. The impact of pressure on the shape and intensity of the plasma is clearly visible, as well as the range of the alpha particles and plasma's volume. The upper luminous part of the picture is a reflection of the light by the polished stainless steel electrodes.



Figure 2. Picture of an alpha-particle excited Argon plasma. a) 4 atm b) 2 atm .

Preliminary spectra of the unfocused plasma were acquired with 3 minutes exposures between 300 and 1500 nm. The source of excitation was located 20 cm away from the spectrometer's entrance slit opened of  $10\,\mu\text{m}$ . Pressures ranging between 0.1 and 4 atm were set in PSEG after pumping-degassing cycles to exhaust any molecular contamination between fillings. A strong emission spectrum in the near-infrared was recorded in the case of argon, and no pollutant molecular bands (eg: from nitrogen or water) were found.



**Figure 3**. Emission spectrum of a 2 atm alpha particle-excited argon plasma acquired in 20 minutes. No argon ionized species' emission lines are detected. Strong Ar-I emission lines are labelled.

The absence of continuum component on the spectra seems to indicate radiative recombinations and bremsstrahlung effects are negligible, hence translating the very low ionisation rate of the studied plasma. Long acquisitions of 12 h did not show any continuum radiation either but the background infrared signal removed after dark shots.

Assuming a Local Thermodynamic Equilibrium (LTE), a linear relationship between  $ln\left(\frac{\lambda_{ij}I_{ij}}{hcA_{ij}g_j}\right)$  and the upper levels' energies  $E_j$  can be plotted [6], where I are the line intensities,  $\lambda$  their respective transition wavelengths, A their spontaneous de-excitation coefficient. A least-square line fitting to data points may indicate LTE conditions were met and the plasma is optically thin if no points deviate from the line.

Boltzmann plots where produced as a way to estimate the population of Ar I excitation state and possibly retrieve an excitation temperature from the slope of line fit to data points.

Given the sparse data on argon excited species mostly relying on the lower energy levels  ${}^2P_{10}$  to  ${}^2P_1$ , no clear tendency can be cleared: no transitions involving upper energy levels above 13.47 eV could be detected even with long (2 h) acquisitions. The tendency line, with a coefficient of determination as low as 0.02, displays a positive slope, incompatible with LTE hypothesis thus, no plasma temperature could be estimated using Boltzmann plots. As expected for cold plasma created in such way, LTE conditions do not hold.

#### 4 Conclusion

A heavy-ion cold plasma reactor has been designed for noble gas scintillation studies. Pictures of argon plasma excited by 5.56 MeV alpha particles where obtained using an infrared-filter free CCD camera. Range of ions and general shape of the cold plasma has been assessed. An Optical Emission Spectroscopy analysis of Argon ion excited cold-plasma was performed at ranging

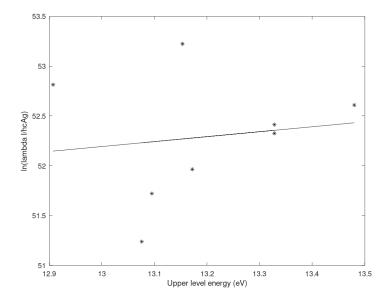


Figure 4. Boltzmann plot of an alpha particle-excited argon plasma of 0.5 atm.

pressures. Lower energy levels seems to be the most populated as no emission line from decays above level  $^2P_1$  were detected at any pressure. The pressure of the cold plasma impacts the shape and the emission line intensity. Boltzmann plots based on Argon-I emission lines were produced. No Local Thermodynamic Equilibrium holds. A collisional-radiative model will be developed to understand and simulate processes involved in heavy-ion excited high pressure noble gas cold plasmas.

#### References

- [1] C. Jammes, N. Chapoutier, P. Filliatre, J.-P. Jeannot, F. Jadot, D. Verrier et al., *Neutron flux monitoring system of the french GEN-IV SFR: Assessment of diverse solutions for in-vessel detector installation*, *Nucl. Eng. Des.* **270** (2014) 273.
- [2] U. Giesen and J. Beck, New measurements of w-values for protons and alpha particles, Radiat. Prot. Dosim. 161 (2013) 23.
- [3] R. Platzman, Total ionization in gases by high-energy particles: An appraisal of our understanding, Int. J. Appl. Radiat. Isot. 10 (1961) 116.
- [4] R. Walters, Excitation of gases by fission fragments, Ph.D. Thesis, University of Florida (1973).
- [5] R. Walters, Stopping-Power & Range Tables for Electrons, Protons, and Helium Ions, NIST Standard Reference Database 124, NIST (2017).
- [6] H.-J. Kunze, Introduction to Plasma Spectroscopy, Elsevier (2009).
- [7] J.E. Parks, G.S. Hurst, T.E. Stewart and H.L. Weidner, *Ionization of the noble gases by protons: Jesse effects as a function of pressure*, *J. Chem. Phys.* **57** (1972) 5467.



Contents lists available at ScienceDirect

## Nuclear Inst. and Methods in Physics Research, A

journal homepage: www.elsevier.com/locate/nima



# Development and first use of an experimental device for fission-induced spectrometry applied to neutron flux monitoring



M. Lamotte, G. de Izarra\*, C. Jammes

CEA, DEN DER, Instrumentation Sensors and Dosimetry Laboratory, Cadarache, F-13108 Saint-Paul-lez-Durance, France

#### ARTICLE INFO

#### Keywords: Fission chambers Radiation-hard detectors Gaseous detectors

#### ABSTRACT

In order to provide dependable neutron flux instrumentation for Generation IV Sodium-cooled Fast Reactors (SFR), the French Atomic and Alternative Energies Commission (CEA) is investigating the feasibility of an innovative technology based on the optical signal produced within a fission chamber. In such gaseous detectors, neutrons interact with fissile material releasing heavy ions in the MeV-range, eventually leading to spontaneous photon emission in the ultraviolet-to-infrared range thanks to gas excitation and ionization. In this paper, the process of light generation is analyzed through semi-empirical models and custom-developed codes. A specific instrumentation has been defined and manufactured to emulate optical fission chambers and collect basic spectroscopic data required for model-based development approach. That testing device was named PSEG, which stands for Prototype of Scintillator Electrodes-Gas. Experimental validations have been carried out: the ionized argon gas exhibited no local thermodynamic equilibrium. Furthermore, the broadening of selected argon emission lines due to pressure change offers a promising self-diagnosis capability for future optical fission chambers.

#### 1. Introduction

Nuclear energy technology has not only to meet safety requirements but also relies on dependable instrumentation for reactor control and protection [1]. Because the neutron flux monitoring instrumentation of a pool-type Sodium-cooled Fast Reactor (SFR) of Generation IV has to be placed into its vessel, robust fission chambers are required. Only high-temperature fission chambers have proven to sustain and reject the signal induced by up to 10 MGy/h of gamma irradiation as found behind a neutron shield [2]. Placement of such detectors in an SFR pool therefore requires a high neutron-to-gamma discrimination level. At high temperature above 400 °C, standard fission chambers endure partial discharges, occurring in both the sensor and insulated cables [2], and challenges neutron detection at startup [3]. Ability for in-vessel neutron detector to self-diagnosis is also a key feature for dependable measurements. The French Alternative Energies and Atomic Energy Commission (CEA) proposes a new generation of neutron detectors for SFR neutron flux monitoring, based on the luminescence of noble gases. This optical fission chamber requires no power on the sensor, while the signal can be transmitted with optical fibers over a long distance in the harsh environment of such a reactor type. It is important to note, that the development of such a detector technology is enabled by recent advances in optical fiber technology applied to nuclear reactor instrumentation [4-6] and latest progresses on high sensitive near-infrared optical instrumentation [7].

No need for polarization of optical fission chambers suppresses the partial discharge risk and also enables pressure diagnosis by means of light-emission spectra analysis, while preserving high gamma-to-neutron discrimination. Transmitting information by optical means cancels requirements for electric insulation and electromagnetic immunity. In addition, optical fibers make it possible to multiplex signals in a single conductor, leading to an easier wiring through the upper plate of a nuclear reactor vessel.

This paper starts with the state of the art of both optical neutron detector tentatives and available spectroscopic data. Methodology and models used to assess the feasibility of a gas-scintillation-based neutron detector for nuclear reactor will be then detailed. The definition and manufacture of our testing device dedicated to noble gas excitation study will be also presented. Report of experiments validating our developed testing device will follow. Conclusion obtained from our observations and future milestones towards development of optical fission chambers and cold-plasma models will be finally exposed.

#### 2. State of the art

Since the radium discovery, the luminescence of rare gas under heavy ion irradiation [8,9] have been observed. Koch at CEA utilized noble gas scintillation for neutron flux instrumentation in the year

<sup>\*</sup> Corresponding author.

E-mail address: gregoire.DEIZARRA@cea.fr (G. de Izarra).

1959 [10]. Through her extensive work on the EL-2 reactor, an optical setup for neutron detection featured promising performances such as nanosecond-range time resolution, satisfactory particle energy discrimination, efficient gamma-ray rejection and thermal-to-fast neutron energy detection range. The active part, which was dipped into the reactor pool, was an argon-filled silica vial enclosing a uranium foil. A fluorescent layer coating that vial made visible far-ultraviolet photons coming from both recombinations and decays of argon excited-states. A several-meter-long light-guide tube going out of the pool was ended by mirrors leading photons to a Photo-Multiplier Tube (PMT). That work was abandoned due to the degradation of the wavelength-shifter under gamma irradiation, and the difficulty to transport UV-light from the reactor core to a shielded remote location. Since Koch's work, advent of radiation-hardened optical fibers and solid-state photon detectors happened, allowing nowadays remote near-infrared photon sensing with high efficiency and over long distance. High pressure heavyion-induced plasmas are not as well described and modeled as other plasmas (e.g. corona or magnetron). Because no Local Thermodynamic Equilibrium (LTE) should be encountered in such weakly ionized plasmas, general models have to be used in order to understand mechanisms and compute the expected emission spectrum generated in an optical fission chamber. Miley, Thiess and Guyot [11,12] computed energy deposition of various heavy ions in rare gases using W-value, the mean energy needed to create an ion-electron pair and simple models, but neither theoretical spectrum nor luminous intensity estimates were obtained. Optical Emission Spectroscopy analysis of heavy-ions induced scintillation can provide Electron Energy Distribution Function (EEDF). This way, one will be able to simulate plasma kinetics.

#### 3. Modeling of fission-induced photon detection

Because the neutron irradiation of a bulky experimental device requires nuclear-grade materials, radio-protection provisions and size limitations, liminary experiments will be more conveniently conducted with an alpha-emitter as source of heavy ions instead of a fissile coating in a dedicated plasma reactor. Although alpha particles are lighter and then release less energy (~5 MeV) than fission fragments (~100 MeV), they however display the same energy amount for ionpair formation (W-value) in rare gases [13] and have a similar range (36 mm against 24 mm). In addition, the maximum energy transfer during electron/ion collisions matches the order of magnitude of that found for fission fragments (~3 keV). This way, it is expected that the primary electron energy distribution is close to that obtained with fission fragments. Hence, although a lower energy deposition rate will lead to a weaker overall photon amplitude, alpha particles are representative enough of fission fragments for gas excitation and ionization. Hereafter is described the methodology of defining our testing device, the Prototype of Scintillator Electrodes-Gas (PSEG) dedicated to Optical Emission Spectroscopy (OES). PSEG definition follows the flowchart displayed in Fig. 1. Future simulations of optical fission chambers will rely on models established by observations obtained on PSEG. Because operating scenarios will involve various noble gases and gas excitation processes, PSEG has to be versatile in terms of pressure, filling gas, excitation source and instrumentation. This way, PSEG (Fig. 4) will bring information on the distribution and evolution of gas excited states and also benchmark optical detection sensor solutions such as Avalanche Photo-Diode (APD), Silicon Photo-Multiplier (SiPM) and Charge Coupled Devices (CCD).

#### 3.1. Heavy-ion transport in coating

To ensure a high level of gas excitation by heavy ions featuring a narrow energy distribution, an alpha-emitter plutonium 238, with a half-life of 90 years was selected. In a fissile layer, MeV-range

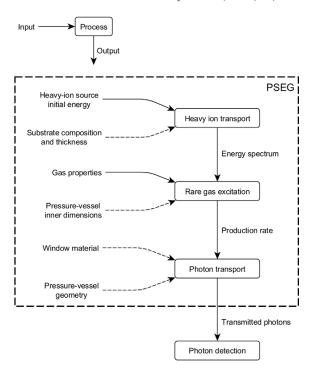


Fig. 1. Flowchart of PSEG definition steps. Dashed arrows indicates variables to be estimated for the device using analytical models.

 Table 1

 Slowing-down in various coatings and 1-atm argon. HFF stands for Heavy Fission

 Fragment and LFF for Light Fission Fragment.

| Coating           |     |               |                         |               |      | Argon         |
|-------------------|-----|---------------|-------------------------|---------------|------|---------------|
| Material          | Ion | Mass<br>(AMU) | Initial energy<br>(MeV) | Range<br>(mm) | n    | Range<br>(mm) |
| <sup>238</sup> Pu | α   | 4             | 5.56                    | 12.0          | 0.74 | 36.3          |
| <sup>10</sup> B   | α   | 4             | 1.49                    | 3.41          | 1.25 | 11.1          |
| <sup>235</sup> U  | HFF | 139           | 68.1                    | 9.67          | 1.65 | 19.4          |
| <sup>235</sup> U  | LFF | 95            | 98.9                    | 7.42          | 1.69 | 23.9          |

heavy ions produced at random depths endure slowing down through collisions, described by the so-called moderation law of Eq. (1).

$$E(x) = E_0 \left( 1 - \frac{x}{R_{E_0}} \right)^n \tag{1}$$

This semi-empirical model, as used by Chung and Prelas [14], describes the energy E of a particle born at a given distance x.  $R_{E0}$  is the range of particles with initial energy  $E_0$  in a layer of a given density  $\rho$ . The slowing down parameter n is estimated by fitting the moderation law to either experimental data [15,16] or tabulated data provided by the well-known SRIM code [17]. Table 1 displays the fitting parameter n for alpha excitation sources and fission fragments produced in fissile coatings.

Given that the coating thickness slows down ions, its value comes out of a trade-off between a high ion-source strength and high ion energies. For a  $\sim 5$  5 MeV alpha particle, the range within a plutonium oxide coating is about 11  $\mu$ m. We computed the energy distribution of heavy ions emerging from the plutonium oxide coating using a Monte Carlo approach and Eq. (1) for initial random depths and emission directions. The ion track is assumed as straight. The ion slowing down is estimated using a pre-determined n value. Fig. 2 shows the average energy of alpha particles escaping a plutonium coating.

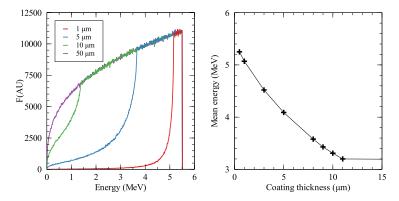


Fig. 2. Ion energy distribution and a <sup>238</sup>Pu coating thickness. Energy distribution of alpha particles escaping a coating of various thicknesses (left). Mean energy of alpha particles as a function of coating thickness (right).

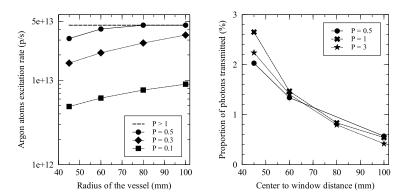


Fig. 3. Argon excitation and light detection. At left, it is shown the production rate of excited argon atoms by a 1E9-Bq alpha source as a function of the chamber radius for various pressures (atm). At right, it is shown the proportion of photons crossing a 30-mm-diameter window to those generated within the chamber as a function of the distance between the window and alpha-emitting plate for various pressures as well.

#### 3.2. Rare gas excitation

Gas ionization by heavy particles is often grossly modeled with the use of the so-called W-value, the mean energy needed to produce an ion–electron pair. All phenomena arising from collisions and electronic cascades are taken into account in this quantity [18]: secondary electron emission, Penning ionization, atomic level excitation. However, hereafter is more relevant to use the mean energy needed to excite an atom, denoted as  $W_{exc}$  [19]:

$$W_{\rm exc} = \left(\frac{N_{\rm ion}}{N_{\rm exc}}\right) E_{\rm ion} + E_{\rm exc} + \left(\frac{N_{\rm ion}}{N_{\rm exc}}\right) \epsilon \tag{2}$$

 $N_{\rm ion}$  and  $N_{\rm exc}$  are the number of ions and that of excited states produced by the ions themselves.  $E_{\rm ion}$  and  $E_{\rm exc}$  are the energies of ionization and excitation by electrons.  $\epsilon$  is the sub-excitation kinetic energy of delta rays. It was shown that  $W\text{-value}\approx 0.4\times W_{\rm exc}$  [20]. Tabulated and experimental values from [18] were used, yielding a  $W_{\rm exc}$  value of about 67.9 eV.

Assuming that a single alpha particle can excite over  $E_0/W_{\rm exc}$  gas atoms along its path allows us to estimate the ultimate light emission intensity. Since  $W_{\rm exc}$  has to do with the whole number of excited gas atoms only, the identification of atom excitation levels will have to be performed by experiments on PSEG. Table 1 exemplifies the ranges of heavy ions for a future optical fission chamber. Lowering the detector pressure necessarily leads to increase the ranges of heavy ions that may then collide the chamber walls. We estimated the ion energy release

using a Monte-Carlo integral calculation. Any mono-energy heavy ion is emitted at a given distance from the center of the disk-shaped coating, along a straight path of random hemispherical directions. Its range is described by the Bragg curve computed by SRIM. In the case when a particle hits a chamber wall, its remaining energy  $E_{\rm hit}$  is subtracted from its initial one. Then, a random propagation direction of generated photons is selected until they hit a wall or viewport. Photons hitting a viewport are finally registered to estimate the amount of light that a photo-sensor can detect. Fig. 3 displays the generated-to-recovered photon ratio as a function of the PSEG pressure and diameter.

#### 4. Instrumentation definition and fabrication

#### 4.1. Ionization source

To ensure a low dispersion of alpha particle energy spectrum, a thin yet active layer of alpha-emitter has to be defined.  $^{238}$ Pu has a high specific activity ( $\sim$ 5.58E11 Bq/g in its oxide form,  $\rho=11.5$  g/cm³). In the case of a thin slab, the energy deposition rate in gas is given by:

$$E_{\text{dep}} = E_0 \cdot A_{\text{Pu}} \cdot \frac{1}{2} \tag{3}$$

 $A_{\rm Pu}$  is the alpha activity of the thin coating. The factor 1/2 accounts for particles emitted towards the support plate.

Our PuO<sub>2</sub> coating features 15-mm diameter and 1-µm thickness, which are the maximum values achievable with our electro-deposition

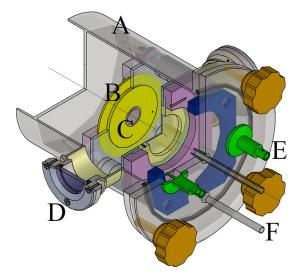


Fig. 4. Cut-view of the final design of the PSEG. A: Steel envelope, B: Electrode, C: Plutonium layer D: Viewport E: BNC connector F: Gas inlet.

process. At least 1.1E9 Bq alpha particles per second should be emitted. That production rate will result in an energy release in the gas of 3E9 MeV/s. Instead, using a  $^{235}\text{U}$  coating, a rate of 3.52E7 fissions per second would be required to mimic an alpha source energy release (only half of the energy is released within the gas). Such a fission rate would require a pellet of pure  $^{235}\text{U}$  of 15-mm diameter and 0.5- $\mu\text{m}$ 

thickness irradiated by at a thermal neutron flux of 1.12E11  $\mbox{cm}^2~\mbox{s}^{-1}$  at least.

#### 4.2. Filling gas

Argon was selected for its high-availability and satisfactory purity at low cost. Argon as buffer gas has to be nitrogen-free up to 100 ppm to prevent quenching of argon metastable species by molecular nitrogen [21]. Welding application employs Arcal Prime cylinders, containing less than 10 ppm of  $N_2$ , offering a cost-effective solution for large gas consumption. Since argon is also widely-used in cold plasma physics, and its cross sections of several excitation levels are well experimentally estimated under 1 keV [22]. The argon first excitation threshold is as low as 11.548 eV, much lower than that of helium (~19.82 eV), what ensures higher excitation-level populating. Since we designed a spacious ionization chamber, the complete alpha particle track is contained within the gas. This way, we can estimate energy deposition rate and plutonium layer activity. The excitation rate then reaches 4.33E13 argon atoms per second (Section 4.1).

#### 4.3. Detection window

Both the pressure chamber optimal dimensions and geometry definition have to be consistent with placement of technical components and handling limits. Taking into account for the alpha particle range in argon at pressure between 1 and 5 bar, we chose standard 30 mm diameter portholes. It allows us to observe the whole plasma and makes possible reconstruction techniques like Abel inversion for spectroscopic measurements. By means of the code presented in Section 3.2, we estimated the proportion of photons crossing the viewport to generated photons. We found an optimal trade-off between the collected light, chamber radius and operational pressure (see Fig. 3).





Fig. 5. PSEG after machining and assembling.

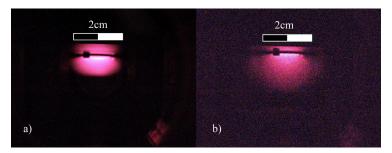


Fig. 6. Images of 4 atm (a) and 2 atm (b) argon glow excited by alpha particles, as seen by a standard commercial camera without IR-filter after a 3-min exposure time.

#### 4.4. Mechanical structure and manufacture

For handling and interface requirements, the chamber diameter could not be larger than 150 mm and welding the viewport requires a minimum distance from the chamber walls. Thus, the final design, presented in Fig. 4, comprises a 120-mm diameter 3-mm thick steel cylinder with two diametrically opposed circular windows welded on a 30-mm cylindrical extension. Those windows are made of fused silica that features both satisfactory transmission (>93%) in the near-infrared region and high elastic modulus (73 GPa). An access to the chamber internal parts is achieved by means of an o'ring sealed lid made of 8mm-thick 304L steel. Four studs are welded on the lid to support an assembly of spacers, electrodes, fissile coating and butterfly screws to ease operation in glove box. The lid also embeds two 6-mm welded pipes for gas flow as well as two BNC 3-kV feedthroughs for possibly polarizing a pair of steel electrodes. The nylon spacers, the length of which spans from 1 to 20 mm, provide reliable electrode spacing while ensuring electric insulation. Such a flexible configuration is required to validate models in the case where either heavy ions collide the chamber walls or an electric field is needed.

#### 4.5. Infra-red detection

As already aforementioned, the portview was designed so that it transmits enough light for further detection. As no information is available on the emitted spectrum, one assumes that all photons have a wavelength of 800 nm to compute the emitted power. One then estimates a power of 50 nW radiated light. The sensors selected for direct measurements are cooled avalanche photodiode in Geiger mode and PIN photodiode (photosensitivity of 0.5 A/W) featuring enhanced detection capabilities in the near-infrared and fast recovery time. Both of them allow for time-based analysis for future experiments. For optical emission spectroscopy, a Princeton SP2558 50-cm focal spectrograph is used with three different gratings (300, 600 and 1200 grooves/mm). Spectra are recorded with a Pixis 100 BRX CCD camera featuring a 1340 × 100 matrix of 20 µm pixels.

#### 5. Experimental validation

#### 5.1. Sealing test

An initial helium slow-leakage test was performed after passivation of the stainless steel parts of the chamber (Fig. 5) for vacuum retainment measurements. A gas leak rate as low as 2.17E-8 Pa m³ s<sup>-1</sup> was detected at ultra high vacuum levels. Before initial loading with radioactive material, a positive pressure test was engaged for 2 months with 120% of nominal pressure with argon. No pressure drop was detected (gauge resolution of 100 Pa).

#### 5.2. Transmission test

Near-infrared imaging of heavy-ion generated cold plasma helped us to precisely focus the optical assembly for spectroscopic characterization. A standard Canon 8400 digital camera, the infrared filter of which was removed, allowed us to take a photography detailed enough for qualitative definition of regions of interest (Fig. 6). A 3-min exposure time and background-suppression processing were required.

#### 5.3. Spectroscopic analysis of nuclear plasma

A Light emission spectra analysis was performed on a 600-grooves/mm grating blazed at 1  $\mu m$  and a 10  $\mu m$  entrance slit during a few 3-min acquisition steps. An unfocused plasma slab 2 mm long located at 10 mm from the plutonium-layer was targeted. A near-infrared de-excitation spectrum is clearly observable, as shown in

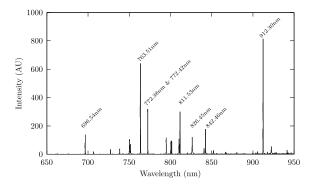


Fig. 7. Spectrum obtained from PSEG filled with 2 atm of pure argon. No emission lines of argon ions are detected. Strong emission lines of neutral argon (Ar-I) are labeled.

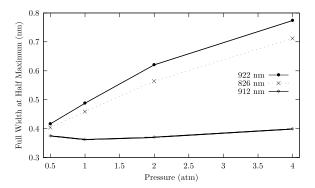
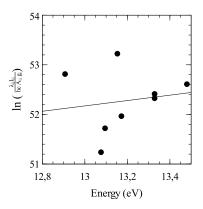


Fig. 8. FWHM of argon emission lines at 826 nm, 922 nm (resonant  $^1$ S $_2$ -linked levels) and 912 nm (optical level). The instrument spectral resolution was 0.36 nm.

Fig. 7. Neither molecular band nor continuous background is noticeable. As a result, there are no gas pollution and negligible recombinations, attachments and bremsstrahlung. A series of long acquisitions with 20-min steps on a 1200-grooves/mm grating was performed to detect any continuum in argon radiation spectrum. No baseline after dark frame subtractions was observed. As previously noticed, one also draws the conclusion that the light emission due to atomic excitations is preponderant. Phenomena such as recombinations and bremsstrahlung are negligible in excitation mechanisms as well. This way, there exist very low electron density and ionization rate. As shown in Table 2, some measured emission lines seem as affected by a pressure variation. Actually, because the argon plasma is very weakly ionized, it is likely that a so-called resonance broadening effect happened [23]: radiatively-linked levels decay into both the resonant levels 1S2 and <sup>1</sup>S<sub>4</sub>. Such the observed broadening is then accounted for by argonargon collisions only. After Ref. [23], the Full Width at Half Maximum (FWHM) of such resonance-broadened lines FWHM can be estimated

$$\Delta_{1/2}^{r} = 8.6E - 30 \cdot (g_i/g_k)^{0.5} \cdot \lambda^2 \cdot \lambda_r \cdot f_r \cdot N_i$$
 (4)

 $g_i$  et  $g_k$  are respectively statistical weights of upper and lower levels of the radiative decay occurring at wavelength  $\lambda$  in Å. Resonance wavelength is denoted by  $\lambda_r$  with  $f_r$  as oscillator strength, atomic density  $N_i$  in at  ${\rm cm}^{-3}$ . In other words, the linearly increases w.r.t. pressure. As shown in Fig. 8, resonance broadening effect could thus be applied for pressure monitoring or out-gassing detection of an optical fission chamber. The FWHM of argon 826 nm, 922 nm (resonant  $^1{\rm S}_2$  linked levels) and 912-nm (non resonant) emission lines as a function of the PSEG pressure.



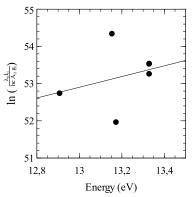


Fig. 9. Boltzmann plots for a cold-plasma excited by alpha particles at 0.5 atm (left) and 4 atm (right).

**Table 2**Peak-area ratios of emission line as a function of PSEG argon pressure (in atm). Emission line wavelengths are expressed in nm. The area of the 912-nm line is the reference one since it is the greatest.

| Pressure | 912/922 | 912/826 | 912/750 | 912/811 | 912/763 |
|----------|---------|---------|---------|---------|---------|
| 0.1      | 6.71    | 2.82    | 0.71    | 0.72    | 0.88    |
| 0.5      | 6.10    | 1.82    | 1.62    | 1.44    | 0.91    |
| 1        | 5.97    | 1.75    | 1.97    | 1.59    | 0.97    |
| 2        | 7.07    | 0.76    | 2.8     | 1.85    | 0.93    |
| 4        | 7.42    | 0.50    | 2.59    | 1.63    | 0.84    |

In order to better characterize the PSEG plasma, we are also interested in validating the LTE assumption. If so, the argon level population has to follow a Boltzmann law. It is then possible to write a line emission coefficient integrated over the whole line profile as

$$\epsilon = g_t \frac{N}{Z(T)} \frac{hc}{4\pi\lambda} A_{tb} exp(\frac{-E_t}{kT})$$
 (5)

where Z(T) is the partition function, N the number of argon atoms,  $A_{tb}$  the Einstein coefficient between level t and b,  $g_t$  the degeneracy of level t,  $E_t$  the energy of level t, and T the temperature. That equation is then turned into a linear relationship:

$$\log \frac{\epsilon \lambda 4\pi}{A_{tb}hcg_t} = -\frac{-E_t}{kT} + ln(\frac{N}{ZT})$$
 (6)

If LTE is verified, the plot is a line with 1/kT slope. Boltzmann plots for a cold plasma produced in PSEG are displayed in Fig. 9. As there exist no emission lines corresponding to energy levels above  $^2P_1$ , we carried out a least-square fitting to scarce data points, which results into a low coefficient of determination less than 0.2. For each pressure case, no ionized states of argon were inferred with confidence since one cannot estimate any positive slope. This way, no LTE conditions holds. In other words, other models are needed for understanding the plasma light emission.

#### 6. Conclusion

The present paper has detailed the definition, manufacture and validation of an innovative testing device, named PSEG (Prototype of Scintillator Electrodes-Gas), dedicated to a long-term endeavor to develop dependable optical fission chambers for pool-type Generation IV SFR. Main PSEG mission is to produce spectral emission data in steady state and pollution-free conditions by MeV-range heavy ions to be compared with cold-plasma simulations and test technological components for light detection.

An alpha-particle source was used to mock-up a noble-gas plasma as it will be produced in future optical fission chambers. OES of argon and helium at various pressures and room temperature indicated strong atomic emission lines. The absence of continuum on all the experimental spectra unveils low ionization rates and electronic densities. Boltzmann plots showed that no LTE was established. Moreover, a linear relationship between the FWMH of some resonance-broadened emission lines and the PSEG pressure was proven. This comes to promising self-diagnosis capabilities of optical fission chambers.

#### Declaration of competing interest

The authors declare that they have no known competing financial interests or personal relationships that could have appeared to influence the work reported in this paper.

#### CRediT authorship contribution statement

M. Lamotte: Writing - original draft, Data acquisition, Data analysis script, Experimental campaign development. G. de Izarra: Writingreview, Data acquisition, Data analysis script, Conceptualisation, Investigation, Methodology. C. Jammes: Writing-review, Conceptualisation, Data analysis, Funding acquisition.

#### References

- [1] C. Jammes, N. Chapoutier, P. Filliatre, J.-P. Jeannot, F. Jadot, D. Verrier, A.-C. Scholer, B. Bernardin, Neutron flux monitoring system of the french gen-iv sfr: Assessment of diverse solutions for in-vessel detector installation, Nucl. Eng. Des. 270 (2014) 273–282, http://dx.doi.org/10.1016/j.nucengdes.2013.12.057, URL http://www.sciencedirect.com/science/article/pii/S0029549314000338.
- [2] C. Jammes, P. Filliatre, B. Geslot, T. Domenech, S. Normand, Assessment of the high temperature fission chamber technology for the french fast reactor program, IEEE Trans. Nucl. Sci. 59 (2011) 1351–1359.
- [3] G. Galli, Study of Partial Partial-Discharge-Induced Pulses in a High Temperature Fission Chambers (Ph.D. thesis), Université Paris-Saclay, 2018, URL https://tel. archives-ouvertes.fr/tel-02170517.
- [4] G. Cheymol, H. Long, J.F. Villard, B. Brichard, High level gamma and neutron irradiation of silica optical fibers in cea osiris nuclear reactor, IEEE Trans. Nucl. Sci. 55 (4) (2008) 2252–2258, http://dx.doi.org/10.1109/TNS.2008.924056.
- [5] G. Laffont, R. Cotillard, N. Roussel, R. Desmarchelier, S. Rougeault, Temperature resistant fiber bragg gratings for on-line and structural health monitoring of the next-generation of nuclear reactors, Sensors 18 (2018) 1791, http://dx.doi.org/ 10.3300/s18061791
- [6] P. Ferdinand, S. Magne, G. Laffont, Optical fiber sensors to improve the safety of nuclear power plants, in: Fourth Asia Pacific Optical Sensors Conference, Vol. 8924, International Society for Optics and Photonics 2013, http://dx.doi.org/10. 1117/12.2033922 URL https://doi.org/10.1117/12.2033922.
- [7] A.I. Nadeev, I.A. Razenkov, D.I. Shelefontyuk, E.S. Shevtsov, Comparison of an avalanche photodiode and a photomultiplier tube as photodetectors of near-infrared radiation in the photon-counting mode, Instrum. Exp. Tech. 61 (3) (2018) 377–381, http://dx.doi.org/10.1134/S0020441218020057, URL https://doi.org/10.1134/S0020441218020057.
- [8] C. Eggler, C. Huddleston, Gaseous scintilliation, IRE Trans. Nucl. Sci. 3 (4) (1956) 36–38.
- [9] E. Grün, A. Schoepper, Über die fluoreszenz von gasen bei anregung durch a-teilchen, Naturforsch 6a (1951) 698.

- [10] L. Koch, Étude de la fluorescence des gaz rares excités par des particules nucléaires, in: Utilisation pour la détection des rayonnements nucléaires (Ph.D. thesis), Université de Paris, 1959.
- [11] G. Miley, P. Thiess, A unified approach to two region ionization-excitation density calculations, Nucl. Appl. 6 (5) (1969) 435–451.
- [12] J.C. Guyot, G.H. Miley, J.T. Verdeyen, Application of a two-region heavy charged particle model to noble-gas plasmas induced by nuclear radiations, Nucl. Sci. Eng. 48 (4) (1972) 373–386, http://dx.doi.org/10.13182/NSE72-A22505, arXiv:https://doi.org/10.13182/NSE72-A22505. URL https://doi.org/10.13182/ NSE72-A22505.
- [13] U. Giesen, J. Beck, New measurements of W-values for protons and alpha particles, Radiat. Prot. Dosim. 161 (1-4) (2014) 23–26, http://dx.doi.org/10. 1093/rpd/nct282.
- [14] A.K. Chung, M.A. Prelas, Charged particle spectra from U235 and B10 micropellets and slab coatings, Laser Part. Beams 2 (2) (1984) 201–211.
- [15] M. Saeki, T. Ishimori, Ranges of fission fragments in uranium-aluminum alloys and uranium oxides, Nippon Genshiryoku Gakkaishi 14 (6) (1972) 278–282.
- [16] V. Nitzki, H. Matzke, Stopping power of 1-9-Mev He++ ions in UO2, (U, Pu)O2, and ThO2, Phys. Rev. B 8 (5) (1973) 1894.

- [17] J.F. Ziegler, M.D. Ziegler, J.P. Biersack, SRIM The stopping and range of ions in matter (2010), Nucl. Instrum. Methods Phys. Res. B 268 (2010) 1818–1823, http://dx.doi.org/10.1016/j.nimb.2010.02.091.
- [18] R. Platzman, Total ionization in gases by high-energy particles: An appraisal of our understanding, Int. J. Appl. Radiat. Isot. 10 (2) (1961) 116–127, http://dx.doi.org/10.1016/0020-708X(61)90108-9, URL http://www.sciencedirect.com/science/article/pii/0020708X61901089.
- [19] R. Chandrasekharan, M. Messina, A. Rubbia, Detection of noble gas scintillation light with large area avalanche photodiodes (LAAPDS), Nucl. Instrum. Methods Phys. Res. A 546 (3) (2005) 426–437, http://dx.doi.org/10.1016/j.nima.2005.03.105, URL http://www.sciencedirect.com/science/article/pii/S0168900205007655.
- [20] M.J. Kushner, Response times and energy partitioning in electron-beam-excited plasmas, J. Appl. Phys. 66 (1989) 2297–2306, http://dx.doi.org/10.1063/1. 344286.
- [21] J. Birks, The Theory and Practice of Scintillation Counting, Elsevier, 2013.
- [22] L.L. Alves, The ist-lisbon database on lxcat, J. Phys. Conf. Ser. 565 (1) (2014).
- [23] G.W.F. Drake, Molecular and Optical Physics Handbook, American Institute of Physics, Woodbury, NY, 1996.

# Bibliographie

- [1] L. Koch, A study of the fluorescence of the rare gases excited by nuclear particles. Use of the principle for the detection of nuclear radiation by scintillation (1959).
- [2] A. Bès, A. Lacoste, Atelier de formation à la conception et réalisation de réacteurs plasmas, 2017.
  - $\operatorname{URL}$  http://plasmasfroids.cnrs.fr/spip.php?article306
- [3] A. Voinov, A. Konak, S. Mel'nikov, A. Sinyanskiĭ, Feasability of developing a CW laser with radionuclide pump source, Soviet Journal of Quantum Electronics 21 (179) (1991).
- [4] G. F. Knoll, Radiation detection and measurement, John Wiley & Sons, 2010.
- [5] V. Nitzki, et al., Stopping power of 1-9-MeV He<sup>++</sup> ions in UO<sub>2</sub>, (U, Pu)O<sub>2</sub>, and ThO<sub>2</sub>, Physical Review B 8 (5) (1973) 1894.
- [6] J. F. Ziegler, M. Ziegler, J. Biersack, Srim the stopping and range of ions in matter (2010), Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section B: Beam Interactions with Materials and Atoms 268 (11) (2010) 1818 1823, 19th International Conference on Ion Beam Analysis. doi:https://doi.org/10.1016/j.nimb.2010.02.091. URL http://www.sciencedirect.com/science/article/pii/S0168583X10001862
- [7] W. Bragg, R. Kleeman, On the alpha particles of radium, and their loss of range in passing through various atoms and molecules, The London, Edinburgh, and Dublin Philosophical Magazine and Journal of Science 10 (57) (1905) 318–340. arXiv:https://doi.org/10.1080/14786440509463378, doi:10.1080/14786440509463378.
  URL https://doi.org/10.1080/14786440509463378
- [8] Y. Ralchenko, A. Kramida, J. Reader, et al., Nist atomic spectra database, National Institute of Standards and Technology, Gaithersburg, MD (2008).
- [9] Crystran, The design of pressure windows (2014). URL https://www.crystran.co.uk/userfiles/files/design-of-pressure-windows. pdf
- [10] D. A. Willistein, An introduction to optical window design, University of Arizona, Introductory Opto-Mechanical Engineering 1 (2006) 1–8.
- [11] P. Cullen, V. Milosavljević, Spectroscopic characterization of a radio-frequency argon plasma jet discharge in ambient air, Progress of Theoretical and Experimental Physics 2015 (6) (2015).
- [12] H.-J. Kunze, Introduction to plasma spectroscopy, Vol. 56, Springer Science & Business Media, 2009.
- [13] C. De Izarra, Calibration d'une lampe à ruban de tungstène, arXiv preprint arXiv:1001.1726 (2010).
- [14] C. De Izarra, J.-M. Gitton, Calibration and temperature profile of a tungsten filament lamp, European journal of physics 31 (4) (2010) 933–942.

BIBLIOGRAPHIE 72

[15] J. Musielok, Stark width measurements of neutral argon lines and comparison with analogous transitions for homologous atoms, Acta Physica Polonica-Series A General Physics 86 (3) (1994) 315–326.

# 3

# Modèle numérique et code de simulation SCENA

Ce chapitre détaille la justification, la conception et l'exploitation d'un code de calcul simulant des traces individuelles de particules lourdes et de leurs essaims d'électrons dans des plasmas-froids excités par le ralentissement d'ions lourds. Ce code de calcul permet de proposer un macro-modèle applicable aux plasmas hors-équilibre à très faible taux d'ionisation, tels qu'identifiés dans une chambre à fission optique par nos observations [1] [2] et de précédents travaux [3].

La plupart des modèles de plasmas nucléaires de la littérature posent l'hypothèse d'un plasma homogène et stationnaire. Ces hypothèses ne conviennent pas à la description des capteurs de neutrons optiques où l'on s'intéresse à la dynamique des traces d'ionisation «isolées».

À ce titre, j'ai choisi de développer un nouveau modèle de plasma nucléaire simulant la trajectoire d'un ion lourd, les interactions de ce dernier avec le gaz cible et la génération d'électrons graines associés. La relaxation de ces électrons graines est implémentée par une méthode de transport Monte-Carlo, la relaxation des niveaux radiatifs du gaz est elle décrite par un modèle de plasma coronaire. Une première publication décrit les modèles physiques identifiés et retenus pour la description de nos plasmas, ainsi qu'une validation des méthodes numériques à l'aide de cas tests et de comparaisons avec l'expérience habituellement utilisée en physique des plasmas et de physique des interactions ions lourds matière.

## 3.1 Nécessité d'un code de calcul innovant

L'observation de plasmas froids excités par ions lourds dans le PSEG ou une chambre à fission optique prototype a montré que le plasma n'est pas en équilibre thermodynamique local et qu'il présente un taux d'ionisation particulièrement faible (absence de fond continu), difficilement quantifiable du fait des dimensions et de la dynamique des traces d'ionisation. L'élaboration de futurs dispositifs optimisés passe par l'emploi d'un modèle physique cohérent avec les observations effectuées, or, la majorité des outils de simulation de plasmas froids se basent sur des hypothèses non applicables ici.

COMSOL [4], outil multiphysique utilisé en ingénierie et en recherche est ainsi capable de si-

muler des plasmas générés par décharge d'arc, couplage inductif ou par radiofréquence. Parmi les données de bases d'intérêt pour caractériser un plasma, on cite la densité électronique, le taux d'ionisation, la dynamique d'excitation et de désexcitation du plasma. Malgré une grande polyvalence, un outil comme COMSOL est bien incapable de renseigner sur la distribution électronique et le spectre d'émission optique d'un plasma non stationnaire et hors-équilibre <sup>1</sup>.

Les outils scientifiques Bolsig Plus [5] [6], Loki-B [7] et Magboltz [8] permettent de résoudre l'équation de Boltzmann pour les électrons avec une approximation à deux termes dans un régime stationnaire. Bien que les propriétés de transport et les taux de réaction qu'ils fournissent soient de première importance pour les chambres à fission classiques, leur intérêt est limité pour la simulation de traces d'ionisation qui sont des phénomènes non stationnaires très loin de l'équilibre thermodynamique. D'autres codes de calcul utilisés de manière routinière dans la communauté des plasmas froids comme Specair [9] (...) ne peuvent voir leurs calculs converger avec des spectres et paramètres de plasma si spécifiques.

Durant l'âge d'or des lasers nucléaires, dans les années 1970, des problématiques similaires de conception d'une simulation efficace furent rencontrées; l'obtention d'un modèle était d'autant plus pressant que l'effet laser était rarement obtenu, ou alors avec des puissances très en deçà de celles recherchées [10] (quelques Watts au maximum).

Guyot et al [11], du Nuclear Engineering Program de l'université d'Illinois, proposèrent un modèle semi-empirique en régime stationnaire afin d'estimer le taux de peuplement des états métastables de l'hélium excités par un dépôt de bore. Leur étude repose sur le ralentissement des ions lourds dans le gaz suivant un pouvoir d'arrêt décrit par des sections-efficaces semi-empiriques de Gryzinski [12]. D'autres auteurs, exploitant une méthode similaire utilisèrent l'approximation de Bethe-Born [13]. La génération des états métastables était traitée indépendament des électrons, à l'aide d'une simple estimation par  $W_{\rm exM}$ . Bien que l'évolution des concentrations de métastables soient obtenues avec un modèle collisionnel, le ralentissement, la reproduction des électrons et leur fonction de distribution demeuraient un problème à part entière. Cette approche intéressante permit néanmoins de statuer de la viabilité d'un effet laser, et un peuplement d'états métastables observé par spectroscopie optique d'absorption.

La fonction de distribution des électrons au moment de leur éjection du cortège du gaz tampon est une donnée fondamentale, souvent obtenue avec des modèles semi-empiriques [10] [11]. Après seulement quelques collisions inélastiques, un électron énergétique  $^2$  verra son énergie cinétique tomber sous le premier potentiel d'excitation du gaz, avant de suivre une distribution de Maxwell-Boltzmann. Si un grand nombre d'électrons d'énergie initiale  $\epsilon_0$  est introduit dans un gaz, la fonction de distribution globale des électrons tendra vers une forme représentée dans la Fig. 3.1. Elle comporte des épaulements dus aux potentiels d'ionisation et d'excitations, rencontrés par les électrons germes après quelques picosecondes de vol. La phase entre la création de cet essaim et son ralentissement jusqu'aux énergies thermiques est cruciale car c'est à ce moment que l'excitation des atomes de gaz a lieu. Des spectres électroniques théoriques obtenus par méthode Monte-Carlo en régime continu furent estimés par Wang et Miley [15] et Weng et Kuschner [16].

D'autres auteurs, notamment Lo et Miley [17], Hassan et Deese [18] utilisèrent un modèle analytique reposant sur les équations de Boltzmann afin d'obtenir un spectre électronique, en régime continu. Dans chaque cas, une forte composante thermique marque un spectre peu

<sup>1.</sup> Ce logiciel peut néanmoins simuler des plasmas hors équilibre comme ceux d'une torche à plasma

<sup>2.</sup> dont l'énergie initiale dépasse le keV

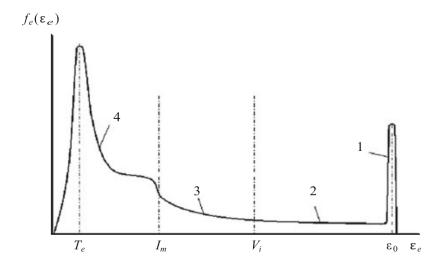


FIGURE 3.1 – Schéma simplifié de la fonction de distribution en énergie des électrons dans un gaz soumis à un faisceau d'électrons. On note les seuils 1 : électrons sources énergétiques, 2 : électrons issus d'ionisations sous le seuil au potentiel Vi, 3 : électrons dans la zone d'excitation au dessus du seuil Im, 4 : électrons thermiques et en cours de collisions élastiques. Données issues de [14]

énergétique avec une queue de distribution atteignant plusieurs keV. Certains auteurs proposeront des distribution quasi-Maxwelliennes, tels Russel [19] et Rees et al [20] bien que les mesures de Walters et al [21] [3] indiquent l'impossibilité d'un équilibre dans un tel plasma. Thiess et Miley [22] démontrèrent une certaine cohérence entre des spectres lumineux d'hélium excités par fragments de fission obtenu par une résolution des équations de Boltzmann, et une expérience en réacteur de recherche. Leur étude conclura néanmoins au besoin d'un modèle numérique plus complet, et l'impossibilité d'obtention d'effet laser sur de l'hélium. Une allure typique des spectres énergétiques stationnaires calculés par ces méthodes est visible Fig. 3.2. La densité électronique de ce type de plasma fut elle mesurée par la méthode micro-onde <sup>3</sup>durant différentes expériences en réacteur par Rees et al. [20], avec une évolution non-linéaire en fonction du flux de neutrons incident, et des valeurs très faibles, de l'ordre de 1E+10 à 1E+12.cm<sup>-3</sup>. Au maximum, avec un flux de neutrons incident de 2.8E+13cm<sup>-2</sup>, le taux d'ionisation atteignait seulement 3E-7.

Devant l'inadaptation manifeste d'un modèle reposant sur un état stationnaire quasi-stérile pour la production d'atomes excités, l'analyse du mécanisme de dégradation de l'énergie des électrons paraît plus adaptée à la description d'un plasma fortement hors équilibre. Schneider et al. [10] insistèrent sur la nécessité d'un modèle de ralentissement des ions lourds et de leurs transferts d'énergie à des électrons induisant des excitations dans le gaz.

Budnik et al. [23] offrirent une approche temporelle du mécanisme de transfert d'énergie d'un ion lourd dans de l'hélium, en considérant une trace d'ionisation unidimensionelle cylindrique grâce à l'hypothèse d'un transport instantané de l'ion lourd source. Ils décrirent les temps caractéristiques de la vie des électrons dans le plasma froid d'une trace d'ionisation, allant des premières picosecondes d'interactions inélastiques, aux microsecondes nécessaires pour les

<sup>3.</sup> Déviation de la fréquence de résonance d'une cavité due à la présence d'électrons

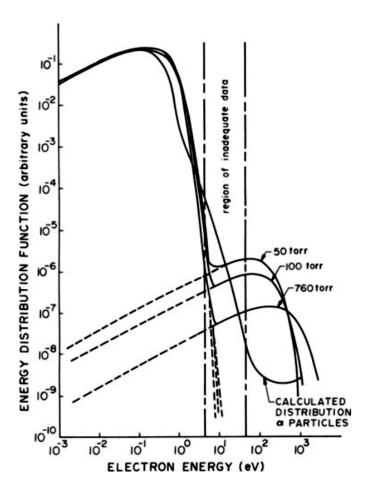


FIGURE 3.2 – Allure typique d'une fonction de distribution en énergie d'électrons en régime stationnaire dans un plasma d'hélium excité par des fragments de fissions, telle que calculée par Lo et Miley du groupe Plasma d'origine Nucléaire. Schneider et al [10] emphasent le besoin récurrent de données plus précises dans la zone délimitée, peu exploitables avec les modèles stationnaires employés jusque là. Données issues de [17]

thermaliser par collisions élastiques. L'équation de base décrivant la répartition des électrons est alors :

$$\frac{\partial n_e}{\partial t} = \frac{3}{2} \frac{\epsilon}{m\nu(\epsilon)} \frac{\partial}{r\partial r} r \frac{\partial n_e}{\partial r} + \frac{1}{3} \frac{1}{m\nu(\epsilon)} \frac{1}{r} \frac{\partial}{\partial r} (erEn_e) - \frac{2\epsilon}{3m\nu(\epsilon)} \frac{1}{r} \frac{\partial}{\partial r} \left( reE \frac{\partial n_e}{\partial \epsilon} \right) + \frac{2eE}{3m} \frac{\partial}{\partial \epsilon} \frac{\epsilon^{3/2}}{\nu(\epsilon)} \frac{\partial}{\partial \epsilon} n_e \epsilon^{-1/2} + St(n_e)$$
(3.1)

L'évolution de la densité d'ions N de type k varie elle suivant :

$$\frac{\partial N_{ik}}{\partial t} = \frac{D_{ik}}{r} \frac{\partial}{\partial r} \left( \frac{\partial N_{ik}}{\partial r} - \mu_{ik} E N_{ik} \right) + f_{ik}$$
 (3.2)

L'équation suivante permet de calculer le champ électrique engendré par les ions et les électrons en fonction du temps et du rayon de la gaine :

$$\frac{1}{r}\frac{\partial}{\partial r}(r E) = -4\pi e (N_e - N_i)$$
(3.3)

avec le temps t, le rayon de gaine r, l'énergie des électrons  $\epsilon$ , la fonction de distribution des électrons  $n_e(r,\epsilon,t), N_e(r,t) = \int n_e(r,\epsilon,t) d\epsilon$  la densité électronique,  $N_{ik}(r,t)$  la concentration d'ion k,  $\mathrm{E}(\mathbf{r},t)$  le champ électrique, e et m l'énergie et la masse de l'électron,  $St(n_e,N_{ik})$  l'intégrale de collision,  $\nu(\epsilon)$  la fréquence de collision des électrons avec les atomes,  $D_{ik}$  et  $\mu_{ik}$  les coefficients de diffusion et de mobilité des ions du type k.  $f_{ik}$  représente la génération et destruction de l'ion de type k. Une distribution initiale de la position des électrons et des ions au départ du calcul est appliquée, afin d'éviter d'obtenir un champ électrique infini. Une distribution normale est retenue, avec  $< r_e^2 > = 4\mathrm{E} - 8~cm^2$ , après quelques collisions couvrant une distance de quelques libres parcours moyens.

La fonction de distribution de l'énergie initiale des électrons est elle issue du modèle de Gryzinski [12]. Des résultats du modèle de Budnik et al. sont exposés Fig. 3.3

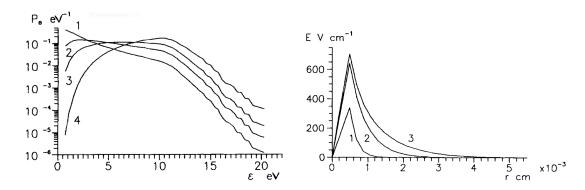


FIGURE 3.3 – Gauche : Fonction de distribution de l'énergie des électrons à 100 ps en fonction du diamètre de la gaine (1)r = 1  $\mu$ m, (2) 9  $\mu$ m, (3) 24  $\mu$ m, (4) 35  $\mu$ m.

Droite : évolution du champ électrique induit par les ions et les électrons évoluant dans la gaine de plasma autour de la trace de l'ion lourd en fonction du temps (1)t = 1 ps, (2) 22 ps, (3) 102 ps. Dans les deux cas, un plasma d'hélium d'une atmosphère est excité par un fragment de fission issu du californium. Données de [23]

Malgré l'originalité, la pertinence de l'approche et son intérêt pour l'étude des plasmas générés par ions lourds, ce modèle reste incomplet car reposant sur des hypothèses questionnables et des paramètres empiriques. En outre, il ne fournit pas d'informations sur l'excitation des atomes.

Le temps de transport des ions, considéré comme instantané nécessite en réalité plusieurs dizaines de picosecondes. À titre d'exemple, un fragment de fission léger lancé à 14E6 m/s parcourra 1 mm en 110 ps, un temps du même ordre de grandeur que celui de la relaxation des électrons énergétiques dans le plasma. L'approximation du dépôt d'énergie de l'ion lourd dans le gaz de manière instantanée est ainsi questionnable, et l'utilisation d'un mécanisme plus réaliste pourrait apporter des informations complémentaires sur la cinétique de l'excitation du plasma.

En conséquence, j'opte pour la réalisation d'un code de transport couplé ion lourds - électrons dans un gaz monoatomique, en trois dimensions et en fonction du temps afin d'obtenir un macro-modèle spatio-temporel de la population d'états excités le long d'une trace d'ionisation. Le code produit, portant le nom de SCENA fut entièrement codé en langage script Matlab, partant de zéro. Une réalisation en langage C, généralement considéré comme plus «rapide d'exécution» aurait nécessité davantage de lignes de codes, bibliothèques et dépendances externes. Octave, logiciel libre de droit <sup>4</sup>, permet des performances conséquentes si l'on exploite le calcul matriciel. Le temps de développement fortement réduit par des outils d'affichage, débuggage et visualisation de données compense une éventuelle lenteur d'exécution.

### 3.2 Méthodes

La **publication III** intitulée «SCENA, a simulation tool for radiation-induced plasma» détaille la sélection des modèles physiques employés, ainsi que la validation des méthodes numériques.

La publication IV intitulée «Heavy-ion track simulation with the SCENA code» présente des résultats de modélisation du ralentissement d'ions lourds dans les gaz nobles, avec notamment des spectres énergétiques résolus en fonctions du temps de vol.

Dans SCENA, trois mécanismes prépondérants sont simulés, à savoir :

- 1. Ralentissement et transport d'ions lourds dans un gaz tampon via un schéma d'Euler et des données de pouvoir d'arrêt calculées à la volée ou tabulées, hypothèse d'une trajectoire rectiligne
- 2. Calcul de la Section Efficace Différentielle Simple d'ionisation à chaque macro-pas de 1 mm parcouru
- 3. Génération d'électrons autour de l'ion lourd, selon une distribution en énergie initiale décrite par la SDCS <sup>5</sup>
- 4. Transport, reproduction et destruction des électrons dans le gaz tampon par méthode Monte-Carlo

L'excitation dite «directe» des gaz tampons par les ions lourds est négligée puisque sa section efficace est très en deçà des sections d'ionisation. Les auteurs du groupe des Plasmas d'origine Nucléaire notèrent que seul le cas de l'Hélium excité par des particules alphas présente une

<sup>4.</sup> Octave est une initiative GNU GPLv3 compatible Matlab démarrée en 1988

<sup>5.</sup> Singly Differential Cross-Section

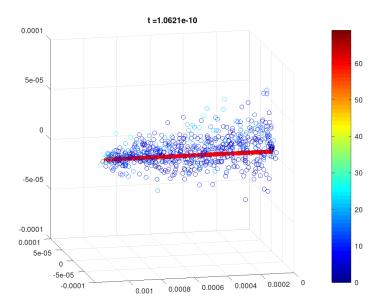


FIGURE 3.4 – Représentation de la trajectoire d'un fragment de fission lourd (trace rouge) et de son essaim d'électrons énergétiques (bulles) émis au fur et à mesure de sa progression dans du néon à une atmosphère. Un champ électrique réduit de 10 Td est appliqué verticalement, entrainant une dérive des électrons vers le haut. Dimensions en mètres, la couleur des électrons correspond à leur énergie cinétique, en eV.

excitation directe significative, de l'ordre de 20 % du total des excitations [10].

Les principales données de sortie du code pour l'ion lourd en fonction du temps de vol sont :

- Vitesse instantanée
- Position
- Accélération instantanée «Stopping power»
- Charge effective de l'ion

La génération et transport d'électrons par méthode Monte-Carlo autorise quant à elle l'obtention des données suivantes en fonction du temps et de l'espace;

- Spectre énergétique des électrons
- Densités d'ions et d'électrons
- Positions et vitesses de l'essaim d'électrons
- Nombre de réactions élastiques et inélastiques

Cette simulation couplée est visible sur la Fig. 3.4 où une vue en 3 dimensions du trajet d'un ion lourd et de sa trainée d'électrons est présentée.

## 3.3 Validation

Avant de présenter des résultats peu comparables aux quelques travaux similaires visibles dans la littérature, il convient de vérifier les méthodes numériques des deux principaux modules de SCENA: le ralentissement d'ion lourd accompagné de création de charges, et la diffusion d'électrons dans un milieu homogène.

Une comparaison des seuls profils de décélérations et d'ionisations des ions lourds est possible avec un des nombreux codes comme SRIM[24] ou MSTAR[25], les autres paramètres d'intérêt comme la charge de l'ion étant intégrée dans les codes. Le schéma d'Euler réalisé par mes soins permet d'estimer cette fois le temps de vol, le profil de vitesse de l'ion lourd, ainsi que sa charge qui peuvent être moyennés sur des segments d'un millimètre pour simuler de manière indépendante des zones du plasma.

La génération d'électrons graines par ionisation collisionnelle peut être décrite par plusieurs modèles semi-empiriques de sections efficaces simplement différentielles (SDCS). J'ai effectué une comparaison de 7 modèles de SDCS appliqués aux protons dans des gaz rares et sélectionné celui approchant le plus les résultats expérimentaux de Rudd et al. [26]. Une seconde évaluation du modèle retenu, celui produit par Stolterfoht [27], et effectuée de manière poussée sur des couples ions-lourds et milieux variés <sup>6</sup>, face à des données expérimentales provenant notamment de groupes d'études sur la hadronthérapie.

Le calcul de la *W-value* pour différents couples projectile-ions a permis d'obtenir des résultats satisfaisants, toujours compris dans les intervalles de confiance expérimentaux.

La validation de la partie transport des électrons par méthode Monte-Carlo est elle assurée par l'ajout d'un module appliquant une force à l'essaim d'électrons par un champ électrique externe. La mise à zéro forcée de l'énergie initiale des électrons simulés permet de comparer nos résultats avec des codes bien connus des plasmiciens, comme Bolsig [5] ou Methes [28]. À nouveau, j'effectuais un effort de validation du modèle numérique face à des données expérimentales et calculées dans des cas de référence avec des codes de calculs éprouvés. Ces longues étapes de vérification et validation sont détaillées et consignées dans la publication III.

## 3.4 Résultats

La rapide décélération d'un ion «léger» <sup>7</sup> en fin de course est marquée par le pic de Bragg, où le transfert d'énergie par distance parcourue est maximal <sup>8</sup>. Cependant, le plus fort taux de transfert d'énergie cinétique des projectiles lourds, comme les fragments de fission se trouve systématiquement au début de la trace.

Les électrons émis le long de la trajectoire de l'ion projectile partent avec des énergies cinétiques allant de 0 eV à plusieurs kilo-électronvolts, comme décrit par les Sections Efficaces Simplement Différentielles (SDCS) décrites par les nombreux modèles évalués.

La fonction de distribution de l'énergie des électrons autour de la trace de l'ion lourd projectile a été évaluée à différents temps de recensement. Le spectre des électrons s'effondre rapidement aux hautes énergies et tend vers une Maxwellienne, à température des lourds, comme identifiées par les auteurs précédents, en régime stationnaire. Il parait probable que les quelques picosecondes où l'énergie des électrons dépasse les potentiels d'ionisation et d'excitation assurent presque exclusivement le peuplement des niveaux radiatifs du gaz rare.

La distance parcourue par les électrons de première et n-génération avant que leur énergie cinétique tombe sous le potentiel d'excitation du gaz tampon est très faible devant la portée de l'ion lourd projectile. Même avec des énergies initiales dépassant 1 keV, elle est de l'ordre

<sup>6.</sup> Des gaz rares mais également polyatomiques comme la vapeur d'eau

<sup>7.</sup> Proton, particule alpha, et autres ions jusqu'à l'Oxygène

<sup>8.</sup> Cette caractéristique est exploitée en traitement du cancer, la hadronthérapie

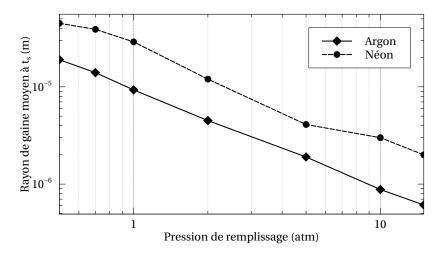


FIGURE 3.5 – Rayon médian de la gaine de plasma autour de la trajectoire d'un fragment de fission léger en fonction de la pression et du gaz de remplissage. Le rayon est mesuré lorsque plus un seul électron de l'essaim ne possède une énergie cinétique permettant d'exciter le gaz le long du premier millimètre de trajet de l'ion projectile.

de 10 µm dans l'argon à une atmosphère tandis que la portée des fragments de fission est de l'ordre de 3 cm. Ces deux dimensions, rayon et longueur de la gaine, évoluent de pair avec la pression du milieu.

Cette information permet de valider l'approximation d'une géométrie cylindrique quasi-infinie utilisée pour modéliser simplement le champ électrique entre les différentes couches concentriques composant le plasma si l'on considère que l'ion traverse la cellule d'étude de façon instantanée, à la manière de Budnik et al [23].

Après le départ de l'ion lourd, des excitations du gaz restent possibles pendant encore quelques picosecondes en l'absence d'apport externe d'énergie, mais à un taux très faible ; ce phénomène reste marginal dans la dynamique globale du plasma.

Finalement, la dilution quasi-immédiate des électrons générés progressivement le long de la trace de l'ion lourd, telle qu'observable dans une simulation dynamique avec SCENA, permet de rejeter l'hypothèse d'un fort champ électrique généré entre différentes couches concentriques semi-infinies composant le plasma tel que proposé par Budnik et al. Seule une simulation couplée ion projectile et électrons permet de mettre en exergue la volatilité de ces derniers et leur faible nombre autour de la trace d'ionisation.

Si le rayon d'une colonne de plasma générée par des ions lourds n'excède pas 10 µm dans l'argon comme présenté Fig. 3.5 et que la durée pendant laquelle des états radiatifs du gaz peuvent être peuplés ne saurait dépasser 5 à 6 ps, la possibilité de recouvrement de deux traces d'ionisation est fortement improbable, ce qui renforce la nécessité d'analyser ce plasma comme un assemblage de traces individuelles, et non un milieu homogène. L'évolution très rapide de la fonction de distribution de l'énergie des électrons est présentée Fig. 3.6

Un accord entre quelques raies des spectres issues de SCENA aux premiers millimètres ou à la fin de la trajectoire de l'ion lourd projectile, et les résultats sur les bancs de mesures laisse présager une contribution de chaque couche du plasma au spectre d'émission résultant. Le fait d'observer l'intégralité du plasma focalisé sur le spectromètre supprime la possibilité

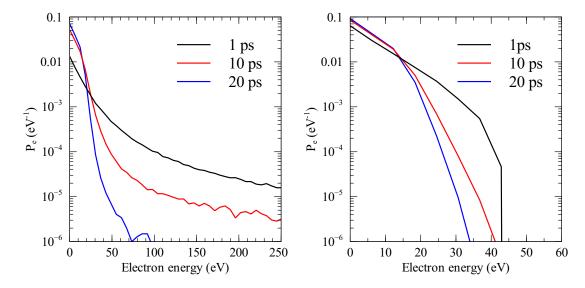


FIGURE 3.6 – EEDF des électrons graines et secondaires produit par impact d'un fragment de fission lourd dans du néon à 1 atm. Résultats avec une fonction de distribution initiale au premier millimètre du parcours de l'ion projectile (gauche), et dernier (droite). La simulation comprend environ 100 fois plus de particules qu'observable en situation réelle, le nombre d'électrons capable d'exciter le gaz après 10 ps serait statistiquement inférieur à un.

de discriminer la participation de chacune de ses couches, et l'acquisition face au dépôt retire la possibilité d'effectuer une inversion d'Abel directe. Certaines raies d'émission, peu intenses selon les calculs de SCENA sont néanmoins prépondérantes d'après nos mesures, notamment les raies à 633.44 nm et 650.65 nm dans le néon, comme visible Fig. 3.7.

## 3.5 Discussion

Un code de calcul visant à la modélisation d'un plasma froid hors équilibre excité par ions lourds a été développé et exploité.

Ce code, SCENA, permet de combler le manque de modèle de mécanisme de peuplement des niveaux radiatifs par des particules lourdes en cours de ralentissement grâce à une méthode de transport Monte-Carlo.

La possibilité d'étudier la phase transitoire d'un plasma d'origine collisionnelle a permis de conclure à la localisation des excitations dans une gaine de quelques micromètres autour de la trace de l'ion lourd source.

Le temps nécessaire au ralentissement des électrons jusqu'à leur dilution à des niveaux d'énergies cinétiques les rendant stériles pour la production d'atomes de gaz excité est particulièrement court, de l'ordre de la dizaine de picoseconde au maximum.

La qualité des résultats produits par une méthode Monte-Carlo est fortement dépendante de la précision des sections efficaces qui lui sont données. Dans le cas du néon, des écarts atteignant 300 % entre les bibliothèques existent, l'effet sur la population de niveaux radiatifs est immédiat, modifiant drastiquement les rapports de raies obtenues. L'absence de programmes

<sup>9.</sup> CApteur de Neutrons à Optique Expérimentale, détaillé dans le chapitre suivant.

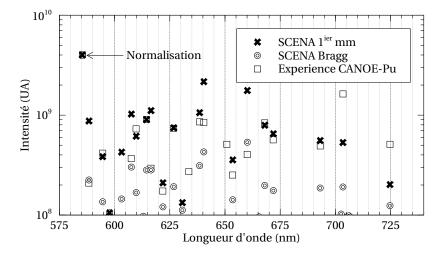


FIGURE 3.7 – Spectre d'émission théorique et expérimental d'un plasma de néon de 2 atm excité par des particules alphas de 5.5 MeV issues du <sup>238</sup>Pu. L'acquisition spectroscopique a été effectuée sur un détecteur CANOE <sup>9</sup>par poses de 20 minutes, avec une vue du dessus du plasma. La normalisation des intensités est appliquée sur la raie à 585 nm.

de mesure expérimentale de sections efficaces depuis plus de trente ans bride la réduction des incertitudes des codes de simulation de plasma, quelle que soit leur méthode de résolution.

La majorité des excitations des gaz rares donnent lieu à l'émission de photons dans la gamme ultraviolette plutôt que infrarouge, si seule la désexcitation spontanée est retenue, mais un nombre conséquent d'émissions radiatives dans notre zone d'intérêt reste possible.

Une comparaison entre les spectres d'émission d'un plasma et son double numérique a été effectuée, mettant en relief la prépondérance de certaines raies d'émission, issues de niveaux d'excitations du gaz tampon à l'état neutre.

À nouveau, la qualité de nos résultats est tributaire de l'incertitude de mesure des coefficients de désexcitation radiative, dépassant souvent 30%, même pour des gaz très étudiés comme l'argon  $^{10}$ .

Le caractère dynamique et transitoire de la population de niveaux radiatifs est également corroboré par l'observation de raies de désexcitation provenant de niveaux d'énergies bien supérieurs à ceux du premier potentiel de l'atome neutre cible, SCENA couvre donc une partie du vide dont souffre la modélisation de tels plasmas transitoires hors-équilibre.

Le modèle de plasma dit «coronaire» que j'ai sélectionné vu le manque de modèle sur la désexcitation collisionnelle par impact avec des neutres à haute pression peut souffrir d'un manque de représentativité dans sa partie radiative. Un modèle de dépeuplement du plasma, comprenant des interactions entre les atomes neutres à l'état fondamental et ceux excités peut être proposé si une modélisation plus complète du plasma s'avère nécessaire, mais nécessite un long processus d'identification des mécanismes de transfert et la mesure de sections efficaces.

Toutefois, le code de simulation SCENA s'est révélé utile pour optimiser la détectivité d'un signal optique. Une simulation avec SCENA a révélé que le spectre d'émission du néon serait davantage centré vers le rouge plutôt que l'infrarouge, et ce avec un taux de production

<sup>10.</sup> Les raies à 750 nm et 912 nm de l'argon, très utilisées dans ces travaux, ont des coefficients d'Einstein précis à 10%

d'atomes excités par seconde similaire à l'argon. La réponse des détecteurs de photons à substrat de silicium dont je disposais étant meilleure dans cette zone spectrale, j'orientais désormais le remplissage de mes capteurs de neutrons avec le néon. Nous verrons dans le chapitre suivant, traitant des essais de mes capteurs en champ neutron pur, que suite aux résultats des simulations, le rapport signal sur bruit de mes capteurs fut sensiblement amélioré par ce recours au néon.

Des transferts collisionnels d'énergie entre deux espèces parait possible, et l'adjonction d'hélium dont les niveaux métastables sont proches des niveaux optiques du néon autoriserait une émission à 632.8 nm et 1152.3 nm. Cette émission de quelques raies prépondérantes pourrait favoriser la génération de lumière selon ces deux longueurs d'ondes, qui cumulent haute détectivité par les capteurs à substrat de silicium (rouge) et faible atténuation dans les fibres optiques lors d'irradiations longues (infrarouge).

## 3.6 Publications



Contents lists available at ScienceDirect

## Nuclear Inst. and Methods in Physics Research, A

journal homepage: www.elsevier.com/locate/nima



## SCENA: A simulation tool for radiation-induced gas scintillation

M. Lamotte \*, G. De Izarra, C. Jammes

CEA, DES, IRESNE, DER, Instrumentation Sensors and Dosimetry Laboratory, Cadarache, F-13108 Saint-Paul-lez-Durance, France



#### ARTICLE INFO

Keywords: Fission chambers Radiation-hard detectors Gaseous detectors Gas scintillation

#### ABSTRACT

Within the framework of the dependable neutron flux instrumentation development for Sodium-cooled Fast Reactor (SFR) of Generation IV, the French Alternative Energies and Atomic Energy Commission (CEA) is investigating an innovative technology based on optical signals produced within an ionization chamber. In such gaseous detectors, neutrons interact with a fissile material, releasing heavy ions in the MeV-range, eventually leading to spontaneous photon emission in the ultraviolet to infrared range. In this paper, the process of light generation is analyzed through a newly-developed computer code named SCENA. Semi-empirical models for ion-to-gas energy exchange and secondary electron production are assessed. The output of the SCENA subroutines are satisfactory checked against other electron swarm simulation tools, experimental data and a theoretical gas model. SCENA is able to follow the cold-plasma created along a heavy ion slowing-down in space and time evolution. This performance is a key point in the development of optical ionization chambers.

#### 1. Introduction

The French Alternative Energies and Atomic Energy Commission (CEA) proposes a new generation of neutron detectors for the neutron flux monitoring of Sodium-cooled Fast Reactors (SFR). These detectors are based on the luminescence of rare gases excited by charged particles [1-3]. The photons emitted in the near-infrared region can be then channeled into an optical fiber in a harsh radiation environment over a long distance. Experiencing a low attenuation in silica fibers [4] the near-infrared light signal finally feeds either a solid-state photon counter or spectrometer. The simulation of such a signal is an important step for the development of an optical fission chamber for SFR. This is the reason why a computer code called SCENA, which stands for Simulation of Collisions Electrons-Neutrals in Atmospheres, has been developed in the Octave interpreted programming language. SCENA is an unique tool, capable of simulating the heavy ion interactions in a mono-atomic gas with or without an electric field, delta electron generation, gas excitation. All these computed physical quantities make it possible to estimate an optical emission spectrum and absolute yield. This paper starts with a presentation of the main functions of the SCENA code, models embedded and their domain of validity. The code validation is then addressed using experimental data and results from other Boltzmann codes.

#### 2. Methods

The present section details the physical models implemented in SCENA to simulate the numerous phenomena encountered in the heavy-ion-induced mono-atomic gas ionization. The time sequence of those phenomena depicted in Fig. 1 is as follows.

- A heavy ion emitted from a neutron-sensitive coating slows down and ionizes a filling gas, leading to the production of delta electrons
- 2. Those electrons impact the gas atoms, what comes to generate secondary electrons and populate excited levels.
- 3. The so-excited gas atoms then undergo a radiative decay, emitting photons at discrete wavelengths in an optically thin medium.

#### 2.1. Heavy ion slowing down

In ionization chambers, heavy ions are emitted from a micron-thick neutron-sensitive layer, made of various materials, e.g., <sup>235</sup>U, <sup>239</sup>Pu, <sup>10</sup>B. A heavy ion undergoes a competition between electron gain and loss [5]. As shown by the well-known Bethe–Bloch formula [6], this change in their effective charge directly and continuously impacts their stopping power. This is the reason why the effective charge of a heavy ion is periodically updated in the SCENA code.

One also assumes both the Continuous Slowing Down Approximation (CSDA) and dominance of the electronic stopping. In other words, every heavy ion slows down along a straight track due to the inelastic collisions with bound electrons in the medium, neglecting the nuclear collisions which are not likely to occur at a kinetic energy high enough, above 3 MeV for light fission fragments.

The CSDA validity was confirmed by computing the most probable Light Fission Fragments (LFF) straggling in a rare gas with the more accurate PRAL model [7]: the straggling turns out to be around 4.5% of the range in argon [8]. Finally, since the kinetic energy of heavy ions

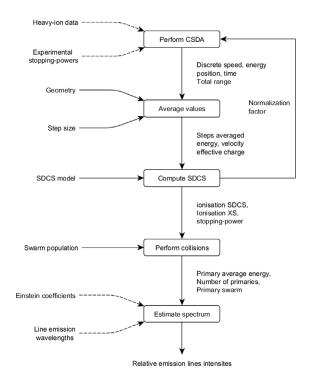
E-mail address: maxime.lamotte@cea.fr (M. Lamotte).

<sup>\*</sup> Corresponding author.

| Nomenclature                               |                                                                                 |
|--------------------------------------------|---------------------------------------------------------------------------------|
| $a_0$                                      | Bohr radius: $a_0 = 5.9E-11 \text{ m}$                                          |
| $A_{ji}$                                   | Einstein coefficient for transition from <i>j</i> to                            |
| ,                                          | i level                                                                         |
| amu                                        | atomic mass unit equal to 1.66E-27 kg                                           |
| $BR_e$                                     | Inner sheath electron breeding ratio                                            |
| c                                          | Speed of light: $c = 2.99E8 \text{ m/s}$                                        |
| $\frac{D}{}$                               | Transverse diffusion coefficient                                                |
| $\overline{\underline{E}}$                 | Mean electron energy in eV                                                      |
| $\overline{E}_{\delta}$                    | Mean delta electron energy in eV                                                |
| E/N                                        | Reduced electric field in Td                                                    |
| $E_p$                                      | Projectile kinetic energy in eV                                                 |
| $\epsilon$                                 | Ejected electron kinetic energy in eV                                           |
| η                                          | Random number from a uniform distribu-<br>tion between 0 and 1                  |
| $f_M$                                      | Maxwell Electron Energy Distribution                                            |
| J M                                        | Function (EEDF)                                                                 |
| h                                          | Planck's constant: $h = 6.63E-34 \text{ J s}$                                   |
| $I_b$                                      | Electron-binding energy in eV                                                   |
| $I_{ij}$                                   | Intensity of transition between <i>i</i> to <i>i</i> atomic                     |
| .,                                         | levels                                                                          |
| $k_i$                                      | Collision frequency for collision type i                                        |
| $K_i$                                      | Collision rate for collision type i                                             |
| $m_e$                                      | Mass of an electron: $m_e = 9.11E-31 \text{ kg}$                                |
| $m_p$                                      | Mass of the projectile in kg                                                    |
| N                                          | Atomic density in m <sup>-3</sup>                                               |
| $n_{\delta}$                               | Average number of delta electrons                                               |
| $n_e$                                      | Inner sheath electron density                                                   |
| $N_j$                                      | Density of atomic level j                                                       |
| $N_e$                                      | Electron density                                                                |
| $v_{ij}$                                   | Wavelength of photon emission from level <i>j</i> to <i>i</i> transition        |
| $p_k$                                      | Electron Energy Probability Function                                            |
| P K                                        | (EEPF)                                                                          |
| $P_i$                                      | Cumulative collision probability of colli-                                      |
|                                            | sion type i                                                                     |
| Ry                                         | Rydberg energy: $Ry = 13.6 \text{ eV}$                                          |
| S                                          | Total stopping power                                                            |
| $\sigma_{ion}$                             | Ionization singly-differential cross section                                    |
| _                                          | (SDCS) in cm <sup>-2</sup> .eV <sup>-1</sup>                                    |
| <u>s</u>                                   | SDCS-derived stopping power                                                     |
| $T_p$                                      | Projectile reduced kinetic energy: $T_p = m_e$                                  |
|                                            | $E_p \frac{m_e}{m_p}$                                                           |
| $\Delta t$                                 | Time resolution for the slowing-down pro-                                       |
|                                            | cess                                                                            |
| δt                                         | Monte Carlo sampling time                                                       |
| U                                          | Excitation potential energy in eV                                               |
| $v_e$                                      | Electron velocity in m s <sup>-1</sup> Bulk drift velocity in m s <sup>-1</sup> |
| $v_d$                                      | Projectile velocity in m s <sup>-1</sup>                                        |
| $v_p$                                      | Reduced projectile velocity = $\sqrt{T_n/Ry}$                                   |
| $\begin{bmatrix} v_r \\ x_p \end{bmatrix}$ | Projectile position $V_p = \sqrt{V_p/Ky}$                                       |
| $Z_p$                                      | Projectile charge                                                               |
| $Z_{p}$ $Z_{eff}$                          | Effective projectile charge                                                     |
| $\zeta$                                    | Random number from a uniform distribu-                                          |
|                                            | tion between 0 and 1                                                            |
|                                            |                                                                                 |

amounts to about 1 MeV/nucleon, no relativistic correction has to be applied.





 $\textbf{Fig. 1.} \ \ \textbf{Overview the various phenomena implemented in SCENA.}$ 

As a reminder, the total stopping power S is defined as the opposite of the ratio of the kinetic energy loss dE to the variation of the heavy ion range dx

$$S = -\frac{dE}{dx} \tag{1}$$

It is also noteworthy that S is a mesoscopic quantity that can be regarded as a friction force. As a result, one can compute the heavy ion velocity  $v_p$  and position  $x_p$  along the straight track by solving Newton's second law of motion with the first-order explicit Euler method. For the ith time step, it gives:

$$v_{p,i+1} = v_{p,i} - \frac{S(v_{p,i}, Z_{eff,i})}{m_p} \Delta t$$
 (2)

$$x_{p,i+1} = x_{p,i} + v_{p,i} \,\Delta t \tag{3}$$

the time resolution  $\Delta t$  is as small as tenths of picoseconds. The stopping power S is preferably estimated with the code SRIM [7], even though the Bethe–Bloch formula [6,9] or tabulated experimental data of ICRU-73 [10,11] or other codes such as MSTAR [12] or PASS [13] can be used instead.

Independently of the chosen stopping power source or model, at each time step i, the heavy ion effective charge  $Z_{eff}$  is computed with the Barkas formula [20]. This entity is of prime interest for computing the stopping-power S, as a  $Z_{eff}^2$  factor appears in the Bethe–Bloch formula or its variants, but also for later estimation of the delta electrons energy spectrum. In the case of fission chambers, electronic stripping of a heavy ion leaving the fissile layer strongly influences its

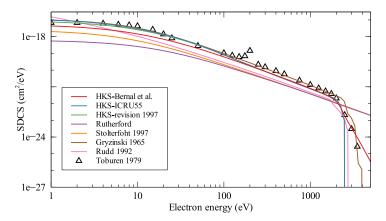


Fig. 2. Experimental and theoretical estimations of the single differential cross section (SDCS) of delta-electron emission from 1 MeV protons impacting argon atoms: HKS-Bernal et al. [14], HKS-IcRU55 [15], HKS-revision 1997 [16], Rutherford [16], Stolterfoht 1997 [16], Gryzinski 1965 [17], Rudd 1992 [18], Toburen 1979 [19] (experiment). A good agreement is noticed between the experimental data (Toburen 1979) and the two revised HKS models (HKS-ICRU55, HKS-revision 1997). In SCENA, the HKS-revision model is employed only. It matches the HKS-ICRU55 model in high energy domain.

stopping power [21]. As recommended in Ref. [22], the initial charges of fission fragments were considered to be 14–15 for LFF, and 12–13 for HFF (most probable Heavy Fission Fragment) in the case of a less-than-1- $\mu$  m thick Californium layer. Adjustments of initial effective charges  $Z_{eff}$  based on comparing with the values obtained from the Barkas equation lead to an initial charge of +13.6 for HFF and another of +16 for LFF escaping a <sup>235</sup>U layer.

In SCENA, every heavy ion track is split into 1-mm segments knowing that a total path length is about 45 mm at most in Neon at 1 atm. Fig. 3 shows the evolution of projectile heavy-ion's parameters along these mm-long segments. Simulation of the scintillation track along mm-long segments allows averaging of seed delta electrons profiles, but also to estimate a space-dependent optical emission spectra. For subsequent light emission spectrum calculations, the mean values of the heavy ion stopping power  $\overline{S}$ , effective charge  $\overline{Z}_{eff}$  and kinetic energy  $\overline{E}_p$  are estimated over each segment and stored.

#### 2.2. Delta electron emission

The main part of the heavy ion energy loss in the filling gas contributes to the emission of the delta electrons responsible for the subsequent excitation of the gas atoms [23–26]. It is noteworthy that a direct excitation by heavy ions themselves is much less significant and can be neglected [27].

In this section, we aim to estimate the energy distribution of these delta electrons only since the angular distribution is of no interest in the case of ionization chamber. Indeed, an impinging heavy ion travels along any direction and delta electrons are then likewise emitted in any direction.

A satisfactory expression of this energy distribution is provided by the single differential cross section (SDCS) initially derived by Hansen–Kocbach–Stolterfoht (HKS) and then revised by Stolterfoht [16,28]. This derivation is based on various model assumptions including the semi-classical approximation that describes the kinematics quantities after a classical approach while the cross section is derived using quantum physics. The free electron approximation is also employed and allows for modeling the outgoing electron with a plane wave. At last, an empirical revision prevents the cross section singularity that happens when the electron energy tends to zero [16,18].

Fig. 2 shows various experimental and theoretical estimations of the SDCS of delta-electron emission from 1 MeV protons impacting argon atoms. A good agreement is met between experimental data and the two HKS models [15,16] for low electron energy. Likewise, an acceptable discrepancy of about 30% with experimental data at

high electron energy (greater than 100 eV) is observed, though the measurement uncertainties are unknown. As a result, we made the decision to implement in our SCENA code the HKS model revised by Stolterfoht [16] (see Fig. 3).

For the sake of clarity, it is important to note that the kinetic energy  $E_p$  of a heavy ion of mass  $m_p$  is turned into a reduced quantity  $T_p$ :

$$T_p = E_p \frac{m_e}{m_p} \tag{4}$$

This way, the projectile is viewed as an electron of mass  $m_e$  with the same velocity. As in Ref. [15], one also defines the dimensionless reduced velocity  $v_r$  normalized w.r.t. the Rydberg energy Ry:

$$v_r = \sqrt{T_p/Ry} \tag{5}$$

The ionization SDCS of a target-electron with a binding-energy  $I_b$  is not only a function of its escaping kinetic energy  $\epsilon$ , but also dependent of the heavy ion effective charge  $Z_{eff}$  and reduced velocity  $v_r$  [15]:

$$\frac{d\sigma_{ion}}{d\epsilon} \left( \epsilon; I_b, Z_{eff}, T_p \right) = \frac{8 a_0^2 Z_{eff}^2}{3 Ry v_r^2 k_c^3 \alpha \tilde{k}} \times \left[ \arctan\left(\frac{2\tilde{k}}{1 + \tilde{K}_m^2 - \tilde{k}^2}\right) + f\left(\tilde{K}_m + \tilde{k}\right) - f\left(\tilde{K}_m - \tilde{k}\right) \right]$$
(6)

with the rational function

$$f(u) = \frac{5u + 3u^3}{2(1 + u^2)^2} \tag{7}$$

and the average velocity  $\alpha$  of the target bound electron, the two normalized momenta  $\tilde{K}_m$  and  $\tilde{k}$ , the minimum reduced momentum transfer  $K_m$  and the reduced momentum of the ejected electron k

$$\alpha = \sqrt{I_b/Ry}, \quad \tilde{K}_m = \frac{K_m}{\alpha}, \quad \tilde{k} = \frac{k}{\alpha}, \quad K_m = \frac{\alpha^2 + k^2}{2v_r}, \quad k = \sqrt{\epsilon/Ry} \quad (8)$$

The semi-empirical form of the reduced momentum  $k_c$ , which prevents from a singularity in the low electron energy domain due to the peaking approximation  $(k_c = k)$  that neglects the momentum of the bound electron, is given by [16]

$$k_c = \left[ k^2 + \alpha^2 \frac{3}{2} \left( \ln \frac{2v_r^2}{\alpha^2} \right)^{-2/3} \right]^{1/2}$$
 (9)

As aforementioned in the previous section, SCENA estimates the delta electron production for every 1-mm heavy ion track segment. The so-obtained average SDCS is then

$$\frac{d\overline{\sigma}_{ion}}{d\epsilon} \left( \epsilon; I_b, \overline{Z}_{eff}, \overline{T}_p \right) \tag{10}$$

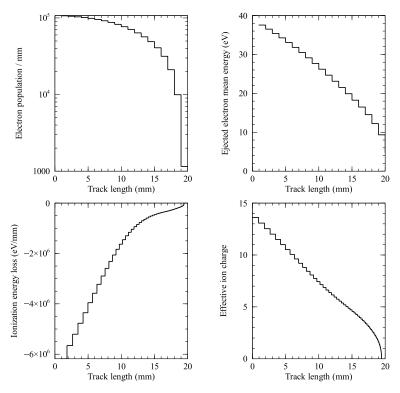


Fig. 3. Ionization data computed with SCENA along a heavy ion track: (a) number of δ-electrons  $n_{\delta}$ , (b) average δ-electron energy  $\overline{E}_{\delta}$ , (c) heavy ion energy loss  $\overline{s}$  and (d) heavy ion effective charge  $Z_{eff}$ . Results are presented for a theoretical heavy fission fragment of mass number 130, charge 54, emitted at 68 MeV with an effective charge of 13.6 into a 1-atm and 300-K argon gas.

Integrating over  $\epsilon$  likewise yields the average Total Integrated Cross Section (TICS) for the ionization of a single bound electron

$$\overline{\sigma}_{ion}(I_b, \overline{T}_p, \overline{Z}_{eff}) = \int_0^\infty \frac{d\overline{\sigma}_{ion}}{d\epsilon} d\epsilon \tag{11}$$

The average energy of a delta electron can be also defined

$$\overline{E}_{\delta} = \frac{1}{\overline{\sigma}_{lon}} \int_{0}^{\infty} \epsilon \frac{d\overline{\sigma}_{lon}}{d\epsilon} d\epsilon \tag{12}$$

For each 1-mm track segment ( $\delta x=1$  (mm)), the number  $n_\delta$  of ejected delta electrons

$$n_{\delta} = \delta x \ N \sum_{i \in \text{bound } e^{-}} \overline{\sigma}_{ion}(I_{b,i}, \overline{T}_{p}, \overline{Z}_{eff})$$
 (13)

where  $I_{b,i}$  is the binding energy of the electron number i of all the gas atom shells, and N the atomic density of the gas itself.

Likewise, an alternative estimation  $\bar{s}$  of the ionization energy loss summed over all the bound electrons can be derived

$$\overline{s} = \left. \frac{\delta \overline{E}_p}{\delta x} \right|_{\delta x = 1 \text{ mm}} = -N \sum_{i \in \text{bound } e^-} \int_0^\infty (\epsilon + I_{b,i}) \frac{d\overline{\sigma}_{ion}(I_{b,i}, \overline{T}_p, \overline{Z}_{eff})}{d\epsilon} d\epsilon$$
(14)

 $\overline{s}$  can be compared and normalized to tabulated experimental data so that one can ensure a coherent slowing-down profile along the heavy ion track.

#### 2.3. Electron cascade

Primary electrons have enough energy to trigger further electronimpact ionizations in a rare gas. In this section, the cascade model describing the birth, interactions and death of these so-generated electrons is presented. A Monte Carlo approach featuring two methods is adopted. The former is the counting method adapted to plasmas with a low ionization degree such as optical unbiased ionization chambers. This main method of SCENA, detailed hereafter and depicted in Fig. 4, outputs the density  $n_e$  of the delta electrons generated along the heavy ion track as well as that of excited gas atoms responsible for scintillation. The latter is the convolution method that can be used to simulate only plasmas energized by an electric field, which feature a higher ionization degree. In SCENA, this is an optional method for test purpose only, which outputs reaction rates for comparisons with other codes.

#### 2.3.1. Cross-sections

Cross-section data  $\sigma_i(\epsilon)$  for any collision type i can be downloaded from the open-source database repository LX-cat, hosted by IST-Lisbon [29]. Their energy range is from 1E–4 to 100 or 1000 eV, whereas it has to span up to a few keV. Indeed, after the binary encounter theory, the maximum energy of delta electrons is given by [16]

$$\epsilon_{BE} = 4T_p cos^2 \theta, \qquad 0 \le \theta \le 90^{\circ}$$
 (15)

where  $\theta$  is the electron emission angle. As an example, a direct collision between a bound electron and a 5 MeV alpha particle can eject a delta electron with an energy up to 2.7 keV. The extension of cross section data  $\sigma_i(\epsilon)$  in the keV range can be obtained using a fitting model based on the Lotz empirical formula [30]:

$$\sigma_i(\epsilon) \propto \frac{log(\epsilon)}{\epsilon}$$
 for  $\epsilon \gg I_b$  (16)

#### 2.3.2. Collision frequencies

Since the occurrence of any collision type i is described by a Poisson process, the random time between two collisions has an exponential distribution, the rate parameter of which is the collision frequency  $\kappa_i$ 

$$\kappa_i(\epsilon) = N\sigma_i(\epsilon)v_e \tag{17}$$

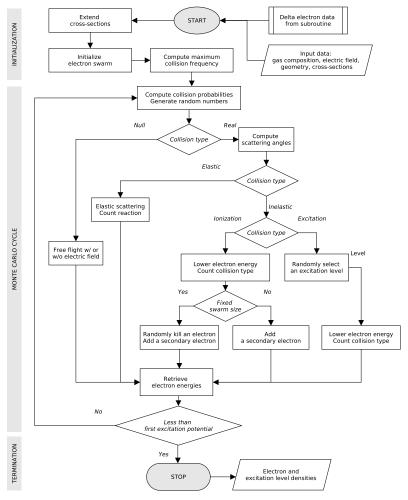


Fig. 4. Flowchart of the counting method implemented in SCENA for the electron cascade Monte Carlo simulation.

The definition of the total collision  $\kappa_{total}$  frequency is required to implement the Monte Carlo technique. It is the sum of k processes collision frequencies of type i.

$$\kappa_{total}(\epsilon) = \sum_{i=1}^{k} \kappa_i(\epsilon)$$
(18)

In order to enhance computing accuracy, a fictitious collision for the free flight between any real collisions is introduced [31-33]. Its collision frequency is defined by

$$\kappa_0(\epsilon) = \kappa_{max} - \kappa_{total}(\epsilon)$$
(19)

with the maximum collision frequency  $\kappa_{\it max}$  given by

$$\kappa_{max} = \max_{\epsilon} \kappa_{total}(\epsilon) \tag{20}$$

An electron undergoing a null-collision will keep moving under the effect of its own inertia or an external force. It is noteworthy that the maximum collision frequency  $\kappa_{max}$ , which is energy-independent, can be regarded as the sum of all collision types, including the null-collision one

$$\kappa_{max} = \sum_{i=1}^{k} \kappa_i(\epsilon) \tag{21}$$

#### 2.3.3. Sampling time

During a free flight, the new electron position is derived from the random sampling time  $\delta t$ , also called census time, which is given by

$$\delta t = -\frac{1}{\kappa_{max}} \ln(1 - \zeta) \tag{22}$$

where  $\zeta$  is a random number uniformly distributed between 0 and 1. The reciprocal of the maximum collision frequency  $\kappa_{max}$  is a fixed value about 100 fs for all Monte Carlo cycles. An increase in computation time may be brought by fixing  $\kappa_{max}$  as many null-collisions may occur, but its update at each cycle may have led to some unwanted errors.

#### 2.3.4. Selection of collision type

For each Monte Carlo cycle, a collision type j (null, ionization, excitation or elastic) is selected if the random number  $\eta$  uniformly distributed between 0 and 1 satisfies the following inequality

$$0<\eta\leq P_i(\epsilon)\quad \text{with}\quad i=0,\qquad P_{i-1}(\epsilon)<\eta\leq P_i(\epsilon)\quad \text{with}\quad i\neq 0 \eqno(23)$$

where  $P_i(\epsilon)$  is the cumulative collision probability

$$P_i(\epsilon) = \frac{1}{\kappa_{max}} \sum_{i=0}^{i} \kappa_j(\epsilon)$$
 (24)

Each electron is fully described in SCENA by a matrix row containing its position in Cartesian and cylindrical coordinate systems and its

velocity components. In the case of an excitation event, an atomic level to be populated is also randomly determined using the corresponding cross-section for the given electron energy.

#### 2.3.5. Electric field and swarm size

An electric field can be applied not only to mock processes taking place in a standard voltage-biased ionization chamber, but also to make possible a comparison with other codes such as BOLSIG+ [34,35], LoKi-B [36] or METHES [37]. Unlike SCENA, these codes simulate only low temperature plasmas excited by an external source like an uniform and constant electric field.

In the case of a strong electric field of several tens of Townsend, an electron avalanche due to high ionization rates may dramatically increase the electron swarm size resulting in a larger computation time and possible memory overflow. Without electric field, the ionization due to a heavy ion of about 1 MeV/nucleon causes the multiplication of the electron swarm by a factor of 2 or 3 due to rare occurrences of keV-ranged delta electrons. Such a case does not require a swarm size control.

#### 2.3.6. Termination and output

The Monte Carlo simulation is terminated in various cases: (a) when all the free electron kinetic energies fall below the first excitation potential of the target atom, (b) after a fixed time or (c) any other condition set by the user. The mean distance between the original heavy ion track and electron final locations is computed and referred as to the plasma tube radius r. The breeding ratio between the total numbers of electrons at the end  $(t_f)$  and start (t=0 s) of the simulation, respectively, is computed

$$BR_e = \frac{N_e(t_f)}{N_e(t=0)}$$
 (25)

Finally, the total electron density in a 1-mm long plasma tube  $n_e$  is provided

$$n_e = \frac{N_e(0)BR_e}{\pi r^2}$$
 (26)

Another important output is the density  $n_i$  of the excited gas atoms in the levels i, which are recorded in a file to be used by the SCENA gas scintillation subroutine or any other cold-plasma simulation code.

#### 2.3.7. Optional convolution method

When an electron swarm is energized by an external electric field, a high ionization degree causes the cold plasma to reach a steady state. This way, the cascade electron energies can be binned into a normalized histogram, namely the Electron Energy Probability Function (EEPF)  $p_k$ , that grows quick enough to get good statistics [38]. As a result, the collision rate  $K_i$  of a collision type i [33] over the whole electron energy domain  $\mathcal{D}_{\varepsilon}$  can be computed using the following convolution:

$$K_i = N \sum_{k \in D_e} v_e \sigma_i(\epsilon) p_k$$
 (27)

When a steady state begins at the time  $t_s$ , the swarm center-of-mass position  $r_f$  is recorded. The simulation is then stopped at the final time  $t_f$  when the electron swarm median energy does not fluctuate more than 10% for at least 5 cycles. The new swarm center-of-mass position  $r_f$  is recorded and the bulk drift velocity is estimated

$$v_d = \frac{r_f - r_s}{t_c - t_s} \tag{28}$$

The transverse diffusion coefficient D is defined by [39]

$$D = \frac{1}{2} \frac{\langle \left( r_{f,k} - \langle r_{f,k} \rangle \right)^2 \rangle}{t_f - t_s}$$
 (29)

where the average  $\langle - \rangle$  is carried out over all the electron positions  $r_{f,k}$  at  $t_f$ . As already aforementioned, the convolution method with its specific outputs is employed for validation purpose only, using either experimental reference values or data obtained with other codes.

#### Ionization level

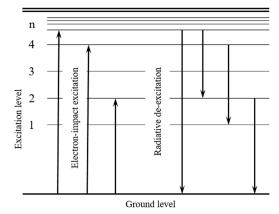


Fig. 5. Mechanisms considered in our simplified cold-plasma model to estimate relative emission line ratios of an optical ionization chamber.

#### 2.4. Gas scintillation

In the case of a typical optical fission chamber filled with Argon, the relaxation times of electrons and excited gas atoms are equal to about 0.1 and 10 ns, respectively. As a result, the gas scintillation simulation can be uncoupled from that of the heavy-ion and electron transport. Depending on the previously computed electron density (see Section 2.3.6), either the corona, collisional-radiative or customized cold-plasma model is used to compute an optical emission spectrum. Since the gas scintillation happens merely at the end of the electron cascade, the free electron density is as low as about  $10E12 \text{ cm}^{-3}$ . This way, the relaxation mechanism can be solely modeled by the spontaneous photon emission depicted in Fig. 5. At such a low ionization degree, the plasma chemistry can be neglected as well. This is the reason why neither the excimer molecule formation nor inter-species electron transfers are taken into account.

After all these assumptions, the relative time-integrated intensity of gas-atom emission lines at the wavelength  $v_{ji}$  corresponding to the decay from the upper level i down to the lower level j is given by

$$I_{ij} \propto N_j \ A_{ji} \ h \nu_{ij} \tag{30}$$

where  $n_j$  is the density of the excited gas atoms in the levels j, provided by the SCENA cascade subroutine (see Section 2.3.6). The NIST Atomic spectra database [40] provides wavelengths  $v_{ji}$  and emission probabilities  $A_{ij}$ , also known Einstein coefficients.

#### 3. Code validation

SCENA is capable of producing physical data to be checked against experimental values and other numerical methods. Stopping powers, SDCS, TICS, cold-plasma reaction rates, EEDF can be retrieved among other parameters relevant for optical ionization chamber studies and future model implementations. More peculiarly, SCENA differs from other Boltzmann codes in the fact that, as shown in Fig. 6, it can simulate the evolution of an electron swarm resulting from the gas ionization of a heavy ion in the absence of an electric field.

This section will bring some evidence of the SCENA validation using both experimental and computed data found in the literature.

### 3.1. Heavy ion transport

Fig. 7 shows the comparison between the stopping power values provided by SRIM and SCENA. The former are derived from experimental data, whereas the latter from the SDCS (Section 2.2). The stopping

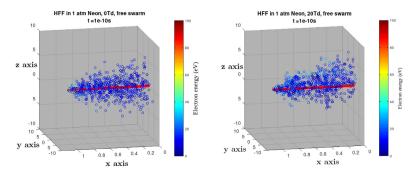


Fig. 6. 3-dimension views of the electron swarm energy distribution (colour circles) produced at 100 ps after the emission of a fission fragment (thick red line) without (left) and with (right) an external electric field. *X*-axis in labeled in mm, y and *z*-axis in μm. (For interpretation of the references to colour in this figure legend, the reader is referred to the web version of this article.)

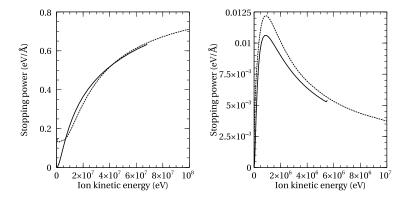


Fig. 7. SRIM total(dotted line) and SCENA SDCS-integrated (solid line) stopping powers for a heavy fission fragment in 1-atm argon (left) and an alpha particle in 1-atm neon (right) using Eq. (14).

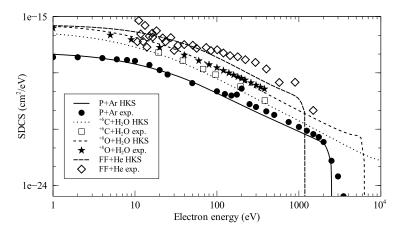


Fig. 8. Singly-Differential Cross-Section for various projectile-target combinations. The HKS-computed data obtained with SCENA are denoted with lines. The experimental data references are: 1 MeV proton in argon from Rudd et al. [19], 72 MeV bare carbon ion in water vapor from Champion [41], 48 MeV oxygen ion in water vapor from Bhattacharjee et al. [42], and fission fragments in helium from Dyachenko [43]. For that combination, an average-like fission fragment is used.

power for a HFF and that for an alpha particle are displayed. The HFF releases much more energy before reaching the Bragg peak that is only apparent with the SRIM stopping power values. It is important to remind that SCENA aims to estimate the delta electron generation along the track of a heavy ion. This way, one is interested in the energy domain where the ionization process is preponderant, what corresponds to energies greater than about 10 MeV, at the left side of the Bragg peak. The noticed discrepancy goes from 20% down to less than 1%.

For the alpha particle, the Bragg peak is much more apparent since the smaller energy release within the gas will accordingly generates a smaller amount of delta electrons. For energies greater than 2 MeV, the observed discrepancy is about 5%. It is noteworthy that this overall good agreement in the stopping power within the ionization energy domain implicitly validates the computation of the SDCS performed by SCENA.

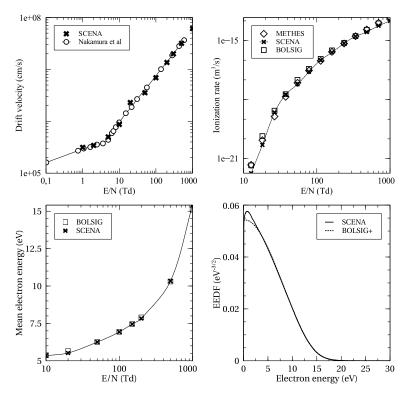


Fig. 9. Drift velocity (left top), ionization rate (right top) and mean electron energy (left bottom) as function of the reduced electric field. EEDF (right bottom) of argon excited by a 100 Td reduced electric field. All results are presented for argon at 1 atm using IST-Lisbon cross sections, with a swarm population of 1E5 in SCENA. Secondary electron energy were emitted using cross sections from Green and Opal.

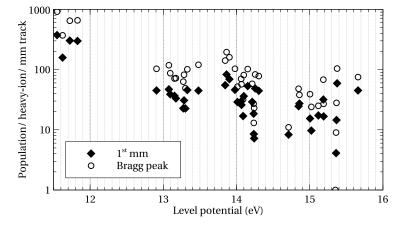


Fig. 10. Population of neutral Argon levels in a 5.5 MeV alpha particle induced plasma along its track. The Bragg peak segment is located 19 to 20 mm from the alpha particle emission point. Pressure is 2 atm, room temperature.

#### 3.2. Delta electron emission

Fig. 8 displays a comparison between the HKS model and experimental data for various combinations of heavy ions and gas atoms. For each combination, the HKS-computed SDCS somehow resembles their experimental counterpart. Even in the extreme case of the 72-MeV fully-stripped carbon ion in water vapor, a good agreement of a factor 2 is obtained. Remarkably, this discrepancy is less than the measurement uncertainties given in Ref. [41].

The case for fission-fragments is less successful. In Ref. [43], Dy-achenko measured the SDCS obtained from the slowing-down of <sup>252</sup>Cf-spontaneous-fission fragments in helium. The comparison with a simulation is made much more intricate since this is not only one projectile that causes the gas ionization. In spite of the use of an average-like fission fragment as proposed by Rykov [5], the HKS-computed SDCS has exhibited no further improvement, especially at energies below 30 eV and above 80 eV. Dyachenko came to the same result when comparing these experimental data with a Gryzinski model for SDSC [43]: a discrepancy up to an order of magnitude was observed.

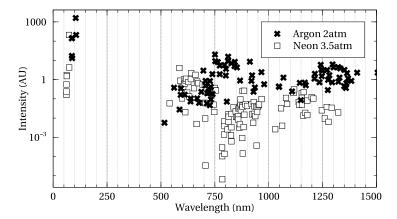


Fig. 11. Theoretical optical emission spectrum in the visible to near-infrared range of a 2 atm Argon and 3.5 atm Neon plasma along the first mm of the projectile heavy-ion, both excited by a 5.5 MeV alpha particle having a range of about 20 mm. No line broadening mechanisms are considered and the sole spontaneous radiative mechanism is responsible of de-excitations.

Luckily, an extensive data collection checked against recent experiments in various fields of application and over a large set of projectile-target combinations seems to confirm the HKS model as reliable [44,45].

#### 3.3. Electron cascade generation

The secondary electron cascade model implemented in SCENA is compared to well-know codes developed for electric-field-driven coldplasmas. This comparison shown in Fig. 9 is carried out using the following premises: (a) initial electrons at rest, (b) electron swarm set to origin, (c) electric field constant along the z-direction, (d) simulation stopped at steady state (Section 2.3.7). The ionization, excitation and elastic scattering cross-sections were downloaded in July 2019 from the LXcat database project [46]. Some cross-sections from the IST-Lisbon were selected for test cases in single atomic-gas configuration [47]. This recently-updated database includes computed and experimental values from several authors, which were validated by solving the homogeneous two-term Boltzmann equation. About 40 levels were evaluated for both argon and neon. The SCENA electron average energy over the tested domain exhibits low discrepancies of about 2% from values obtained with the BOLSIG+ and METHES codes. The drift velocity discrepancy goes from 2% to 5%. The ionization rate exhibits higher discrepancies from 5% to 50%, especially in the low energy range. The EEDF (Electron Energy Distribution Function) case is not of high importance, even though the discrepancy goes up to 10% at most. For the sake of understanding, the EEDF is derived from the EEPF given in Section 2.3.7. In addition, one can note that the two Monte Carlo codes SCENA and METHES need more time to get a steady state in the case of a low reduced electric field E/N less than 1 Td.

In order to complement the SCENA validation, its accuracy was assessed by means of the theoretical gas model proposed by Reid [48] and described by two cross sections. The first one is a constant elastic cross-section, whereas the second one is a linear energy-dependent excitation cross-section. The mean electron energies and drift velocities in various reduced electrical fields are reported in Table 1. Reid computed the mean electron energy  $\bar{\epsilon}$ , bulk drift velocity  $v_d$  and transverse diffusion coefficient D using two alternative methods, namely a Monte Carlo method and a two-term-approximation method. The discrepancies between the SCENA and Reid's Monte Carlo estimated values are less than 5% at most. A comparison with Reid's two-termapproximation estimated values yields similar discrepancies but for the transverse diffusion coefficient with a discrepancy up to about 20% at high reduced electric field E/N. As suggested by Reid and shown in Fig. 9, this comes from the fact that a Monte-Carlo approach leads to a higher electron energy distribution in the low energy domain, especially at high reduced electric fields.

Table 1 Comparison with Reid's computed data in the case of a theoretical gas model: mean delta-electron energy  $\overline{\epsilon}$  (eV), bulk drift velocity  $v_d$  (1E6 cm/s) and diffusion coefficient D (1E5 cm²/s) obtained for various reduced electric field E/N values. Monte-Carlo (MC) and two-term approximation (TT) results from [48], SCENA (S) simulation of a 1E6-electron fixed-size swarm for 1E-6 s.

|    | E/N = 1 Td            |       | E/N = 10  Td |                |       | E/N = 20  Td |                       |       |       |
|----|-----------------------|-------|--------------|----------------|-------|--------------|-----------------------|-------|-------|
|    | $\overline{\epsilon}$ | $v_d$ | D            | $\overline{E}$ | $v_d$ | D            | $\overline{\epsilon}$ | $v_d$ | D     |
| MC | 0.101                 | 1.25  | 0.986        | 0.245          | 6.27  | 1.175        | 0.368                 | 8.37  | 1.197 |
| TT | 0.102                 | 1.27  | 0.990        | 0.247          | 6.45  | 1.343        | 0.371                 | 8.64  | 1.431 |
| S  | 0.101                 | 1.28  | 0.978        | 0.239          | 6.26  | 1.115        | 0.361                 | 8.55  | 1.151 |

#### 3.4. Photon emission spectrum

Filling gas excited levels population can be recorded over mmlong segments, as the delta electron spectrum varies greatly along the heavy-ion track. Fig. 10 presents the exited level population of 1 atm neutron Argon at the beginning and end of a 5.5 MeV alpha particle track. Levels at Bragg peak get populated with a higher yield with respect to initial segment, despite a softer electron energy spectrum. No strong modifications of the buffer gas excited level population repartition mechanism are observed on most levels, translating *a priori* conservation of visible and near-infrared emission line ratios along the heavy-ion track.

If a corona plasma model is selected, optical emission spectra of rare gases consist of discrete lines with various intensities, as shown on Fig. 11: The corona model, despite its simplicity and neglection of plasma chemistry, outputs a plausible optical emission spectrum, as our research group [2,3] observed corresponding predominant emission lines in neutral Argon, without continuum component. No direct comparisons between experimental and SCENA-computed spectra can be performed due to the lack of Abel transform on such weak light source.

The use of a well collimated alpha particle source or spectral acquisitions over extended times will contribute to further validation of SCENA corona cold-plasma model.

#### 4. Conclusion

The present paper has detailed models and functions of the SCENA code developed for heavy ion induced gas-scintillation studies. Physical models required for ionization singly-differential cross-section computation have been selected. The validation of the main SCENA subroutines has been performed through comparisons against experimental

data and standard test-cases. Electron Energy Distribution Functions, drift velocities and reaction rates are in good agreement with other computer codes. The electron cascade generated by the slowing-down of heavy ions has been implemented to allow for the estimation of gas excited level densities with respect to both the time and space evolution of a fission fragment. In near future, Optical Emission Spectrum of gasbased scintillation neutron detectors will be checked against results from SCENA, enabling the selection of cold-plasma models required for radiative spectrum estimation.

#### CRediT authorship contribution statement

M. Lamotte: Conceived and designed the analysis, Collected the data, Contributed data or analysis tools, Performed the analysis, Wrote the paper. G. De Izarra: Conceived and designed the analysis, Collected the data, Contributed data or analysis tools, Performed the analysis, Wrote the paper. C. Jammes: Conceived and designed the analysis, Collected the data, Contributed data or analysis tools, Performed the analysis, Wrote the paper.

#### Declaration of competing interest

The authors declare that they have no known competing financial interests or personal relationships that could have appeared to influence the work reported in this paper.

#### References

- M. Lamotte, G. De Izarra, C. Jammes, Design and irradiation test of an innovative optical ionization chamber technology, Nucl. Instrum. Methods Phys. Res. A (2020) 163945
- [2] M. Lamotte, G. de Izarra, C. Jammes, Development and first use of an experimental device for fission-induced spectrometry applied to neutron flux monitoring, Nucl. Instrum. Methods Phys. Res. A (2019) 163236.
- [3] M. Lamotte, G. De Izarra, C. Jammes, Heavy-ions induced scintillation experiments, J. Instrum. 14 (09) (2019) C09024.
- [4] Guy Cheymol, Herve Long, Jean Francois Villard, Benoit Brichard, High level gamma and neutron irradiation of silica optical fibers in CEA OSIRIS nuclear reactor, IEEE Trans. Nucl. Sci. 55 (4) (2008) 2252–2258.
- [5] V. Rykov, Charge equilibrium of fission fragments after emergence from a solid into gas, At. Energy 83 (1) (1997) 488–492.
- [6] H. Bethe, Zur theorie des durchgangs schneller korpuskularstrahlen durch materie, Ann. Phys. 397 (3) (1930) 325–400, http://dx.doi.org/10.1002/andp. 19303970303.
- [7] J.F. Ziegler, M.D. Ziegler, J.P. Biersack, SRIM THe stopping and range of ions in matter (2010), Nucl. Instrum. Methods Phys. Res. 268 (2010) 1818–1823, http://dx.doi.org/10.1016/j.nimb.2010.02.091.
- [8] G. de Izarra, M. Lamotte, S. Bréaud, A. Pépino, P. Filliatre, C. Jammes, Cosicaf, a fission chamber simulation tool for academic purposes, in: EPJ Web of Conferences, vol. 225, EDP Sciences, 2020, p. 10003.
- [9] F. Bloch, Zur bremsung rasch bewegter teilchen beim durchgang durch materie, Ann. Phys. 408 (3) (1933) 285–320, http://dx.doi.org/10.1002/andp. 19334080303.
- [10] I.C. on Radiation Units, Stopping of Ions Heavier than Helium, vol. 73, Oxford University Press, 2005.
- [11] P. Sigmund, A. Schinner, H. Paul, Errata and addenda for icru report 73, stopping of ions heavier than helium, J. ICRU 5 (1) (2009) 1–10.
- [12] H. Paul, A. Schinner, Judging the reliability of stopping power tables and programs for heavy ions, Nucl. Instrum. Methods Phys. Res. B 209 (2003) 252–258.
- [13] P. Sigmund, A. Schinner, Binary theory of electronic stopping, Nucl. Instrum. Methods Phys. Res. B 195 (1–2) (2002) 64–90.
- [14] M. Bernal, J. Liendo, The hks model for electron production in liquid water by light ions, Nucl. Instrum. Methods Phys. Res. B 251 (1) (2006) 171–176.
- [15] M.E. Rudd, Y.-K. Kim, T. Märk, J. Schou, N. Stolterfoht, L.H. Toburen, Report 55, J. Int. Comm. Radiat. Units Meas. os28 (2) (2016) NP–NP. http://dx.doi.org/ 10.1093/jicru/os28.2.Report55.
- [16] N. Stolterfoht, R.D. DuBois, R. DuBois, R.D. Rivarola, Electron Emission in Heavy Ion-Atom Collisions, vol. 20, Springer Science & Business Media, 1997.
- [17] M. Gryziński, Classical theory of atomic collisions. i. theory of inelastic collisions, Phys. Rev. 138 (2A) (1965) A336.
- [18] M.E. Rudd, Y.-K. Kim, D.H. Madison, T.J. Gay, Electron production in proton collisions with atoms and molecules: energy distributions, Rev. Modern Phys. 64 (2) (1992) 441.

- [19] M. Rudd, L. Toburen, N. Stolterfoht, Differential cross sections for ejection of electrons from argon by protons, At. Data Nucl. Data Tables 23 (5) (1979) 405–442.
- [20] W. Barkas, D. Evans, Nuclear Research Emulsions, in: Nuclear Research Emulsions, vols. 1–2, Academic Press, 1963, URL https://books.google.fr/books?id=lPqmnQAACAAJ.
- [21] Y.-K. Kim, K.-t. Cheng, Stopping power for partially stripped ions, Phys. Rev. A 22 (1) (1980) 61.
- [22] V. Khryachkov, I. Dunaeva, M. Dunaev, N. Semenova, A new method for measuring specific energy losses of fission fragments, Instrum. Exp. Tech. 46 (1) (2003) 19–25.
- [23] E. Surdutovich, O. Obolensky, E. Scifoni, I. Pshenichnov, I. Mishustin, A. Solov'Yov, W. Greiner, Ion-induced electron production in tissue-like media and dna damage mechanisms, Eur. Phys. J. D 51 (1) (2009) 63–71.
- [24] A.V. Solov'yov, Nanoscale Insights Into Ion-Beam Cancer Therapy, Springer,
- [25] A.V. Solov'yov, E. Surdutovich, E. Scifoni, I. Mishustin, W. Greiner, Physics of ion beam cancer therapy: A multiscale approach, Phys. Rev. E 79 (2009) 011909, http://dx.doi.org/10.1103/PhysRevE.79.011909.
- [26] A. Kling, F.J. Barao, M. Nakagawa, L. Tavora, P. Vaz, Advanced Monte Carlo for Radiation Physics, Particle Transport Simulation and Applications: Proceedings of the Monte Carlo 2000 Conference, Lisbon, 23–26 2000, Springer Science & Business Media, 2014.
- [27] R. Platzman, Total ionization in gases by high-energy particles: An appraisal of our understanding, Int. J. Appl. Radiat. Isot. 10 (2) (1961) 116–127, http://dx. doi.org/10.1016/0020-708X(61)90108-9, URL http://www.sciencedirect.com/ science/article/pii/0020708X61901089.
- [28] C. Champion, M.E. Galassi, P. Weck, C. Abdallah, Z. Francis, M. Quinto, O. Fojón, R.D. Rivarola, J. Hanssen, Y. Iriki, et al., Ionization induced by protons on isolated molecules of adenine: theory, modelling and experiment, J. Phys. Conf. Ser. 488 (2014) 012038.
- [29] L. Alves, The ist-lisbon database on lxcat, J. Phys. Conf. Ser. 565 (2014) 012007.
- [30] W. Lotz, An empirical formula for the electron-impact ionization cross-section, Z. Phys. 206 (2) (1967) 205–211.
- [31] H. Skullerud, The stochastic computer simulation of ion motion in a gas subjected to a constant electric field, J. Phys. D: Appl. Phys. 1 (11) (1968) 1567.
- [32] M.J. Brennan, A.M. Garvie, L.J. Kelly, A monte carlo investigation of e x b discharges in molecular nitrogen, Aust. J. Phys. 43 (1) (1990) 27–44.
- [33] M.J. Kushner, Monte Carlo methods for electron transport, PowerPoint presentation, 2002, http://uigelz.eecs.umich.edu/pub/short\_courses/MCSHORT\_0502.pdf.
- [34] G. Hagelaar, Bolsig+ electron boltzmann equation solver, 2010.
- [35] G. Hagelaar, L. Pitchford, Solving the boltzmann equation to obtain electron transport coefficients and rate coefficients for fluid models, Plasma Sources. Sci. Technol. 14 (4) (2005) 722.
- [36] A. Tejero-del Caz, V. Guerra, D. Gonçalves, M.L. da Silva, L. Marques, N. Pinhao, C. Pintassilgo, L. Alves, The lisbon kinetics boltzmann solver, Plasma Sources. Sci. Technol. 28 (4) (2019) 043001.
- [37] M. Rabie, C.M. Franck, Methes: A monte carlo collision code for the simulation of electron transport in low temperature plasmas, Comput. Phys. Comm. 203 (2016) 268–277.
- [38] V. Georgieva, A. Bogaerts, R. Gijbels, Particle-in-cell/monte carlo simulation of a capacitively coupled radio frequency ar/cf 4 discharge: effect of gas composition, J. Appl. Phys. 93 (5) (2003) 2369–2379.
- [39] A. Nolan, M.J. Brennan, K. Ness, A. Wedding, A benchmark model for analysis of electron transport in non-conservative gases, J. Phys. D: Appl. Phys. 30 (20) (1997) 2865.
- [40] A. Kramida, Yu. Ralchenko, J. Reader, NIST ASD Team, NIST Atomic spectra database, National Institute of Standards and Technology, Gaithersburg, MD, ver. 5.6.1, 2018, [Online]. Available: https://physics.nist.gov/asd. [2016, January 31].
- [41] C. Champion, C.D. Cappello, Theoretical investigations of electron emission after water vapour ionization by light ion impact, in: Proceedings of the Seventh International Symposium on Swift Heavy Ions in Matter, Nucl. Instrum. Methods Phys. Res. B 267 (6) (2009) 881–884, http://dx.doi.org/10.1016/j.nimb.2009.02.040, URL http://www.sciencedirect.com/science/article/pii/S0168583X09002201.
- [42] S. Bhattacharjee, S. Biswas, C. Bagdia, M. Roychowdhury, S. Nandi, D. Misra, J.M. Monti, C.A. Tachino, R.D. Rivarola, C. Champion, et al., Double differential distribution of electron emission in the ionization of water molecules by fast bare oxygen ions, J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys. 49 (6) (2016) 065202.
- [43] P. Dyachenko, Experimental and theoretical works performed by the institute of physics and power engineering on the physics of nuclear-induced plasmas, Laser Part. Beams 11 (4) (1993) 619–634.
- [44] O. Obolensky, E. Surdutovich, I. Pshenichnov, I. Mishustin, A. Solov'yov, W. Greiner, Ion beam cancer therapy: Fundamental aspects of the problem, Nucl. Instrum. Methods Phys. Res. B 266 (8) (2008) 1623–1628, ion Beam Analysis. http://dx.doi.org/10.1016/j.nimb.2007.11.054, URL http://www.sciencedirect.com/science/article/pii/S0168583X0701717X.

- [45] R. Rechenmann, E. Wittendorp-Rechenmann, B. Senger, Various aspects of heavy charged particle track structures in nuclear emulsion: a starting point for the description of track patterns in tissue-like media, Radiat. Prot. Dosim. 13 (1-4) (1985) 53-59.
- [46] L.C. Pitchford, L.L. Alves, K. Bartschat, S.F. Biagi, M.-C. Bordage, I. Bray, C.E. Brion, M.J. Brunger, L. Campbell, A. Chachereau, et al., Lxcat: an open-access, web-based platform for data needed for modeling low temperature plasmas, Plasma Process. Polym. 14 (1–2) (2017) 1600098.
- [47] A. Yanguas-Gil, J. Cotrino, L.L. Alves, An update of argon inelastic cross sections for plasma discharges, J. Phys. D: Appl. Phys. 38 (10) (2005) 1588.
   [48] I.D. Reid, An investigation of the accuracy of numerical solutions of boltzmann's
- [48] I.D. Reid, An investigation of the accuracy of numerical solutions of boltzmann's equation for electron swarms in gases with large inelastic cross sections, Aust. J. Phys. 32 (3) (1979) 231–254.

ELSEVIER

Contents lists available at ScienceDirect

## Nuclear Inst. and Methods in Physics Research, A

journal homepage: www.elsevier.com/locate/nima



## Simulation of heavy-ion slowing-down tracks with the SCENA code

M. Lamotte\*, G. De Izarra, C. Jammes

CEA, DES, IRESNE, DER, Instrumentation Sensors and Dosimetry Laboratory, Cadarache, F-13108 Saint-Paul-lez-Durance, France



#### ARTICLE INFO

Keywords: Fission chambers Particle transport Gaseous detectors Gas scintillation

#### ABSTRACT

In the frame of dependable neutron flux instrumentation development for Generation IV reactors, the French Atomic and Alternative Energies Commission (CEA) investigates an innovative technology based on optical signal produced within a fission chamber. In such gaseous detectors, neutrons interact with fissile material, releasing heavy ions in the MeV range, eventually leading to spontaneous photons emission in the ultraviolet to infrared range. We hereby present the space–time evolution of heavy-ion slowing-down tracks parameters in noble gases, as computed with the SCENA radiation-induced cold-plasma simulation tool. Preliminary results on excited-states noble-gas population dynamic are reported. Population of upper-lying gas levels is completed within picoseconds, only micrometres behind the projectile ionization trail.

#### 1. Introduction

The French Atomic Energy and Alternative Energies Commission (CEA) designed a new generation of neutron detector for Gen-IV reactors flux monitoring, based on the luminescence of rare gases [1-3]. In so-called optical ionization chamber, a thin layer of neutron-sensitive material, as  $^{235}\mathrm{U}$  or  $^{10}\mathrm{B}$  is deposited on the inner detector surface, eventually releasing ions in the MeV/amu kinetic energy range upon neutron field exposure. The slowing-down of heavy-ions with a high ionization power in a rare gas — neon or argon, induces excitations and ionizations along their tracks. Spontaneous photon emissions of the excited gas atoms, in the ultraviolet to near-infrared spectrum, may be channelled in an optical fibre, to be detected by a remote solid-state photon counter. Such detectors, as CANOE (CApteur de Neutrons à Optique Expérimentale), have been successfully assessed on research reactors for proof of concept validation, sensitivity and linearity evaluation. To design, optimize and calibrate future detectors, a physics simulation of light-generating processes has to be developed. This paper starts with a historical review of radiation-induced cold-plasma simulations, their hypothesis and limitations. SCENA, our self-developed fission-induced plasma simulation code [4] is briefly described. A comparison between previous analytical work and SCENA set with similar hypothesis is assessed. Even though analogous results may be obtained by both methods with similar hypothesis, a more realistic model coupling heavy-ion and electrons transportation outputs substantially different parameters in terms of electrostatic field generation, electron energy probability function and decay times. Future developments and discussions are presented in the conclusion.

#### 2. Methods

Theoretical investigations of radiation-induced cold-plasma, especially fission-fragments generated, have been a challenge for the past 50 years. Potential applications of such plasmas included nuclearlasers, spaceship propulsion and optical ionization chambers for fission and fusion reactors monitoring. Several authors attempted to model these non-thermal plasma by postulating a Partial Local Thermodynamic Equilibrium (PLTE), and an established steady-state regime [5-7], finally solving a set of Boltzmann equations [8]. Electron Energy Distribution Functions (EEDF) were found to be almost a Maxwellian around thermal energies [9-11], with a low yield energy tail up to keV values. As the calculated mean energy was well below gases' inelastic reactions thresholds, the high energy part of the electron spectrum was considered responsible for metastable and excited states population [12-14]. While such hypothesis can be assumed in homogeneous low-pressure plasmas with intense energy deposition rates - as in nuclear-lasers - they however cannot be retained in a low-energy deposition rate systems having spatial heterogeneity, as noble gases excited by low rates fission fragment sources.

With respect to Optical Emission Spectroscopy (EOS) analysis of alpha-particles and fission fragment induced cold-plasmas in an analytical and a prototype optical ionization chamber, no recombination continua were detected and no emissions from ionized states of rare gases indicated very low ionization rates, incompatible with PLTE assumptions [2].

We chose, as Budnik et al. [15] to study individual slowing down tracks mechanisms along a space and time evolution in an attempt to build future radiation-plasma macro-model, considering the plasma

E-mail address: maxime.lamotte@cea.fr (M. Lamotte).

 $<sup>^{</sup>st}$  Corresponding author.

as an assembly of independent ionization tracks. Population states of this problem is achieved by a Monte-Carlo solved particle transport computer code developed previously, the Simulation of Collisions Electrons-Neutrals in Atmospheres (SCENA) [4]. SCENA allows a 3-dimensions and time coupled analysis of both projectile ions and delta-electrons interactions with a monoatomic buffer gas, as found in fission chambers.

#### 2.1. Physics coupling in heavy-ion slowing-down mechanism

Typical times encountered in the generation and die-away of a heavy-ion track may differ by several orders of magnitudes, allowing uncoupled mathematical simulation of some physical processes. We hereby review main time scales of interactions mechanisms.

Fission fragments generated in a fissile coating may be released at kinetic energies up to 99 MeV, corresponding to an initial velocity of about 14E+6 m/s for an ideal Light-Fission Fragment (LFF, atomic mass = 96). Heavy ions' stopping powers, computed from HKS semi-empirical model revised by Stolterfoht [16] or from ICRU 73 tables [17, 18], input in a Continuously Slowing Down Approximation (CSDA) solved with explicit Euler integration scheme provide an estimation of their ranges, slowing-down times and secondary-electrons energy spectra.

LFF in 1 atm neon crosses the first millimetre from emission layer's surface in 72 pico-seconds but completely transfers its kinetic energy in about 45 mm, a distance covered in 11 ns.

Energetic electrons originating from the heavy-ion/buffer gas interaction, with an average kinetic energy of about 40 to 50 eV, may ionize or excite the gas until falling below its first excitation threshold, in pico-seconds.

The similar lifetimes in a plasma sheath of heavy-ions and superthreshold secondary electrons accordingly implies necessity for a coupled simulation of both fission fragment transport and ionization tracks die-away. Conversely, thermalization of subthreshold electrons, sterile for luminescence production in the ultraviolet to near-infrared spectrum, takes significantly longer times scales, in the order of a microsecond. Such low-energy, long-lasting electrons may be discarded from the simulation if no external energy input, as an electric field, is present.

These times can be put in perspective with the tens of nanoseconds of atomic spontaneous emission and of the most probable atomic collision time in a 1 atm gas at room temperature, 1 ns (for a  $1.5 \, \text{Å}$  diameter Argon atom at a thermal mean velocity of  $400 \, \text{m/s}$ ).

#### 2.2. Heavy-ion transport

The present section sums-up physical models implemented in SCENA for simulation of processes considered in excited levels population induced by heavy-ions-to-gas energy transfer. The following hypothesis were applied;

- A single heavy-ion is emitted in an homogeneous medium (gas) with a discrete initial energy and charge
- Heavy-ions travel in straight paths following Continuously Slowing-Down Approximation (CSDA)
- Heavy-ions only transfer energy to the gas through ionizations along their tracks, no direct-excitation is considered, neither nuclear collisions
- Heavy-ions having potential ranges of less than a millimetre are discarded from simulation
- · Ejected delta electrons may ionize, excite or heat-up the gas
- No recombinations nor metastable states electron-impact deexcitations are considered

An external electric field, normal to the heavy-ion track may be applied, as this function was already implemented in SCENA to simulate standard ionization chambers, estimate metastable states population kinetics and validate numerical models against other Boltzmann equation solvers in reference cases. Reduced fields to be found in fission chambers are well below 5 Td, thus no Lorentz-force is applied on the swift heavy-ion.

#### 2.3. Electron generation and transport

The heavy-ion slowing-down profile in a buffer gas, subdivided in millimetre-long segments with averaged parameters such as charge, velocity or stopping-power allows uncoupled computation of optical spectra in regions of interest i.e. around the emission layer, or at the end of heavy-ion track.

The Singly Differential Cross-Section (SDCS), obtained with HKS formula revised by Stolterfoht [16], calculated along each millimetre characterizes the initial delta-electron emission energy spectrum and population.

During their free-flight, electrons move given the resulting Lorentz-force due to an external or the self-induced electrostatic field – if considered – and their own inertia. Excitations, ionizations and elastic collisions probabilities are computed and recorded at each random census-time — in the order of tens of femto-seconds for analysis, as well as the Electron Energy Distribution Function (EEDF).

#### 2.4. Electrostatic field

Local electrostatic field within a heavy-ion plasma sheath is generated by charged particles production along the slowing down track. Free electrons and ions of several generations increase swarm's size, resulting in a local difference of potential, to evolve with time, gas composition and speed of seed electrons, moving substantially faster than ions.

This self-induced electrical field may shift EEDF, eventually impacting the excited gas levels population. To analytically estimate an electrostatic field around the heavy-ion track, Budnik et al. proposed the following hypothesis;

- Heavy-ion travel time is considered negligible in regard of the primary electrons die-away time
- · Plasma track is cylindrical and radially symmetrical
- · Ionization events do not create another generation of electrons
- · No diffusion of resonance radiation are modelled
- Attachment occur if an electron is below a given distance of an atom
- Initial electrons are set along a corona after few (not considered) interactions, with a Gaussian radius distribution
- Initial electron and ion populations in helium are set to  $\langle r_e^2 \rangle = 4 \text{E} 8 \text{ cm}^2$
- Energy degradation by atomic impact, molecular ion formation and recombination

The first hypothesis being questionable with respect to typical process times encountered in a plasma track calculated in Section 2.1, will solely be implemented in SCENA for comparison purposes. A Particle In Cell (PIC) is set up to discretize a semi-infinite cylinder of  $100~\mu m$  radius, representing the plasma sheath, into 50 cylindrical subshells.

To estimate the electric field inside an thin subshell of radius ranging between r and r+dr, with a charge density  $\rho_e$  computed by counting particles within shell's boundaries, we set-up a classical electrostatic approach.

It is noteworthy that we considered positive ions standstill regarding their thermal motion velocity against the tens of eV of free electrons. In the picoseconds studied in our simulations, where gas may be excited by electrons, ions remain in their birth subshells.

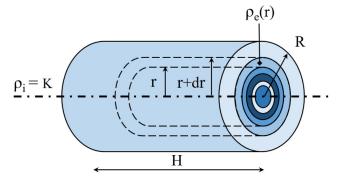


Fig. 1. Electrostatic model along the heavy-ion slowing-down track of length H and radius R. Charge densities varying with respect to distance from centre of the plasma sheath is denoted  $\rho_e(r)$ , ion linear charge density produced by heavy-ion impact along the track is referred as  $\rho_t$ .

Fig. 1 shows the electrostatic field model set in a new SCENA function to compute analytically electric field around the semi-infinite heavy-ion track. Two sets of equations define electric field generated by charges in cylindrical shells, and by gas ions along a central line. Track-length segment H of the heavy-ion being considered infinitely longer (1 mm) than its radius R, of about a micron, by applying Gauss theorem, we define:

$$\frac{\sum Q}{\epsilon_0} = \oint \vec{E} \cdot d\vec{A} \tag{1}$$

The volume of a sheath located at radius r is simply:

$$V_{\rm s} = 2 H \pi r dr \tag{2}$$

electric field generated by free charges  $E_e$  at a radius  $r_s$  is:

$$\frac{\int_0^{r_s} \rho \ H \ 2 \ \pi \ r \ dr}{\varepsilon_0} = 2 \ E_e \ \pi \ r_s \ H \tag{3}$$

finally:

$$E_e(r_s) = \frac{\int_0^{r_s} \rho \, r \, dr}{\varepsilon_0 \, r_s} \tag{4}$$

Gas ionizations due solely to heavy-ion impacts generate positive charges along a linear track, inducing an electric field  $E_i$  described by Eq. (5).

$$E_i(r_s) = \frac{\bar{N}_\delta}{2 \pi \epsilon_0 r_s} \tag{5}$$

where  $\bar{N}_{\delta}$  is the ionization events number on the heavy-ion track's segments, as computed by SCENA's slowing-down module.

#### 3. Results

Results on population of excited states, their locations and Electron Energy Distribution Functions (EEDF) were computed as function of the time elapsed since departure of the projectile heavy-ion during its first millimetre journey in a buffer gas. As a matter of comparison with other authors, local electron densities, electric fields and EEDF were assessed, assuming an instantaneous transport of the projectile and a cylindrical symmetry around the semi-infinite heavy-ion trajectory, for various radius and census times, neglecting transport of the latter. All results presented below were computed with parameters to be found in a CANOE fission chamber as exploited on ORPHÉE and CABRI research reactors. Table 1 sums-up simulation inputs of our particle transport in the case of excitation produced by an ideal Heavy Fission Fragment (HFF).

Table 1
Input values for electron-slowing down simulation in a CANOE optical ionization chamber.

| Projectile                                     | HFF             |
|------------------------------------------------|-----------------|
| E <sub>0</sub> (MeV)                           | 68              |
| A (amu)                                        | 130             |
| Z                                              | 54              |
| $\mathbf{Z}_{\mathrm{eff}_0}$                  | 13.8 [4]        |
| Target                                         | Neon            |
|                                                |                 |
| Density (cm <sup>-3</sup> )                    | 2.68E+19        |
| Density (cm <sup>-3</sup> )<br>Temperature (K) | 2.68E+19<br>300 |
|                                                |                 |

#### 3.1. Evolution of secondary electrons in a semi-infinite sheath

Initial HFF-impact ionizations develop continuous distributions of electrons described by the corresponding SDCS, with an average energy – 45 eV – well above neon's first ionization threshold — 21.56 eV. As depicted Fig. 2, EEDF in the centre of the plasma sheath shortly after projectile's passage is mainly composed of slow first-generation electrons produced by heavy-ion impact ionizations. At further locations, EEDF present harder spectra, consisting of fast electrons that could travel the long distance in such short time, and low-energy secondary electrons produced by fast super-threshold first-generation electrons.

Similarly, on a longer time scale, super-threshold electrons being moderated down to sub-ionization level, energy spectra reflect a swarm being mostly scattered elastically. Fast super-threshold electrons, able to produce ionizations and excitations induce a shoulder on the energy spectrum visible around 16.62 eV, neon's first excitation level. At this given time, no further increase of swarm's size is excepted and only few excitations up to lower-lying  $^1S_x$  levels can be provoked until mitigation of electron's energy down to thermal motion.

A close-up on electron swarms at shorter distances from projectile track's centre, in the micrometre range as on Fig. 3, highlights secondary electrons emission mechanism. Initial distribution, characterized by SDCS with a tail up to keV values at HFF first millimetre, quickly falls below ionization threshold value. As super-threshold electrons may travel long distances, up to hundreds of micrometres, high energy tail remains visible for extended census times at high radius, to be shifted down to thermal energies with a delay function of inner radii.

Near the end of the heavy-ion track, where only low-energy electrons are initially emitted, expansion of the sheath takes longer time and does not contain subthreshold electrons past few micrometres, resulting in a lower gas excitation probability.

#### 3.2. Evolution of electrostatic field a semi-infinite sheath

Electron densities around the heavy-ion track are subjected to two opposite mechanisms. Fast expansion of the swarm initially generated along a line, tends to decrease electron density as function of radius and time. On the other hand, as ionizations events occur, generation of ions and free electrons increases charge densities in some shells.

Fig. 4 presents electron densities around a HFF slowing-down track in neon, along its first millimetre, from which electrostatic field calculations have been performed.

Heavy-ions displaying higher stopping power in denser gases, associated electrostatic field substantially increases charged particles production per unit length, and so reduced electric field in the first picoseconds of the electron dying-away.

Self-induced electric-fields up to several MV/m may generate an electrostatic force, oriented radially and quickly decreasing after ion's passage. In 1 atm xenon, this electrostatic field located 0.15  $\mu$ m from track's centre, 0.2 ps after ion's passage rises a local reduced field of 68 Td, resulting in a radial acceleration of 3E+17 m s<sup>-2</sup>. Despite

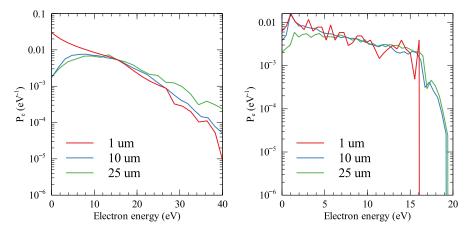


Fig. 2. EEDF of electrons generated by both ion-impact and electron impact ionization on neon at 1 atm at various sheath radius, 10 ps (left) and 100 ps (right) after a projectile instantaneous passage.

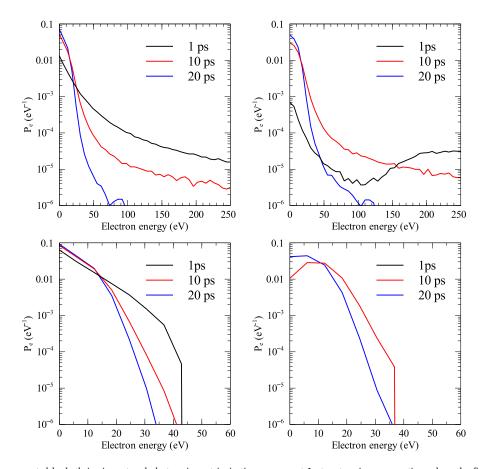


Fig. 3. Up: EEDF of electrons generated by both ion-impact and electron impact ionization on neon at 1 atm at various census time, along the first mm crossed by HFF, in the shell of radius 0 to 1E-4 m (left), and 1E-5 to 1E-4 m (right).

Down: same parameter but at the last computed heavy-ion track millimetre segment, with an initial kinetic energy of 1.4 MeV. No electrons had time to reach the external subshell within 1 ps.

their high values, self-induced electric forces do not induce significant changes in global EEDF and buffer gas excitation level population apportionment because of a fast decay.

#### 3.3. Global yield and position of inelastic events

Activation of the heavy-ion time-resolved transport routine and electron seeding of SCENA allows complementary investigation of the electron swarm parameters from a more realistic point of view. In such

case, new electrons with random direction vectors and initial velocity computed from SDCS are added at each simulation census-time.

Fig. 5 plots the total excitation rate of neon's level  ${}^2P_6$  (18.64 eV) responsible for 692.95 nm line emission and  ${}^1S_5$  lowest metastable level (16.62 eV) as function of time in the first millimetre long sheath of plasma. A maximum swarm size is obtained 112 ps after passage of the projectile. This value is coherent with the sum of time for HFF to cross the cell, 105 ps, and time for SDCS-described electron swarm to fall below neon's ionization threshold,  $\sim$ 3 ps.

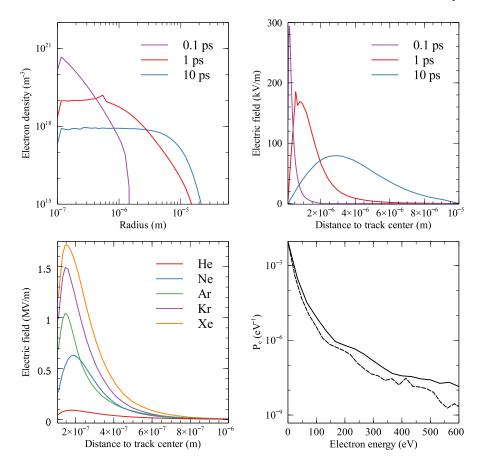


Fig. 4. Up: Electron densities at various radii and census-times in 1 atm neon bombarded by HFF (left) and associated electric field (right) in the assumption of instantaneous projectile journey over 1 mm.

Down: Impact of the buffer noble-gas species on the electric field in the corona around the projectile, 0.2 ps after seed-electron release (left). EEDF in 1 atm Xe 100 ps after seed-electron release with (solid line) and without (dashed line) considering self-induced electrostatic field (right).

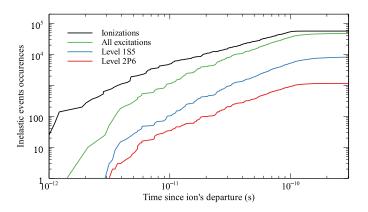


Fig. 5. Evolution of accumulated excitation and ionization events of 1 atm neon by secondary HFF-induced electrons as function of time after projectile's passage.

In the presence of an external electric field, such as in standard fission chambers, a drift of electrons and so ionizations events' positions is noticeable, as depicted Fig. 6. If the applied reduced electric field is above breakdown voltage (about 1 Td for 1 atm neon), inelastic events keep increasing after disappearance of the projectile from the cubic-sided millimetre cell, as well as a general deviation of swarm's position from the track centre.

#### 3.4. Space and time evolution of the global electron swarm

A 3-dimensional representation of the electron swarm generated around a HFF track, with only 1/200 th of electron population to be found in real cases is presented Fig. 7. Fast degradation of secondary electron's energy, as detailed in Section 3.1 and clearly visible on 3-D views lead to an overall low EEDF over the complete plasma track. Fig. 8 shows the global EEDF of a 1 mm plasma track as function of time. Such distribution, while different from thermal motion distribution remains relatively energetic for a long time, in the order of microseconds without other diffusion mechanisms, but is sterile for further excitation level population.

Inelastic events production, useful for luminescence generation appears to be located close around the projectile heavy-ion (in micrometres radii), and mostly along the first millimetres of its track, as further steps induce low-energy deposition rates.

#### 4. Conclusion

A simulation of heavy-ion slowing-down and energy-transfer to noble gas has been performed in configurations to be found in optical ionization chambers. Secondary electron swarms have been analysed by their space and time energy spectra evolutions. Fast degradation of electrons energy implies population of near-infrared emitting gas excitation levels to be complete picoseconds after heavy-ion passage, in the very first millimetres of its track, and around a radius of few micrometres. Electrostatic field and associated force generated by free flying

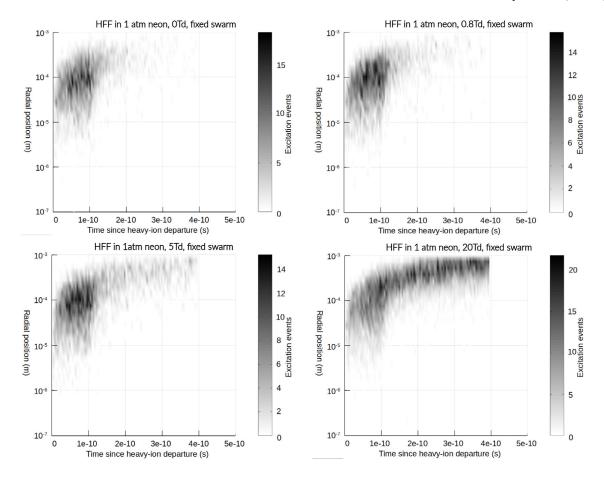


Fig. 6. Radial position of excitation events from the heavy-ion track-centre in a 1 mm-sided neon cubic cell as function of time since ion's departure, in the presence of an external electric field of: up left 0 Td, up right 0.8 Td, down left 5 Td, down right 20 Td. In all cases, the HFF exits the cell after 105 ps.

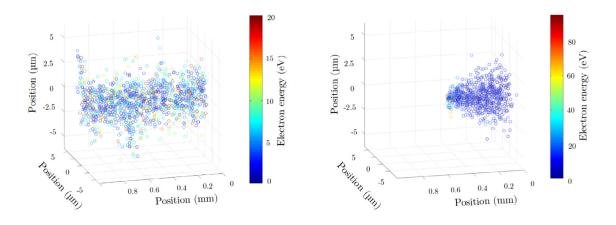
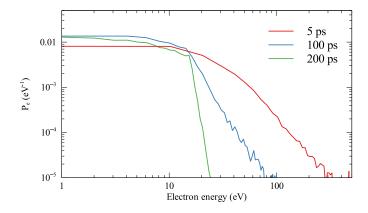


Fig. 7. 3-Dimensional views of the electron swarm energy distribution (colour circles) produced after a 50 ps simulation.

Left: with instantaneous projectile transport hypothesis. Right: with coupled transportation of the HFF. In both cases, about 1000 electrons are displayed. (For interpretation of the references to colour in this figure legend, the reader is referred to the web version of this article.)

charges around a heavy-ion track have been estimated and display values up to kV/cm in helium, and up to MV/cm in xenon, modifying slightly electron energy spectrum distribution in the corona around swift heavy-ion. Nevertheless, such narrow-located phenomenon cannot be observed in a more realistic simulation, considering swift heavy-ion time of flight as non null. Typical reaction times found within

an ion-generated plasma track unveil requirement of a coupling of projectile and secondary electron swarm dynamic equations to be representative of such non-equilibrium transient plasma. Future improvements of SCENA may include collisional de-excitation model, as pressures in fission chambers induce atomic collision times in the order of excited-states radiative decay constants.



**Fig. 8.** EEDF of electrons generated by both ion-impact and electron impact ionization on neon at 1 atm along the projectile's passage in the first 1 mm-segment. Times are given since ion departure from fissile layer. HFF is expected to leave the mm-sided cell after about 105 ps.

#### CRediT authorship contribution statement

M. Lamotte: Conceived and designed the analysis, Collected the data, Contributed data or analysis tools, Performed the analysis, Wrote the paper. G. De Izarra: Collected the data, Contributed data or analysis tools, Performed the analysis. C. Jammes: Contributed data or analysis tools, Performed the analysis.

#### **Declaration of competing interest**

The authors declare that they have no known competing financial interests or personal relationships that could have appeared to influence the work reported in this paper.

#### References

- [1] M. Lamotte, G. De Izarra, C. Jammes, Development and first use of an experimental device for fission-induced spectrometry applied to neutron flux monitoring, Nucl. Instrum. Methods Phys. Res. A 953 (2019) 163236.
- [2] M. Lamotte, G. De Izarra, C. Jammes, Heavy-ions induced scintillation experiments, J. Instrum. 14 (09) (2019) C09024.
- [3] M. Lamotte, G. De Izarra, C. Jammes, Design and irradiation test of an innovative optical ionization chamber technology, Nucl. Instrum. Methods Phys. Res. A 968 (2020) 163945.
- [4] M. Lamotte, G. De Izarra, C. Jammes, SCENA: A simulation tool for radiationinduced gas scintillation, Nucl. Instrum. Methods Phys. Res. A 982 (2020) 164576
- [5] J. Guyot, G. Miley, J. Verdeyen, Application of a two-region heavy charged particle model to noble-gas plasmas induced by nuclear radiations, Nucl. Sci. Eng. 48 (4) (1972) 373–386.
- [6] D. Rees, C. Leffert, D. Rose, Electron density in mixed gas plasmas generated by fission fragments, J. Appl. Phys. 40 (4) (1969) 1884–1896.
- [7] J.E. Deese, H. Hassan, Analysis of nuclear induced plasmas, AIAA J. 14 (11) (1976) 1589–1597.
- [8] H. Hassan, J.E. Deese, Electron distribution function in a plasma generated by fission fragments, Phys. Fluids 19 (12) (1976) 2005–2011.
- [9] B.S. Wang, G.H. Miley, Monte Carlo simulation of radiation-induced plasmas, Nucl. Sci. Eng. 52 (1) (1973) 130–141.
- [10] R.H. Lo, G.H. Miley, Electron energy distribution in a helium plasma created by nuclear radiations, IEEE Trans. Plasma Sci. 2 (4) (1974) 198–205.
- [11] D. Auphelle, F. Euvé, M. Fitaire, A. Pointu, M. Vialle, et al., Caractéristiques électroniques d'un plasma créé par un faisceau d'ions accelerés, Physica B+C 97 (2–3) (1979) 235–243.
- [12] G. Russell, Feasibility of a nuclear laser excited by fission fragments produced in a pulsed nuclear reactor, NASA SP-236 (1971) 53–62.
- [13] A. Pointu, D. Auphelle, F. Euve, M. Fitaire, M. Vialle, Calculation of the electron distribution function of a rare gas nuclear induced plasma, J. Physique 41 (10) (1980) 1101–1108.
- [14] N. Peyraud, Energy transfer theory in particle-beam generated plasmas, Phys. Lett. A 106 (1–2) (1984) 37–42.
- [15] A. Budnik, Y.V. Sokolov, A. Vakulovskiy, Mathematical simulation of the spacetime evolution of fission-fragment plasma tracks, Hyperfine Interact. 88 (1) (1994) 185–192.
- [16] N. Stolterfoht, R.D. DuBois, R. DuBois, R.D. Rivarola, Electron Emission in Heavy Ion-Atom Collisions, Vol. 20, Springer Science & Business Media, 1997.
- [17] P. Sigmund, R. Bimbot, H. Geissel, H. Paul, A. Schinner, ICRU report 73, stopping of ions heavier than helium, J. ICRU 5 (1) (2005).
- [18] P. Sigmund, A. Schinner, H. Paul, Errata and addenda for IRCU report 73, stopping of ions heavier than helium, J. ICRU 5 (1) (2009) 1–10.

# Bibliographie

- [1] M. Lamotte, G. De Izarra, C. Jammes, Heavy-ions induced scintillation experiments, Journal of Instrumentation 14 (09) (2019) C09024.
- [2] M. Lamotte, G. de Izarra, C. Jammes, Development and first use of an experimental device for fission-induced spectrometry applied to neutron flux monitoring, Nucl. Instrum. Methods Phys. Res. A (2019) 163236.
- [3] R. Walters, Excitation of gases by fission fragments, Ph.D. thesis, University of Florida (1973).
- [4] C. Multiphysics, Introduction to COMSOL multiphysics, COMSOL Multiphysics, Burlington, MA, accessed Feb 9 (1998) 2018.
- [5] G. Hagelaar, L. Pitchford, Solving the Boltzmann equation to obtain electron transport coefficients and rate coefficients for fluid models, Plasma Sources Science and Technology 14 (4) (2005) 722.
- [6] G. Hagelaar, Bolsig+ electron Boltzmann equation solver (2010).
- [7] A. Tejero-del Caz, V. Guerra, D. Gonçalves, M. L. da Silva, L. Marques, N. Pinhao, C. Pintassilgo, L. Alves, The LisbOn KInetics Boltzmann solver, Plasma Sources Science and Technology 28 (4) (2019) 043001.
- [8] S. Biagi, Monte Carlo simulation of electron drift and diffusion in counting gases under the influence of electric and magnetic fields, Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section A: Accelerators, Spectrometers, Detectors and Associated Equipment 421 (1-2) (1999) 234–240.
- [9] The SPECAIR code.
  URL http://www.specair-radiation.net/features.php
- [10] R. Schneider, F. Hohl, Nuclear-pumped lasers, Advances in Nuclear Science and Technology (1984) 123–287.
- [11] J. Guyot, G. Miley, J. Verdeyen, Application of a two-region heavy charged particle model to noble-gas plasmas induced by nuclear radiations, Nuclear Science and Engineering 48 (4) (1972) 373–386.
- [12] M. Gryzinski, Classical theory of atomic collisions. i. theory of inelastic collisions, Phys. Rev. 138 (1965) A336-A358. doi:10.1103/PhysRev.138.A336.
  URL https://link.aps.org/doi/10.1103/PhysRev.138.A336
- [13] G. H. Miley, P. E. Thiess, A unified approach to two-region ionization-excitation density calculations, Nuclear Applications 6 (5) (1969) 434–451.
- [14] S. Melnikov, A. Sinyanskii, A. Sizov, G. H. Miley, Lasers with nuclear pumping, Vol. 455, Springer, 2015.

BIBLIOGRAPHIE 105

[15] B. S. Wang, G. H. Miley, Monte Carlo simulation of radiation-induced plasmas, Nuclear Science and Engineering 52 (1) (1973) 130–141.

- [16] Y. Weng, M. J. Kushner, Method for including electron-electron collisions in Monte Carlo simulations of electron swarms in partially ionized gases, Physical Review A 42 (10) (1990) 6192.
- [17] R. H. Lo, G. H. Miley, Electron energy distribution in a helium plasma created by nuclear radiations, IEEE Transactions on Plasma Science 2 (4) (1974) 198–205.
- [18] H. Hassan, J. E. Deese, Electron distribution function in a plasma generated by fission fragments, The Physics of Fluids 19 (12) (1976) 2005–2011.
- [19] G. Russell, Feasibility of a nuclear laser excited by fission fragments produced in a pulsed nuclear reactor, NASA SP-236 (1971) 53-62.
- [20] D. Rees, C. Leffert, D. Rose, Electron density in mixed gas plasmas generated by fission fragments, Journal of Applied Physics 40 (4) (1969) 1884–1896.
- [21] R. A. Walters, R. Paternoster, R. Schneider, Recent experimental results concerning nuclear pumped gas lasers 41 (1974) 79–88.
- [22] P. Thiess, G. Miley, Calculations of ionization-excitation source rates in gaseous media irradiated by fission fragments and alpha particles, NASA SP-236 (1971) 369–396.
- [23] A. Budnik, Y. V. Sokolov, A. Vakulovskiy, Mathematical simulation of the space-time evolution of fission-fragment plasma tracks, Hyperfine Interactions 88 (1) (1994) 185– 192.
- [24] J. F. Ziegler, M. D. Ziegler, J. P. Biersack, SRIM The stopping and range of ions in matter (2010), Nuclear Instruments and Methods in Physics Research B 268 (2010) 1818–1823. doi:10.1016/j.nimb.2010.02.091.
- [25] H. Paul, A. Schinner, Judging the reliability of stopping power tables and programs for heavy ions, Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section B: Beam Interactions with Materials and Atoms 209 (2003) 252–258.
- [26] M. Rudd, L. Toburen, N. Stolterfoht, Differential cross sections for ejection of electrons from argon by protons, Atomic Data and Nuclear Data Tables 23 (5) (1979) 405–442.
- [27] N. Stolterfoht, R. D. DuBois, R. DuBois, R. D. Rivarola, Electron emission in heavy ion-atom collisions, Vol. 20, Springer Science & Business Media, 1997.
- [28] M. Rabie, C. M. Franck, METHES: A Monte Carlo collision code for the simulation of electron transport in low temperature plasmas, Computer Physics Communications 203 (2016) 268–277.

# 4

## Irradiations en faisceau de neutrons froids

Après avoir vérifié la mesurabilité du signal optique sur le dispositif PSEG, et son attrait pour l'auto-diagnostic même en l'absence de polarisation, je m'attelais à réaliser une maquette de détecteur neutronique entièrement passif et reposant sur la seule émission de lumière proche-infrarouge.

L'irradiation d'un prototype de chambre à fission sous flux de neutrons figurait initialement dans le plan de thèse, mais l'identification d'une source de neutrons était a effectuer, en milieu de première année. À ce titre, je dressais une compilation des installations susceptibles de fournir des neutrons. Les réacteurs BR1 (Belgique) et JSI (Slovénie) furent pré-sélectionnés, avec une possibilité de repli sur l'accélérateur CANEL/T400 de l'IRSN de Cadarache. Un palier de puissance du réacteur CABRI nous a été initialement proposé pour Février 2019, mais fut annulé quelques jours avant l'expérimentation prévue. À ce titre, j'ai conçu et fait réaliser sous un mois un détecteur optique prévu pour une installation dans la piscine de CABRI. L'exemplaire réalisé ne sera jamais exploité face à un défaut d'étanchéité sur un organe brasé. Une rencontre avec le directeur du Laboratoire Léon Brillouin aboutit au don de temps de faisceaux sur ORPHÉE, dernier réacteur construit pour le compte du CEA. Une version plus robuste de CANOE, produite en 5 exemplaires autorisa l'acquisition de données expérimentales et l'acquisition d'un premier retour d'expérience sur les chambres à fission optiques. L'irradiation de CANOE dans un flux de neutron pur et froid constitua un point important dans le développement des capteurs gazeux optiques, puisque qu'au cours de mes 3 campagnes de mesure, la preuve de concept de CANOE et l'essai de photodétecteurs se révèleront probants. Nous verrons dans ce chapitre le développement de CANOE et ses résultats dans le réacteur ORPHÉE.

## 4.1 Source de neutrons et instrumentation

## 4.1.1 Réacteur à faisceaux froids ORPHÉE

ORPHÉE est un réacteur à faisceaux froids sortis, exploité par le Commissariat à l'Énergie Atomique et le Centre National de la Recherche Scientifique au sein d'un laboratoire commun nommé Léon Brillouin (LLB). Le réacteur, INB 101, était la plus récente installation du CEA, avec une divergence en décembre 1980. D'une puissance thermique de 14 MW, cette pile renfermant 5.88 kg d'uranium hautement enrichi (HEU) était refroidie à l'eau légère par convection forcée et disposait d'un bac d'eau lourde permettant de modérer et produire les neutrons en dehors du cœur, à la façon du Réacteur à Haut Flux de Grenoble <sup>1</sup>. 9 doigts de gants, ne regardant pas le cœur, étaient insérés dans la cuve d'eau lourde afin de canaliser des neutrons dans 20 faisceaux horizontaux [1]. Des «bouteilles froides» remplies d'hélium liquide étaient placées devant deux des doigts de gants pour modérer <sup>2</sup> les neutrons les traversant vers des énergies très faibles, de l'ordre du meV afin de tirer profit de la faible longueur d'onde particulaire des neutrons (quelques Angstrom).

ORPHÉE étant principalement dédié à l'étude de la structure de la matière, la quasi-totalité de ses neutrons était utilisée pour des expériences de diffusions et diffractions sur des échantillons situés loin du cœur <sup>3</sup>. Des guides de neutrons à supermiroirs [2] et miroir de Nickel guidaient les neutrons qui se comportaient alors comme un jet de gaz, pouvant rebondir sur leurs parois. Le rayon de courbure des guides —allant de 463 m à 4167 m— permettait de filtrer les neutrons trop rapides pour une utilisation en expérience de diffusion tout en supprimant le champ gamma issu du cœur ou de la cuve d'eau lourde. Des monochromateurs cristallins ou mécaniques « chopper » terminaient de trier les neutrons d'intérêt pour les expériences en casemate.

Deux casemates nous furent proposées, G5-bis anciennement dédiée à la diffusion aux petits angles, et G3-2 hébergeant des expériences et des essais divers auprès d'utilisateurs externes. L'utilisation de faisceaux sortis froids offre l'avantage de pouvoir couper simplement le flux de neutrons et d'ouvrir une porte plombée cachant l'expérience, ce qui permet de travailler rapidement et avec de nombreuses configurations.

Le flux de neutrons sortant des guides fut caractérisé par Menelle [3] avec des dosimètres en or, il possède une grande homogénéité, comme on peut le constater sur la Fig. 4.1. L'énergie moyenne des neutrons en sortie du faisceau est d'environ 3.5 meV. Le flux gamma est lui négligeable ; une dose de quelques  $10~{\rm mGy/h}$  fut estimée, provenant principalement des quelques neutrons frappant des éléments absorbants en bore.

Les faibles débits de fluence rencontrés dans les casemates, ne dépassant pas  $1E+9 \, n/cm^2$ , ne sont pas modulables, hormis en plaçant des éléments absorbants (feuilles de plastique lithié ou boré). Utilisés comme simple source de neutron non modulable, les faisceaux de ORPHÉE sont adaptés à l'obtention de preuve de concept pour la génération de signal optique, et l'essai de photodétecteur à basse limite de détection.

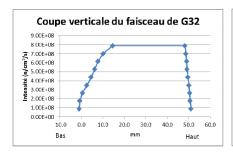
Chaque campagne de mesure est dédiée à un objectif défini par les résultats obtenus lors des expériences précédentes.

Le réacteur s'est définitivement éteint le 29 Octobre 2019, nous fûmes ses derniers utilisateurs.

<sup>1.</sup> Le RHF renferme 10 kg d'HEU, générant une puissance thermique de 58 MW depuis 1971. Il est exploité par un consortium international, l'Institut Laue-Langevin

<sup>2.</sup> Abaisser l'énergie des neutrons vers une distribution de Maxwell-Boltzmann caractérisée par la température du milieu «modérateur»

<sup>3.</sup> Des guides «chauds» étaient positionnés dans l'enceinte du réacteur, le modérateur était un bloc de graphite chauffé électriquement. ORPHÉE produisait également du silicium dopé par transmutation





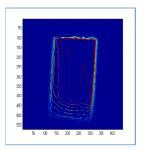


FIGURE 4.1 – Répartition du flux de neutron en sortie du canal d'irradiation G3-2 du réacteur ORPHÉE. Données issues de [3].

# 4.1.2 Capteur de neutrons expérimental

Un capteur polyvalent usinable rapidement était nécessaire pour effectuer des mesures avant la fermeture définitive de ORPHÉE.

L'exploitation du PSEG durant plusieurs mois a conclu à un dégazage du joint butyle négligeable, aussi bien en condition de surpression et de dépression car aucun composé moléculaire n'était détectable par spectroscopie optique. Une technologie similaire a été envisagée pour une utilisation sous flux, moyennant un changement préventif du joint soumis au flux mixte neutron-gamma. Peu de données expérimentales sur la dégradation et le dégazage du butyle soumis à un champ mixte étaient disponibles. Le silicone,  $SiO_2$ , fut retenu devant d'autres matériaux vu la simplicité et la faible volatilité de sa molécule. Des études ont prouvé sa tenue relativement bonne aux champs mixtes : 100 kGy et  $1\text{E}+15 \text{ n/cm}^2$  [4], qui sont en tous cas très modérés dans un réacteur à faisceaux froids.

Le corps du détecteur, initialement prévu en Al-5055 (allié au magnésium) pour sa capacité à la brasure d'éléments annexes, fut abandonné devant les résultats décevants de l'étanchéité des organes brasés. Le dispositif initialement prévu pour CABRI, jamais exploité, est présenté en annexe B II. Le passage étanche pouvait être effectué par un hublot en regard d'une fibre optique, ou par un presse-étoupe conique en aluminium dont l'étanchéité se fait par contact métal-métal. Deux emplacements prévus pour des lentilles de collimations permettaient de proposer plusieurs ouvertures numériques.

Une seconde version, cette fois-ci basée sur un corps entièrement tourné en Al-6061-T4<sup>4</sup>, supprime le recours à la brasure ou à la soudure. La durée de vie du dispositif sera cependant limitée car il présente de fins pas de vis, qui s'éroderont inexorablement. Le système de gonflage / dégonflage consistait en un téton en alliage de titane Ta6V et d'une bille en fer doux issu de stocks du LDCI et habituellement utilisée sur des chambres à fission gonflables en atelier. Une vitre en silice similaire à celle utilisée sur le PSEG est maintenue par une bride en aluminium, elle même maintenue sur le corps par un filetage, formant un hublot de 25 mm de diamètre. L'ensemble assure une étanchéité que l'on verra très satisfaisante au cours de nos expérimentations.

L'acquisition d'une imprimante 3D permit la réalisation rapide et à moindre coût de pièces d'adaptation, de portes-lentilles, de coupleurs divers et d'un dispositif de focalisation. La bride de maintien du hublot possède un filetage de fort diamètre afin d'accueillir une assemblée optique réglable ou un adaptateur pour fibre optique, dont les composants sont imprimés en

<sup>4.</sup> Allié magnésium - silicium, recuit

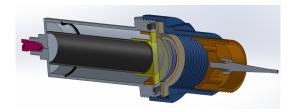


FIGURE 4.2 – Représentation 3D d'un CANOE chargé d'un tube recouvert de  $^{10}B_4C$ . On note la fibre optique industrielle RS-PRO 425-8584 à raccord SMA en regard d'une lentille de focalisation. La distance focale est ajustable par un pas de vis entre la bride porte-hublot (bleu) et l'adaptateur (orange).



FIGURE 4.3 – Photographie du dépôt d'uranium hautement enrichi à l'intérieur d'un détecteur CANOE. La fibre optique, lentille de collimation, support de lentille et bague d'adaptation ont été retirés pour les besoins de la photographie.

# $ABS^{5}$ .

Le dispositif de gonflage est inspiré d'un dispositif existant et développé pour les chambres à fission paramétrables CFTM <sup>6</sup>. Le nouveau dispositif dédié aux CANOE utilise exclusivement des pièces industrielles standards et des raccords pneumatiques interchangeables Swagelok, tels qu'utilisés à Cadarache, et Festo, utilisés lors de campagnes extérieures. Un plan complet de l'ensemble est présenté en annexe B III

Des gorges et épaulements dans le corps du capteur sont prévus pour loger des disques supportant des dépôts de Pu, U et B, ainsi que des cylindres tapissés de  $^{10}$ B maintenus par des circlips en aluminium découpés par laser. La vue en coupe Fig. 4.2 présente CANOE muni d'un cylindre métallique recouvert de  $^{10}$ B<sub>4</sub>C, tandis que la photographie Fig. 4.3 montre l'intérieur d'un second CANOE, contenant un dépôt d'uranium.

Un test de tenue à la pression fut réalisé avec une pompe manuelle capable de délivrer 15 atmosphères. CANOE a su séquestrer cette pression bien supérieure à celle utilisée en situation expérimentale, sans fuite pendant une semaine.

<sup>5.</sup> Acrylonitrile Butadiène Styrène, un plastique résistant et couramment utilisé en fabrication additive.

<sup>6.</sup> Chambre à Fission de Tests de Modèles, de géométrie plane et configurable

Le remplissage de gaz a été effectué de manière initiale au LDCI avec 1 atm d'argon industriel Arcal Prime, avant un transport nucléaire vers Saclay. Ce gonflage a été conservé durant la première campagne de mesure, avant que le banc de pompage ne soit construit pour les deux dernières sessions.

Le néon a été évalué comme gaz de remplissage car son spectre d'émission lumineux est davantage centré sur le visible (voir 4.5), ce qui permet de mieux tirer profit des profils d'efficacité de détection des SiPM et APD. 6 mois ont été nécessaires pour obtenir une bouteille de 20 litres de néon de qualité spectroscopique, celle-ci ne fut disponible pour la dernière campagne de mesure.

## 4.1.3 Détecteur de photons

On a vu dans le chapitre concernant l'exploitation du PSEG, que l'acquisition de spectres d'émission nécessitait de longues minutes de pose pour obtenir une statistique suffisante. Le placement de la pastille de  $1.8~\rm mg$  de  $^{238}\rm PuO_2$  dans un CANOE a permis de vérifier la détectivité du signal optique produit plus tard par les neutrons avec différents capteurs acquis à cet effet.

Le spectre d'émission de l'argon excité par les particules alphas est strictement le même entre le PSEG et CANOE. L'intensité du signal est en revanche bien moins forte sur CANOE car seule une petite partie des photons atteignant le hublot est collectée par la fibre optique. Sur le PSEG, la surface de collection était plus importante, atteignant 4 mm² si la fente d'entrée est grande ouverte. Le code de simulation de la génération de photon évoqué en annexe A II a été modifié pour représenter un CANOE excité par une source plane, le code source est présenté en annexe B I. Avec une fibre de 200 µm de diamètre en regard de CANOE gonflé sous 1 atm d'argon et excité par des fragments de fission (portée d'environ 25 mm), on escompte ainsi récolter 1 ppm des photons produits, et les focaliser sur l'entrée du spectromètre.

La représentation graphique d'un résultat du code est exposée Fig. 4.4. Les fibres optiques utilisées lors d'essais hors et en flux sont présentées dans le tableau. 4.1. Les fibres plastiques,

| Référence       | Coeur                   | Diamètre (um) | NA   | Rayon(mm) | $\mathrm{Prix}(\mathrm{e/m})$ | Utilisation                 |
|-----------------|-------------------------|---------------|------|-----------|-------------------------------|-----------------------------|
| EO-58-397       | Silice                  | 100           | 0.22 | 22        | 89                            | A                           |
| HFBR-RUS100Z    | PMMA                    | 980           | 0.5  | 25        | 0.67                          | $\mathbf{A}\!+\!\mathbf{O}$ |
| RS-PRO 425-8584 | Silice                  | 200           | 0.2  | 20        | 11.4                          | $\mathrm{A}\!+\!\mathrm{O}$ |
| FG200LEA        | Silice                  | 200           | 0.22 | 26.4      | 7.68                          | $A\!+\!C$                   |
| NIR600-A1       | Silice                  | 600           | 0.22 | 34        | 34                            | $\mathbf{C}$                |
| NIR150-Al       | $\operatorname{Silice}$ | 150           | 0.22 | 22        | 17                            | $\mathbf{C}$                |

Table 4.1 – Caractéristiques des fibres optiques utilisées ou pressenties pour les expérimentations à froid et en réacteur. A : Atelier chambres à fissions, O : ORPHÉE, C :CABRI

peu onéreuses, disponibles rapidement, facilement polissables mais de grand diamètres ne sont pas adaptées à l'utilisation sous flux. Leur exploitation sur le réacteur ORPHÉE fut néanmoins envisagée compte tenu de la très faible dose gamma dans la casemate, et du placement de la fibre en dehors du faisceau de neutron. Des spectres d'absorption dans 2 mètres de fibres optiques en PMMA et en silice pure sont présentés en annexe B IV.

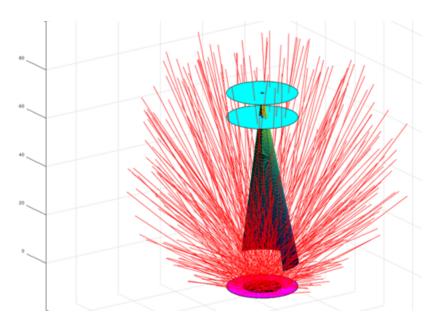


FIGURE 4.4 – Représentation graphique du code de calcul de la proportion de photons produits dans CANOE et canalisés dans la fibre optique. Les deux disques bleus représentent l'épaisseur de hublot, variant de 3 mm à 10 mm en fonction des expériences. Le cône vert représente le cône d'acceptance de la fibre, fonction de son ouverture numérique. Seuls les photons émis en direction de la fibre sont représentés pour plus de clarté.

Malgré l'absorption très marquée de certaines bandes spectrales dans la fibre à cœur PMMA  $^7$ , la surface de collection 25 fois plus importante que celle de la fibre silice industrielle induit un signal significativement plus élevé sur des distances courtes. Une fibre silice standard a une atténuation de l'ordre de 6 dB/km contre 400 dB/km pour la fibre plastique à 700 nm. Sur un mètre, la transmission passera ainsi de 99.86 %/m à 91.2%/m.

Les détecteurs de photons retenus pour l'expérience sont les suivants :

CCD Princeton Instruments Pixis BR Excelon

APD-Geiger Hamamatsu C13001-01

SiPM Ketek PM1125-WB

La caméra CCD est positionnée derrière le spectromètre, il est néanmoins possible de dévier l'intégralité du faisceau lumineux vers la caméra en utilisant l'ordre zéro du spectre de diffraction pour en estimer l'intensité. La caméra permet de longs temps de pose dans le cas où la puissance lumineuse serait trop faible pour être estimée de manière instantanée sur les autres détecteurs. Son refroidissement à -75  $^{\circ}$ C et son efficacité quantique atteignant 90 % à 912 nm permet d'obtenir un rapport signal-sur-bruit appréciable.

Les caractéristiques techniques des deux autres technologies évaluées, SPAD et SiPM sont présentées en détail dans la **publication V**.

La présence simultanée de SiPM fonctionnel, du SPAD, et du spectromètre dans le hall des guides n'eu jamais lieu; en conséquence, les spectres d'émission ont uniquement pu être captés par la caméra CCD. Le SPAD Hamamatsu C13001-01 présente les caractéristiques de réponse

<sup>7.</sup> Polyméthacrylate de méthyle, un polymère transparent souvent dénommé Plexiglas ou Perpex.

spectrale et de dynamique de mesure exposées dans la Fig. V.

Vu la réponse spectrale de ce détecteur, un gonflage au néon plutôt qu'à l'argon peut augmenter nettement le taux de comptage, à flux de neutron équivalent.

L'acquisition des signaux issus des détecteurs SiPM et SPAD était envisagée avec une carte SoC équipée d'un convertisseur analogique-numérique <sup>8</sup> et d'un FPGA <sup>9</sup> Red Pitaya, capable d'analyse de hauteur d'impulsions <sup>10</sup>. Un oscilloscope entrée de gamme servait à la visualisation des signaux bruts et au dépannage. Un oscilloscope à large bande passante et mémoire fut finalement exploité pour enregistrer les traces des détecteurs, et procéder à un post-traitement.

# 4.2 Expériences préparatoires, hors flux

Avant l'envoi du matériel sur l'îlot nucléaire de Saclay, une répétition des expériences fut entreprise au sein de l'Atelier de Fabrication des Chambres à Fission dans l'INB 136 dite « Chicade ».

La conception de CANOE est simple et polyvalente, la possibilité d'utiliser des portes-dépôts issus du PSEG a été envisagée dès son origine.

La manipulation en boite à gants étant délicate voire impossible avec des petits éléments, aucune vis n'a été retenue dans ma conception. La mise et le maintien en position des pièces se fait exclusivement avec des épaulements, taquets et circlips. Des répétitions « à froid » sans matières nucléaires ont prouvé l'efficacité d'une telle conception. On a procédé à l'insertion de CANOE dans une boite à gants, renfermant elle même le PSEG en stockage, afin de récupérer et placer sa plaquette alphagène. Un support en tôle fine d'aluminium pré-pliée de série 2017 <sup>11</sup> accueille le dépôt, puis est placé sur une broche en ABS dédiée au placement précis de l'ensemble dans le corps de CANOE. Le placement d'un circlip en aluminium avec la même broche, retournée, stabilise l'ensemble qui peut ensuite recevoir le hublot et la bride de maintien. L'ensemble de l'opération de montage dure moins de 3 minutes, et permet une étanchéité parfaite, vérifiée au banc de pompage et par des renifleurs d'Hélium.

Une analyse spectroscopique du gaz de remplissage a été effectuée en plaçant CANOE directement devant la fente d'entrée du spectromètre, maximisant ainsi la collecte de lumière. Un spectre acquis par cette méthode est présenté Fig. 4.5.

L'absence de raies autres que celles du gaz de remplissage, malgré des mois de séquestration souligne le très faible dégazage des composants.

L'essai des différentes fibres optiques sur ce CANOE permet de concevoir des pièces d'adaptation imprimées en ABS, et d'estimer si un quelconque gain est possible avec une collimation par lentille.

Lorsqu'il est rempli de néon, CANOE affiche une légère scintillation visible à l'œil nu après au moins 10 minutes d'acclimatation. Cette luminescence peut être plus facilement décelable avec un appareil photo numérique.

La photographie Fig. 4.6 présente le dispositif le plus simple pour l'essai d'un compteur de photons uniques, consistant en un CANOE chargé en néon, une simple fibre optique et un

<sup>8.</sup> Analog-to-Digital Converter, ADC

<sup>9.</sup> Field Programmable Gate Array, ensemble de portes logiques programmables par logiciel

<sup>10.</sup> PHA, Pulse Height Analysis, comme effectué en gamma-spectroscopie, avec le micrologiciel fourni par Pavel Denim

<sup>11.</sup> Alliage renfermant environ 4% de cuivre, très utilisé dans l'industrie manufacturière

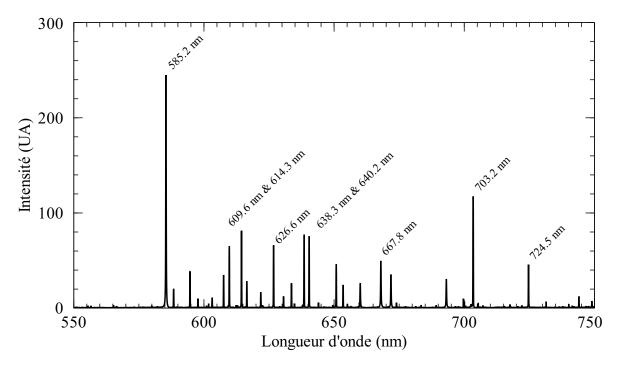


FIGURE 4.5 – Spectre d'émission d'un plasma de néon de deux atmosphères excité par des particules alphas issues du  $^{238}$ Pu. Des poses de 20 minutes et un réseau de diffraction de  $1200~\rm tr/mm$  permettent d'obtenir un spectre avec des raies résolues et identifiables. Seule la partie visible-proche-infrarouge est présentée car aucun signal n'est visible entre  $350~\rm nm$  et  $585~\rm nm$ .

compteur de photons uniques.

L'acquisition spectroscopique à travers une fibre optique est possible, mais nécessite un temps de pose très long, d'au moins 20 minutes avec une fibre de diamètre 200 µm, pour simplement identifier les raies d'émission de l'argon. En annexe B VI, on présente le montage expérimental d'un CANOE gonflé à l'argon, relié au spectromètre par une fibre optique, excité par le <sup>238</sup>Pu ainsi que le spectre lumineux obtenu.

Ces résultats laissent présager des temps de pose très longs lors d'expérimentations sur OR-PHÉE, vu le faible flux disponible et la petitesse de la surface de matière active.

# 4.3 Expériences sous flux de neutrons

Trois campagnes d'irradiation sur le réacteur ORPHÉE eurent lieu en avril, juin et octobre 2019, visant d'une part à valider la faisabilité d'un détecteur optique de neutrons et, d'autre part à évaluer des configurations de CANOE et des détecteurs de photons.

La première campagne de mesure dura 4 jours en Avril 2019, en présence de mon encadrant, d'un technicien et du directeur du laboratoire d'accueil. La réception des matières nucléaires se fit au préalable grâce aux équipes sur place. Le déballage, l'installation et la calibration du spectromètre dura plus d'une journée, à laquelle il fallait ajouter les autorisations réglementaires pour travailler en zone irradiante.

La première expérience visait l'enregistrement d'un signal lumineux, éventuellement décomposé par le spectromètre.

Lors de cette première irradiation seul le spectromètre et la caméra CCD étaient disponibles, et la puissance du signal émise par un dépôt de 750  $\mu$ g d'<sup>235</sup>U dans de l'argon à 1 atm nécessitait des temps de pose atteignant 10 h pour faire sortir des raies d'émissions du bruit (un rapport signal sur bruit égal à deux). Le transport du signal lumineux était assuré par un cordon de fibre optique industriel multimode à terminaison SMA RS-PRO 425-8584, composé d'un cœur en silice de 200  $\mu$ m de diamètre. Seule une maigre fraction des photons produits dans CANOE était transmise par la fibre et atteignait le spectromètre, 1 ppm selon nos calculs.

La seconde campagne de mesure sur ORPHÉE visait à l'acquisition de spectres d'émission de meilleurs qualité et l'évaluation de modules SiPM commerciaux. Pour cela, la pose d'une seconde fibre optique plus large, ainsi que l'essai d'un second capteur CANOE gonflé en ligne à l'argon, excité par du bore hautement enrichi déposé sur tube ayant une surface de 65 cm² eu lieu.

J'effectuais seul la seconde campagne d'irradiation durant une semaine, en Juin 2019. L'ensemble spectromètre étant disponible sur place, j'apportais en revanche les éléments de mon système de gonflage d'argon, des photo-détecteurs, des fibres optiques ainsi qu'un second CANOE et sa matière réactive. À nouveau, une journée était nécessaire pour ré-assembler le spectromètre et le calibrer.

Un schéma de mon système de remplissage-vidange des capteurs CANOE est présenté en annexe B XIII.

Les SiPM, refroidis dans un bain d'huile silicone à -40 °C étaient logés dans des sacs de congélation contenant du dessicant sous forme de billes de silice (solution d'urgence car le congélateur d'abord prévu pour l'expérience fut enlevé par un autre physicien). Les sacs étaient préalablement gonflés avec l'argon ultra-pur utilisé pour le remplissage des CANOE afin d'éviter la formation de givre sur les fenêtres des détecteurs. Des adaptateurs imprimés en ABS permet-

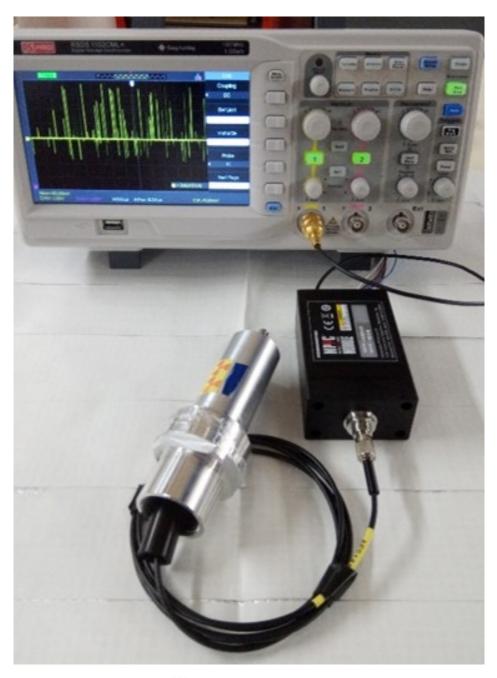


FIGURE 4.6 – CANOE chargé en <sup>238</sup>Pu et en néon pour des expériences hors flux. Une fibre optique EO-58-397 canalise les photons émis dans le gaz vers le module APD-Geiger Hamamatsu C13001-01. Le taux de comptage est d'environ 4700 cps pour 7 cps de signal d'obscurité.

taient de plaquer l'extrémité de la fibre optique contre la fenêtre des SiPM.

La dernière campagne de mesure sur le faisceau G3-2 a été préparée pour évaluer le suivi en direct d'un flux de neutrons et tester des systèmes d'acquisition rapides. Il était nécessaire d'optimiser la détection et la puissance du signal lumineux produit dans CANOE. Durant 4 jours, en présence de mon encadrant et du technicien de ORPHÉE, nous avons exploré les configurations permettant de maximiser le signal optique. La configuration retenue consistait en un chargement de 65 cm² de bore hautement enrichi sur dépôt fin, associé à la fibre de large diamètre (1 mm) et un remplissage en ligne au néon ultra-pur.

Les détecteurs utilisés furent le SiPM Ketek PM1125-WB non refroidis associé à un amplificateur double étage de ma fabrication, et le module SPAD Hamamatsu C13001-01 alimenté par une alimentation symétrique stabilisée de ma conception.

# 4.4 Résultats

Seuls les résultats issus de la troisième campagne de mesure ont été valorisés dans la **publication V**, vu les faibles rapports signal-sur-bruit enregistrés sur les spectres d'émission durant les deux premières irradiations. Je présente ici ces résultats préliminaires, peu valorisables dans des journaux mais traçant le cheminement de l'étude et la démarche associée.

## 4.4.1 Première irradiation sur ORPHÉE

L'analyse de spectres d'émission optique complet sur un capteur CANOE excité par 750  $\mu g$  d'<sup>235</sup>U dans de l'argon s'est révélée impossible devant la faiblesse du signal lumineux.

L'exploitation de l'ordre zéro de diffraction du réseau permit en revanche de vérifier la production de lumière dans CANOE dès que ce dernier était soumis à un flux de neutrons après ouverture de l'obturateur. Lorsque le faisceau de neutrons entrait dans la casemate, un signal se formait au centre du capteur CCD. Ce signal n'était pas visible si CANOE était placé en dehors du faisceau de neutrons, ou si une version sans uranium y était exposée, confirmant la présence d'une luminescence induite par les ions lourds seulement issus de la plaquette fissile. Malgré deux gaines en plastique, le cordon de fibre optique pouvait capter quelques photons provenant des puissants projecteurs LED installés dans le hall des guides. Pour assurer une étanchéité totale à la lumière ambiante, le cordon fut recouvert de film aluminium, placé dans un tube en PVC «IRO» <sup>12</sup>, lui même dissimulé par un rideau opaque.

Afin de vérifier que cette luminescence soit issue de l'argon excité et non d'une fluorescence de la fibre optique ou d'un reliquat de lumière parasite, une acquisition spectroscopique fut néanmoins tentée durant plusieurs heures, dans une zone spectrale où des raies d'émission de l'argon étaient attendues. L'image brute du spectre est visible en annexe B VIII.

Les raies à 750 nm et 763 nm de l'argon, parmi les plus intenses du spectre mesuré sur le PSEG sont détectables en sortie de CANOE dans le seul cas où il est exposé à des neutrons. La preuve de concept d'une luminescence du gaz dans la zone proche-infrarouge excité par des fragments de fission, adaptée à la mesure de flux de neutron fut atteinte mais souffrait d'un temps d'acquisition le rendant inexploitable en l'état.

<sup>12.</sup> Isolant Rigide Ordinaire, tubes gris servant d'ordinaire à protéger les câbles électriques domestiques

# 4.4.2 Seconde irradiation sur ORPHÉE

Les SiPM commerciaux évalués disposaient au mieux d'une efficacité de détection à 900 nm de 5 %. Le bruit noir des SiPM s'est vite montré problématique lors de leur évaluation sur un CANOE excité avec du <sup>238</sup>Pu, une solution de refroidissement apparaissait nécessaire pour permettre la détection de luminescence dans CANOE avec un bon rapport signal sur bruit. Malgré un refroidissement actif permettant de réduire significativement le bruit noir des SiPM comme présenté en annexe B IX, une fibre optique ayant une surface 25 fois supérieure à celle de l'expérience précédente, et un dépôt d'énergie environ 3 fois supérieur à la version excitée à l'uranium, il ne fut pas possible d'obtenir un signal exploitable sur les SiPM optimisés pour la gamme visible et proche infrarouge.

Il semblerait que la tension de polarisation du circuit de conversion analogique vers numérique de la carte Red Pitaya génère un signal parasite, dont la valeur moyenne évolue avec la température des composants. La largeur des impulsions (quelques nanosecondes) n'était également pas suffisante pour que les portes logiques du FPGA ne se déclenchent <sup>13</sup>. Si le signal sortant de l'amplificateur était effectivement acquis sur le convertisseur analogique numérique, de nombreuses valeurs autour du 130 ième intervalle seraient observées, correspondant à 8 mV analysés par un ADC de 14 bits. L'oscilloscope disponible sur place était capable d'enregistrements, ce qui aurait permis une analyse par post traitement, mais sa faible mémoire et bande passante (50 MHz, 20 MSa) le rendait inutile pour une telle expérience.

Des spectres d'émission avec un rapport signal sur bruit très nettement supérieur à ceux de la première campagne expérimentale furent obtenus grâce à un plus grand dépôt d'énergie par le tube de bore, et à l'utilisation d'une fibre de plus grand diamètre. Des poses successives ont permis l'identification de raies d'émission de l'argon. Ces images et l'application d'une correction en efficacité de l'ensemble spectromètre et caméra permet d'estimer le rapport d'intensité des raies, en négligeant la perte par absorption dans les fibres optiques. Les annexes B XI et B XII compilent ces images et spectres.

## 4.4.3 Troisième irradiation sur ORPHÉE

Afin d'outrepasser la problématique du bruit noir des SiPM induit par des milliers de photodétecteurs à avalanches connectés en parallèle, et le bruit d'obscurité particulièrement élevé des SiPM optimisés pour la gamme proche-infrarouge —2 MHz—, nous avons utilisé la photodiode à avalanche unique refroidie du SPAD Hamamatsu C13001-01 pour produire une détection immédiate et certaine du signal optique, comme détaillé Fig. 4.7.

L'utilisation du néon améliore substantiellement la capacité de détection des photons émis par CANOE par ce type de détecteur. En passant de 1% à 30% d'efficacité de détection, le SiPM gamme visible Ketek PM1125-WB fut cette fois parfaitement en mesure de produire un signal discriminable du bruit de fond, et ce à température ambiante.

Le tableau. 4.2 récapitule les essais menés lors de cette ultime campagne de mesure sur OR-PHÉE, ces résultats sont également commentés en détail dans la **publication V**. Afin de s'assurer de l'origine de la luminescence, différentes configurations ont été testées, en retirant le gaz, le dépôt de bore, mais aussi en produisant un champ gamma pur grâce à une plaque de carbure de bore obstruant le flux de neutrons froids.

<sup>13.</sup> Le Red Pitaya 125-14 est capable d'enregistrer 125 MSa/s

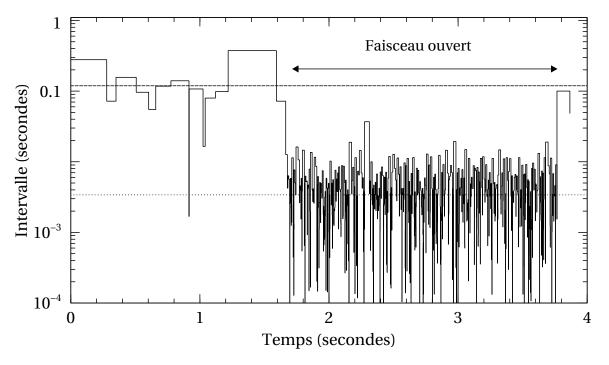


FIGURE 4.7 – Intervalle de temps entre chaque front montant du module de comptage de photon Hamamatsu C13001-01 positionné en sortie de CANOE rempli de néon à 2 atmosphères et excité par 65 cm<sup>2</sup> de <sup>10</sup>B. L'ouverture du faisceau de neutron est clairement visible, avec une réduction du délai entre chaque impulsion.

| Configuration | Condition    | Neutrons | Signal (cps) |
|---------------|--------------|----------|--------------|
| 1             | Bore-air     | oui      | 25           |
| 2             | Bore-air     | oui      | 102          |
| 3             | Neon seul    | oui      | 58           |
| 4             | Bore-neon    | non      | 25           |
| 5             | Bore-neon    | oui      | 1217         |
| 6             | Uranium-neon | non      | 19           |
| 7             | Uranium-neon | oui      | 66           |

Table 4.2 – Taux de comptage de l'APD C13001-01 en fonction des configurations d'irradiation. La fibre optique à coeur de PMMA de 980 µm de diamètre fut directement accolée au hublot en silice épais de 10 mm. Les configurations 3 et 5 montrent clairement que les interactions des ions lourds dans le gaz contribuent à la quasi totalité du signal.

# 4.5 Discussion

Un capteur de neutrons passif, en ligne, basé sur une émission optique en pile a été conçu, dessiné, réalisé et exploité dans un flux de neutrons froids issu du réacteur ORPHÉE. La preuve de la luminescence dans une zone spectrale proche-infrarouge des gaz rares excités

par des fragments de fission s'est révélée possible. Une analyse spectroscopique du signal lumineux conclu à une production de la lumière au sein du gaz rare uniquement lorsque des ions lourds y sont émis, lors d'une interaction neutron-bore par exemple.

L'essai de différentes technologies de détections optiques CCD, SiPM et APD-Geiger a mis en avant les cadres d'utilisation et les systèmes d'enregistrement à associer à chacune. L'utilisation du néon plutôt que l'argon comme gaz plasmagène dans des cas où le vieillissement des fibres optiques n'est pas à craindre s'est montré capital pour la viabilité d'une mesure en ligne à très bas flux, avec des détecteurs de photons ordinaires et une collecte de photons peu optimisée. Son spectre d'émission, décalé vers le bleu par rapport à celui de l'argon permet une meilleure détection par les détecteurs à substrat de silicium fins.

Des voies d'amélioration du rapport signal-sur-bruit sont possibles avec une assemblée optique permettant de focaliser sur une fibre optique un plus grand nombre de photons, augmentant ainsi la limite de détection du système.

L'utilisation d'une photodiode à avalanche surpolarisée en mode Geiger assure une détection d'un signal n'atteignant que la dizaine de femto-watt, dans le spectre rouge-infrarouge, elle est adaptée à la mesure des faibles flux.

La preuve de concept de luminescence indirectement induite par des neutrons à des fins de mesure en ligne atteinte, il reste cependant à prouver la linéarité de la réponse en fonction du flux. Pour cela, une simple source stationnaire de neutrons ne suffit plus, un flux capable d'une grande dynamique est nécessaire, ce que nous obtiendrons avec CABRI.

# 4.6 Publication



Contents lists available at ScienceDirect

# Nuclear Inst. and Methods in Physics Research, A

journal homepage: www.elsevier.com/locate/nima



# Design and irradiation test of an innovative optical ionization chamber technology



M. Lamotte\*, G. De Izarra, C. Jammes

CEA, DES, IRESNE, Instrumentation Sensors and Dosimetry Laboratory, Cadarache, F-13108 Saint-Paul-lez-Durance, France

#### ARTICLE INFO

Keywords: Fission chambers Radiation-hard detectors Gaseous detectors Gas scintillation

#### ABSTRACT

To provide future dependable neutron flux monitoring instrumentation for sodium-cooled fast reactors (SFR) of Generation-IV, French Alternative Energies and Atomic Energy Commission (CEA) is investigating the applicability of an innovative technology based on the optical signal produced within any type of ionization chambers such as fission chambers for instance. A mock-up of that innovative neutron detector was tested on a cold-neutron beamline at the ORPHEE nuclear facility. Experimental results regarding recovery time and detection efficiency showed promising possibilities for neutron instrumentation.

#### 1. Introduction

The French Alternative Energies and Atomic Energy Commission (CEA) proposes a new generation of neutron detector for neutron flux monitoring of a sodium-cooled fast reactor [1–5]. This innovative neutron detector is based on the luminescence of rare gases [6].

As in any ionization chambers, heavy ions with high ionization power are generated by a coating layer sensitive to neutrons. The slowing down of heavy ions in rare gas by inelastic collisions generates electrons with a continuous energy distribution ranging from rest up to several keV. The average kinetic energy of primary electrons, about 30 to 50 eV gives them a probability to bring gas atoms to excited states and produce further secondary electrons until recombinations, wall or thermal-equilibrium diffusion within the medium [7]. Spontaneous radiative decay of excited atoms rises emission of photons in the ultraviolet to far-infrared range [8,9]. The so-called radiation-induced-absorption (RIA) of silica optical fibers being minimal in the near-infrared spectrum [10], the transportation of the generated optical signal in the harsh environment of a nuclear power plant sounds

Compared to standard ionization chambers and proportional counters, the proposed optical version of neutron gaseous detectors allow for enhanced on-line self-diagnosis in terms of working pressure and gas composition [11], increasing the detector and nuclear reactor dependability thanks to better preventive maintenance capabilities. In addition, optical ionization chambers are neither affected by partial discharge effects at high temperature nor electromagnetic noise thanks to optical signal transmission.

This paper addresses the experimental validation of the CANOE mock-up of an optical ionization chamber in order to bring a proof

of concept of the newly proposed technology. It starts with the design of the CANOE mock-up. The measurement setup of the optical signal transmission and detection is then presented. At last, the experimental results obtained at the ORPHEE nuclear facility are reported and discussed.

## 2. Optical ionization chamber mock-ups

An optical fission chamber mock-up, named CANOE (CApteur de Neutrons à Optique Expérimentale), was designed and built at the French Alternative Energies and Atomic Energy Commission (CEA). The purpose of this mock-up is to perform preliminary experimental tests for the sake of technology development only. This way, at the present phase of our project, it is not defined to endure the harsh environment of an SFR.

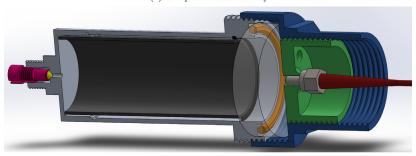
Its main component is an aluminum-alloy-based tube filled with a rare gas such as argon or neon. The neutron-to-heavy-ion conversion can be ensured by various possible neutron-sensitive materials such as  $^6\text{Li}$ ,  $^{10}\text{B}$ ,  $^{235}\text{U}$  or  $^{239}\text{Pu}$ . Each one coats the surface of either a 314L-stainless-steel disk of 15 mm diameter or a 1100 aluminum-alloy tube of 28 mm and about 70 mm long. Fig. 1 shows a computer-aided cutaway of a CANOE detector, the sensitive component of which is a boron-coated tube. Table 1 provides some information on the three different layers that we employed at the ORPHEE facility (Section 3.3) such as the heavy-ion energy deposition rate  $\Delta E$ .

The cylindrical chamber body is closed by a 10 mm-thick moltensilica window that is air-tightly sealed with the use of a standard silicon o'ring capable of standing up to a temperature of 200 °C. That window can be optionally coupled to a lens assembly in order to focus light on

E-mail address: maxime.lamotte@cea.fr (M. Lamotte).

<sup>\*</sup> Corresponding author.

#### (a) Computer-aided cutaway



### (b) Photography



Fig. 1. CANOE mock-up. of CANOE. The neutron sensitive layer is enriched a boron carbide, coupled with a 200 µm-diameter core silica fiber, with no use of focusing assembly.

Table 1 Various sensitive layers for CANOE mock-ups.  $E_0$  (MeV): initial kinetic energy of heavyions produced by spontaneous decay or neutron-induced reactions. Surface S: that of ion emission coating of mass M and thickness T.,  $\sigma$ : neutron-reaction cross-section at 3.5 meV for fission ( $^{235}$ U) and alpha particle ( $^{10}$ B) production.  $\Delta E$ : energy deposition rate within the gas for a neutron flux of 8E8 cm<sup>-2</sup> s<sup>-1</sup> if 50% of the ions reach the gas with an energy  $E_0$ . Being an alpha-particle emitter,  $^{238}$ PuO<sub>2</sub> played the role of a

| campration source, the energy deposition rate or which is that or alpha particless |                      |        |        |                      |       |            |  |
|------------------------------------------------------------------------------------|----------------------|--------|--------|----------------------|-------|------------|--|
| Material                                                                           | E <sub>0</sub> (MeV) | M (mg) | T (µm) | S (cm <sup>2</sup> ) | σ (b) | ΔE (MeV/s) |  |
| 235U <sub>3</sub> O <sub>8</sub>                                                   | 167                  | 0.75   | 0.51   | 1.76                 | 1627  | 1.75E8     |  |
| $^{10}B_4C$                                                                        | 2.31                 | 30     | 2.0    | 61.5                 | 10335 | 1.33E10    |  |
| $^{238}$ PuO $_2$                                                                  | 5.5                  | 1.8    | 0.88   | 1.76                 | NA    | 2.95E9     |  |

calibration source, the energy denosition rate of which is that of alpha particles

various optical fibers and light pipes thanks to adaptors made on our own using the so-called additive manufacturing process (3D printing). The gas filling is performed by means of a threaded titanium nipple pushing a soft-iron ball onto a conical groove.

In addition, a polished pure rhodium disk was placed at the other end, opposite to the window, so that it helps to reflect photons escaping in the unwanted direction.

## 3. Instrumentation and experimental setup

We seized the last opportunity to carry out a partial experimental validation of the CANOE mock-up at the ORPHEE nuclear facility before its closure at the end of the year 2019.

## 3.1. Selection of optical fibers

We had two available types of multi-mode optical fibers. The first one is a 20 m-long industrial-grade fiber ended by SMA connectors, and featuring a 200  $\mu$ m-diameter pure silica core and 0.2 Numerical

Aperture (NA). The second fiber type is composed of a 980  $\mu$ m-diameter core made of PMMA (polymethyl methacrylate), displaying a NA of 0.5, being able to be cut at wanted length (a 3.5 m-length was actually required). That plastic-made optical fiber, while being unfitted to high neutron fluences and temperatures of an SFR, exhibits neither scintillation nor radiation-induced-absorption in the gamma-particle field met on the cold-neutron beamlines of the ORPHEE facility. Its wider core diameter makes it possible to significantly increase the collected light intensity. As a result, that fiber was selected.

## 3.2. Multiple light sensor technologies

Two technologies of light sensors were assessed. Fig. 2 presents the experimental setup used for CANOE evaluation: silicon photomultipler (SiPM) and Geiger-mode avalanche photodiode (APD) were selected for their very good timing performance (recovery time of about a few tens of nanosecond) and high photon-to-electron conversion efficiency (above 15% at 600 nm). The available large active areas of SiPM allow for light detection from uncollimated light pipes, pulse height analysis and fast recovery time. However, they require a cooling system to reduce dark noise signals.

A Ketek evaluation board embedding a WB-1125 SiPM of  $1\times1~mm^2$  area was coupled to a low-noise high-frequency monolithic dual stage amplifier consisting of MAR-3 and MAR-4 chips enabling 12 and 8 dB amplification at 1 GHz, respectively. The SiPM sensor was polarized with an over-voltage of 3 V, at room temperature (22 °C) and kept in an aluminum case to prevent electromagnetic perturbation. The optical fiber was directly coupled through the air to the SiPM active area.

A Geiger-mode APD was a Peltier-cooled Hamamatsu C13001-01 module offering on-board temperature regulation, pulse discrimination, signal amplification and TTL output of 10-ns width. Discrimination threshold is manufacturer-fixed. The coupling to the APD sensor is

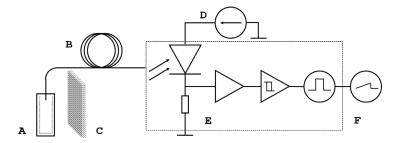


Fig. 2. Experimental setup for neutron sensitivity testing of CANOE mock-ups. A: CANOE, B: optical fiber, C: lead shield, D: fixed voltage power supply, E: SiPM or APD signal shaping board, F: oscilloscope.

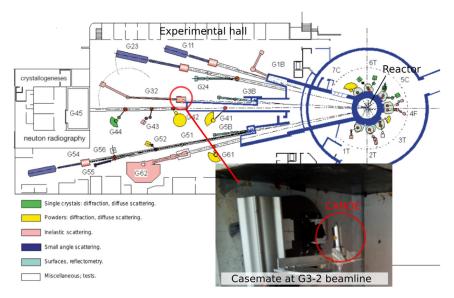


Fig. 3. Experimental setup at ORPHEE. The G3-2 cold neutron beamline of a  $25 \times 50$  mm<sup>2</sup> section provides a mono-directional flux as low as 8E8 n cm<sup>-2</sup> s<sup>-1</sup>.

Table 2 Main specifications of light sensors used with CANOE mock-ups. DN stands for Dark Noise (without fiber). r denotes the recovery time, T the substrate temperature and S its surface. PDE 1 and 2 are photon-detection efficiencies at 585 nm and 849 nm, respectively.

| Sensor       | DN (cps) | τ (ns) | T (°C) | S (mm <sup>2</sup> ) | PDE1 (%) | PDE2 (%) |
|--------------|----------|--------|--------|----------------------|----------|----------|
| SiPM WB-1125 | 65E3     | 30     | 22     | 1.00                 | 32       | 2.3      |
| APD C13001   | 17       | 10     | -20    | 1E-4                 | 20       | 2.1      |

ensured by a standard FC optical connector. Adaptors between the bare or SMA-terminated fibers and a CANOE mock-up were manufactured with a 3D printer. They were then wrapped with an aluminum ribbon for efficient light-tightness.

Table 2 sums up the most important specification of the employed light sensors at the ORPHEE facility.

#### 3.3. Setup at ORPHEE

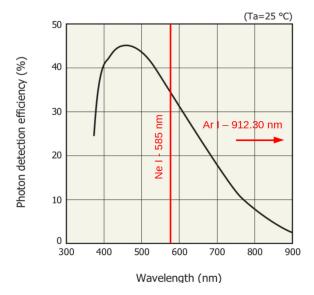
As shown in Fig. 3, the CANOE experimental test was performed on the G3-2 beamline of the ORPHEE facility dedicated to neutron diffusion and diffraction experiments. The neutron source is provided by a 14 MW highly enriched uranium-235 pool-type reactor in operation since 1980. The latter is equipped with 9 horizontal tubes, tangential to the core, allowing the use of 20 neutron beams. The common end of those tubes is located in the moderator near the core, where the flux

of thermalized neutrons is maximum. The G3-2 cold neutron beamline of a  $25 \times 50$  mm² section provides a mono-directional flux as low as 8E8 n cm² s⁻¹ with an average neutron energy of about 3.5 meV. A boron-coated pneumatic-driven shutter, also referred as to flipper, of about 20 cm high is able to stop the neutron beam within 100 ms. The light sensors are placed in a lead-shielded casemate [12,13]. Opening and closing that casemate is performed manually by pushing a sliding lead door, giving so an easy access and work-time efficiency.

Because of the low neutron flux available, we had to fill the CANOE mock-ups with high-purity neon. This way, the emission spectrum was shifted towards visible wavelengths. Unlike argon, neon at the same pressure enhanced the detection efficiency of the chosen light sensors as well. For instance, the APD detection efficiency was significantly improved from 2% at 912 nm with argon to 32% at 585 nm generated with neon (Fig. 4). Overall, a CANOE mock-up loaded with 1.8 mg <sup>238</sup>Pu, dedicated to calibration as already mentioned, permitted to obtain up to 4700 cps when filled with neon at 2 atm, whereas argon at the same pressure led to 72 cps only.

#### 4. Results and discussion

We started to estimate the dark noise signal of the two light sensors, namely the APD and SiPM ones, by performing an acquisition without CANOE or fibers. Their active area was covered with a thick fabrics and aluminum foils while counts were recorded over several minutes to reduce statistical uncertainties. A count rate ranging between 19 and



**Fig. 4.** Ratio of detected-to-impacting photons on the APD. Better detection efficiency with neutral neon (Ne I). The APD detection efficiency was significantly improved from 2% at 912 nm with argon to 32% at 585 nm generated with neon.

25 cps was obtained with APD, whereas SiPM generated 65,000 cps with a threshold set to 1 PE (photo-electron), the smallest pulse height achievable, to gather all other pulses of higher intensities both induced by dark-noise and useful signal.

The unavoidable ambient light at the irradiation location is likely to penetrate the general-purpose unsheathed optical fibers and come to bias the signal. In order to limit that bias, the fibers went through a PVC tube. CANOE was then placed for several minutes into the casemate without neutrons. As the pulse rate did not increase, the light-tightness of the experimental setup was checked.

To ensure light being produced in CANOE by heavy-ion interactions in a rare gas, several irradiations were performed with various configurations shown in Table 3. It came out that the boron-neon configuration is optimal as expected by the energy deposition of alpha-particles and lithium ions in the buffer gas under neutron irradiation. Indeed, when CANOE was filled with high purity neon at 2 atm, opening the neutron beam shutter noticeably increased the count rate from 25 to 1217 cps with APD. Configurations 3 and 5 clearly shows that the neutron-induced heavy ions contribute quite totally to the optical signal. Even though less significant, the count rate of the uranium-neon configuration was twofold larger under neutron irradiation. Regarding the SiPM sensor, Table 4 shows that even if the dark noise is rather high with 65E3 cps because of the temperature of the detector, the count rate was doubled during irradiation. Neutron signal-to-dark-noise ratio is only dependent of the temperature at constant flux and cooling the SIPM at -25 °C would decrease dark noise to 3E3 cps while the neutron signal would remain as high as 110E3 cps, increasing signal-to-noise ratio.

The APD signal variation when opening and closing the beam shutter was also recorded with an Agilent Technologies MSA9104A oscilloscope featuring a maximum sampling rate of 1 GHz. Due to memory limitation, a recording time window of 4 s was achievable to carry out such a test. A sampling rate of 125 MHz was sufficient. Fig. 5 shows the experimental output: one can clearly notice the neutron beam shutter maintained open for 1.8 s.

High-purity uranium fission fragments as source of heavy-ions displayed a similar trend, even if the overall signal strength was reduced compared to the tubular-boron excitation source due to smaller sensitive surface.

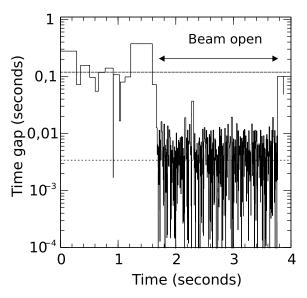


Fig. 5. Change in the time gap between logical pulses generated by the APD photon counting module. One can note that the larger the time gap is, the lower the counting rate is. The Geiger-mode APD was coupled to the CANOE mock-up comprising a boron-coated cylinder and 2 atm neon filling gas. The dashed line stands for the average time gap when the beam shutter is closed, whereas the dotted one does for the time gap average when the shutter is open leading to neutron irradiation.

**Table 3**Count rates obtained with APD for various configurations. The sensor was a Hamamatsu C13001-01 cooled Geiger mode APD. Optical fiber made of PMMA and 980 µm diameter was employed unfocused on the sensor and CANOE as well. Configurations 3 and 5 clearly shows that the neutron-induced heavy ions contribute quite totally to the optical signal.

| . 0           |              |          |              |
|---------------|--------------|----------|--------------|
| Configuration | Condition    | Neutrons | Signal (cps) |
| 1             | Boron-air    | No       | 25           |
| 2             | Boron-air    | Yes      | 102          |
| 3             | Neon only    | Yes      | 58           |
| 4             | Boron-neon   | No       | 25           |
| 5             | Boron-neon   | Yes      | 1217         |
| 6             | Uranium-neon | No       | 19           |
| 7             | Uranium-neon | Yes      | 66           |
|               |              |          |              |

Table 4 Count rates obtained on Ketek WB-1125 SiPM. Optical fiber made of PMMA and 980  $\mu$ m diameter was employed unfocused on both the light sensor and CANOE. The count rate of the case without neutrons is mostly accounted for by the dark noise effect that could have been significantly reduced by cooling the detector down to -25 °C.

| Count rate (cps) at 1 PE (cps) | Neutrons |
|--------------------------------|----------|
| 65E3                           | No       |
| 110E3                          | Yes      |

Finally, the low neutron fluence endured by the optical fibers induced negligible darkening effects: no difference in signal strength were observed between measurements over 3 days.

#### 5. Conclusion

The present paper presented preliminary results of optical fission chambers tested at the ORPHEE facility. Two technologies of fast-recovery-time and high-efficiency light detector were evaluated, namely a Geiger-mode cooled Avalanche Photodiode (APD) and Large-area Silicon Photomultiplier (SiPM). Signals from both sensors were strong enough to largely overtake dark counts and follow operation of a beam shutter of a neutron beamline featuring a weak flux.

Neon as filling gas of the CANOE optical ionization chamber appeared to be a valuable choice, given its high luminous output in both the visible and near-infrared spectrum. About 1217 counts per seconds were recorded on a cooled APD under a 8E8 n/cm²/s neutron flux, with a signal-to-noise ratio of 48. Even though complementary tests will have to be carried out, the present irradiation showed that CANOE and its appropriate light sensing technology was a promising instrumentation for neutron flux monitoring.

Optimization of light collection has to be performed for future application by means of flexible silica light pipes and optical assembly feeding a cooled light sensor. One will also have to harden both the chamber components and optical fiber to stand the harsh environment of a sodium-cooled fast reactor.

#### Declaration of competing interest

The authors declare that they have no known competing financial interests or personal relationships that could have appeared to influence the work reported in this paper.

#### CRediT authorship contribution statement

M. Lamotte: Conceived and designed the analysis, Collected the data, Contributed data or analysis tools, Performed the analysis, Wrote the paper. G. De Izarra: Conceived and designed the analysis, Collected the data, Contributed data or analysis tools, Performed the analysis, Wrote the paper. C. Jammes: Conceived and designed the analysis, Contributed data or analysis tools, Performed the analysis, Wrote the paper.

#### Acknowledgments

The authors are very thankful to the ORPHEE staff and more particularly to A. Menelle, F. Gibert for their general support and valuable advices, making the experiment possible.

#### References

[1] P. Filliatre, C. Jammes, B. Geslot, Stopping power of fission fragments of Cf-252 in argon: A comparison between experiments and simulation with the SRIM code, Nucl. Instrum. Methods Phys. Res. A 618 (1–3) (2010) 294–297, http://dx.doi.org/10.1016/i.nima.2010.02.270.

- [2] C. Jammes, P. Filliatre, B. Geslot, T. Domenech, S. Normand, Assessment of the high temperature fission chamber technology for the french fast reactor program, IEEE Trans. Nucl. Sci. 59 (4, 2) (2012) 1351–1359, http://dx.doi.org/10.1109/ TNS.2012.2205161, 2nd International Conference on Advancements in Nuclear Instrumentation, Measurement Methods and their Applications, Ghent, BELGIUM, JUN 06-09. 2011.
- [3] C. Jammes, N. Chapoutier, P. Filliatre, J.P. Jeannot, F. Jadot, D. Verrier, A.C. Scholer, B. Bernardin, Neutron flux monitoring system of the French GEN-IV SFR: Assessment of diverse solutions for in-vessel detector installation, Nucl. Eng. Des. 270 (2014) 273–282, http://dx.doi.org/10.1016/j.nucengdes.2013.12.057.
- [4] Z.S. Elter, C. Jammes, I. Pazsit, L. Pal, P. Filliatre, Performance investigation of the pulse and Campbelling modes of a fission chamber using a Poisson pulse train simulation code, Nucl. Instrum. Methods Phys. Res. A 774 (2015) 60–67, http://dx.doi.org/10.1016/j.nima.2014.11.065.
- [5] G. Galli, H. Hamrita, C. Jammes, M.J. Kirkpatrick, E. Odic, P. Dessante, P. Molinie, B. Cantonnet, J.C. Nappe, Characterization and localization of partial-discharge-induced pulses in fission chambers designed for sodium-cooled fast reactors, IEEE Trans. Nucl. Sci. 65 (9, 1) (2018) 2412–2420, http://dx.doi.org/10.1109/TNS.2018.2861566.
- [6] M. Lamotte, G. De Izarra, C. Jammes, Heavy-ions induced scintillation experiments, J. Instrum. 14 (09) (2019) C09024.
- [7] L. Koch, Étude de la Fluorescence des Gaz Rares Excités par des Particules Nucléaires. Utilisation Pour la Détection des Rayonnements Nucléaires (Ph.D. thesis), Université de Paris, 1959.
- [8] W.R. Bennett, Optical spectra excited in high pressure noble gases by alpha impact. Ann. Phys. 18 (2) (1962) 367–420.
- [9] A.A. Abramov, V.V. Gorbunov, S.P. Melnikov, A.Kh. Mukhamatullin, A. Pikulev, A.V. Sinitsyn, A.A. Sinyanskii, V.M. Tsvetkov, Luminescence of Nuclear-Induced Rare-Gas Plasmas in Near Infrared Spectral Range, Vol. 6263, 2005, http://dx. doi.org/10.1117/12.677457.
- [10] G. Cheymol, H. Long, J.-F. Villard, B. Brichard, High level gamma and neutron irradiation of silica optical fibers in CEA OSIRIS nuclear reactor, IEEE Trans. Nucl. Sci. 55 (4) (2008) 2252–2258.
- [11] M. Lamotte, G. de Izarra, C. Jammes, Development and first use of an experimental device for fission-induced spectrometry applied to neutron flux monitoring, Nucl. Instrum. Methods Phys. Res. A (2019) 163236.
- [12] V. Méot, O. Roig, B. Rossé, P. Morel, J.-M. Daugas, D. Doré, A. Letourneau, A. Menelle, Direct measurement of the inelastic neutron acceleration by 177mlu, in: EPJ Web Conf., Vol. 2, EDP Sciences, 2010, p. 05004.
- [13] E. Simon, P. Guimbal, Performance assessment of imaging plates for the JHR transfer neutron imaging system, in: EPJ Web Conf., Vol. 170, EDP Sciences, 2018, p. 04021.

# Bibliographie

- [1] L. L. Brillouin, Equipements expérimentaux, CEN Saclay, France (1987) 139.

  URL https://inis.iaea.org/collection/NCLCollectionStore/\_Public/20/023/
  20023321.pdf
- [2] A. Menelle, Upgrade of a curved multichannel neutron guide using supermirror coatings at the Laboratoire Léon Brillouin, Neutron News 6 (4) (1995) 10–13.
- [3] A. Menelle, Description des faisceaux blancs pour irradiation, Tech. rep., Laboratoire Léon Brillouin (2011).
   URL http://www-llb.cea.fr/fr-en/pdf/description-g3bis-g32-g5bis-V3.pdf
- [4] M. Bruce, M. Davis, Radiation effects on organic materials in nuclear plants. Final report,

Tech. rep., Georgia Inst. of Tech. (1981).

# Irradiations dans un réacteur de sûreté

Ce chapitre détaille les tests d'un CApteur de Neutrons à Optique Expérimentale (CANOE) lors des variations de flux neutroniques sur plusieurs décades dans la piscine du réacteur de recherche CABRI. Les moyens techniques et logiciels mis en œuvre ainsi les résultats de ces expériences sont présentés. La préparation en amont de l'expérience comprenant notamment la mise au point d'un système d'acquisition du signal lumineux est détaillé.

# 5.1 Opportunités

L'irradiation de deux CANOE, chargés en bore et en uranium hautement enrichi dans les faisceaux froids du réacteur ORPHÉE a mis en avant la faisabilité d'un système de détection neutronique passif, basé sur un signal optique.

La preuve de la linérarité de la réponse du capteur en fonction du flux de neutrons incident est déterminante pour une application future. Le réacteur d'essais à grande dynamique CA-BRI nous permet ici de vérifier la linéarité de la réponse de CANOE dans un champ mixte neutrons/gammas s'approchant davantage d'un réacteur nucléaire électrogène.

# 5.2 Dispositifs et instrumentation

## 5.2.1 Réacteur de sûreté CABRI

L'INB 26 comprend le réacteur de recherche CABRI, exploité par le CEA et utilisé par l'IRSN. Ce réacteur piscine d'une puissance stationnaire maximale de 25 MW est capable de réaliser des pics de puissance de grande ampleur, jusqu'à 21.6 GW, et de faible durée, de l'ordre de la dizaine de millisecondes. Le cœur nourricier en Uranium Faiblement Enrichi (LEU)<sup>1</sup>, bardé d'un réflecteur graphite peut être démarré et stabilisé à 100 kW en présence d'un circuit d'<sup>3</sup>He, fortement neutrophage<sup>2</sup>. La dépressurisation rapide des boucles d'<sup>3</sup>He provoque une

<sup>1.</sup> Enrichissement maximal de 20 %, inutilisable pour une application militaire.

<sup>2.</sup> L'<sup>3</sup>He possède une forte section efficace d'absorption des neutrons sans résonance, environ 5321 b.

augmentation massive de la réactivité -+4\$- et de la puissance du cœur, qui est alors soumis à une contre-réaction due à l'effet Doppler du combustible [1]. Le déclenchement des arrêts de sécurité au moyen de barres de contrôles mettent fin à la divergence du réacteur qui peut alors effectuer un autre tir, ou se maintenir à puissance constante.

Des segments de crayons de combustibles testés en conditions REP <sup>4</sup> dans la Boucle à Eau Pressurisé (BEP), au milieu du cœur nourricier de CABRI, sont scrutés pendant et après le transitoire de puissance par analyse non destructrice. Un «hodoscope», ensemble de 153 guides de neutrons regardant le crayon combustible instrumenté, traverse de part et d'autre le caisson du cœur nourricier afin de mesurer le flux de neutrons de fission produit par le crayon d'essai. Un emplacement près de l'hodoscope, dans la cuve du réacteur peut accueillir exceptionnellement des matériaux ou systèmes de mesure à irradier, au sein d'un Assemblage Postiche Instrumenté CABRI (APIC). Cet APIC correspond aux «boîtes à eau» utilisées sur les réacteurs de recherche classiques, formant un parallélépipède de 8.6 cm par 8.6 cm haut de 1208 cm. On peut y loger au moins 3 CANOE, plaqués contre un support millimétré.

L'emplacement retenu, à côté de l'hodoscope et contre le bloc cœur, offre un débit de fluence de  $1.38\text{E}+12~\text{n.cm}^{-2}.\text{s}^{-1}$ , thermalisé  $^5$  à 90 % et un débit de dose gamma atteignant 350 Gy/h à une puissance réacteur de 1 MWth.

La Fig. 5.1 présente une vue schématique de la cuve de CABRI avec l'emplacement de ses 7 chaînes de mesures expérimentales, ainsi que celui de nos irradiations.

Toutes les chambres à ionisation de CABRI sont à dépôt de bore et fonctionnent en mode courant, elles sont placées derrière un écran de plomb épais de 14.8 cm, loin du cœur, afin de limiter la contribution gamma sur le signal. 5 chambres suivent le transitoire de puissance avec chacune une plage de fonctionnement étagée en fonction de la distance au cœur. Elles ne sont pas capables de suivre la divergence de la pile mais produisent un signal dès 10 kW.

Deux autres chambres d'ionisation, HN1 et HN2 suivent la puissance du réacteur de sa divergence vers sa puissance stationnaire maximale [2]. Elles servent aux systèmes de sécurité et ont une période d'échantillonnage trop grande pour détecter le pic de puissance. Les caractéristiques de toutes les chaînes de mesures sont notées dans le tableau. 5.1.

La conception et le mode de fonctionnement de CABRI empêchent une présence humaine

| Chambre d'ionisation              | H1 | H2                  | G21 | G22            | G311 | G312             | G34 |
|-----------------------------------|----|---------------------|-----|----------------|------|------------------|-----|
| Puissance minimale détectée 0.2 W |    | 10 kW               |     | 10 MW   100 MW |      |                  |     |
| Puissance de saturation           |    | >P <sub>trans</sub> |     | MW             | >    | ${ m P_{trans}}$ |     |
| Temps d'échantillonnage           |    | 1 s                 |     | 250 µs         |      |                  |     |

Table 5.1 – Caractéristiques des chaînes de mesure neutronique servant au pilotage et au suivi du transitoire de puissance du réacteur CABRI.

dans le bâtiment réacteur lors de sa divergence. Une fois que CANOE est installé dans la piscine et l'électronique mise en marche, il n'est plus possible de modifier les paramètres de l'expérience jusqu'à la fin de la campagne d'irradiation —à raison de deux campagnes par

<sup>3.</sup> L'agitation thermique des atomes du combustible élargit ses raies de résonance d'absorption, augmentant ainsi la capture stérile de neutrons.

<sup>4.</sup>  $280^{\circ}$ C, 155 bar, vitesse de l'eau autour du crayon d'essai de  $4~\mathrm{m/s}$ 

 $<sup>5.\,</sup>$ énergie correspondant à la vitesse la plus probable à  $290~\mathrm{K}$ selon la distribution de Maxwell-Boltzmann

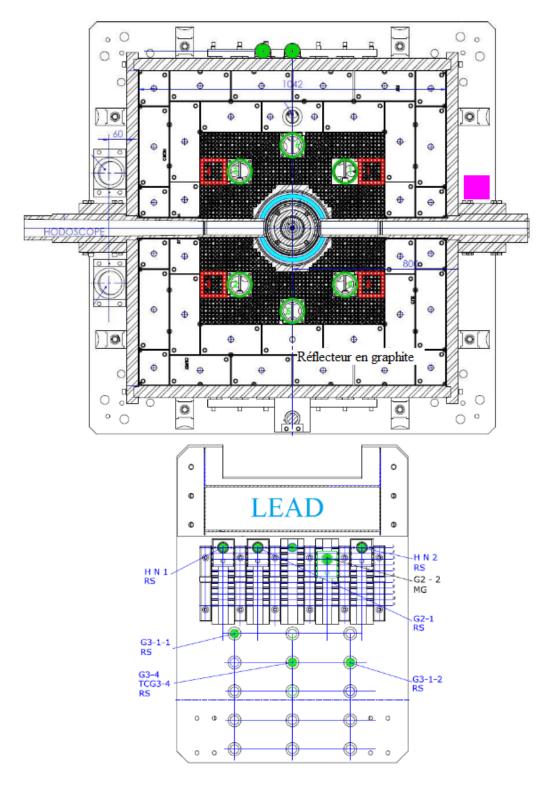


FIGURE 5.1 – Vue de la cuve de CABRI. L'emplacement de nos irradiations est marqué par un carré magenta. Les 5 chaînes de mesure du transitoire de puissance sont marquées par les lettres G. Les 2 chaînes de mesure servant au pilotage à puissance stationnaire sont marquées par un H. Les tubes verts correspondent aux barres de contrôle tandis que les tubes d<sup>3</sup>He sous pression sont représentés en rouge.

an, en moyenne. Le pilotage de l'instrumentation s'effectue dans la salle de mesure, située 500 mètres plus loin, au moyen d'une liaison réseau.

# 5.2.2 CANOE et capteur optique

Le CANOE issu des essais sur ORPHÉE présente une très bonne étanchéité : aucune fuite ne fut décelée après 120 heures d'irradiations puis 9 mois de stockage. Il a été tiré au vide puis gonflé sous 2 atm de néon. L'excitation est à nouveau générée par de l'uranium afin d'assurer une meilleure discrimination des rayons gamma. La fibre optique sélectionnée est la Thorlabs FG200LEA en silice pure à cœur de silice dopée au fluor et non gainée, large de 200 µm présentant une très faible absorption sur les 20 mètres nécessaires. Après simulation sur notre code d'estimation de collecte des photons, on évalue qu'un ppm des photons produits seront canalisés vers un détecteur photo-sensible. Cette proportion constituant la plus faible de l'ensemble de notre étude, un compteur de photons particulièrement sensible est donc requis si l'on souhaite observer une émission de lumière à faible puissance réacteur.

Le SPAD Hamamatsu C13001-01 est le capteur optique affichant la meilleure détectivité de notre inventaire, il a su démontrer sa haute sensibilité lors des essais à ORPHÉE, il est donc préférablement employé pour les phases de divergence. Sa plage de linéarité étant limitée à 6 décades, un second photo-détecteur disposant d'une gamme étendue est nécessaire lors des excursions de puissance de CABRI.

# 5.2.3 Système d'acquisition à grande dynamique

Avant toute irradiation, le développement d'une instrumentation dédiée est indispensable vu le retour d'expérience obtenu à ORPHÉE : un suivi du signal sur oscilloscope s'avère difficile, même avec un compteur à seuil.

Un système électronique de grande dynamique, MONTLUCON a été développé dans le cadre de cette campagne expérimentale, nous détaillons ici les principales caractéristiques.

«MONLUÇON» : MONitoring LUminescent Conversion Of Neutrons consiste en un système d'acquisition du signal photon n'exploitant que le courant moyen et l'intégration d'impulsions produits par des photo-détecteurs dans un but de simplicité, faible coût et grande dynamique de mesure.

L'exploitation des trois modes de mesure d'un SiPM autoriserait une dynamique d'environ 10 décades, avec une partie «logique» (comptage) et une courte partie «analogique» (courant). Afin d'exploiter la partie numérique des SiPM sans avoir à recourir à des systèmes de comptage-discrimination complexes, nous optons pour une intégration périodique variable de son signal, pouvant être composée d'impulsions distinctes, d'un courant variable, ou des deux. L'intégration analogique du signal discret SiPM par montage SIA —Switched Integrator Amplifier— offre les avantages suivants :

- Élimination d'une composante alternative parasite
- Pas de temps limite entre chaque front montant
- Aucune mise en forme du signal nécessaire (préampli de charge, shaper...)
- Réglage en ligne et sans composants du gain (temps d'intégration)

Le composant sélectionné, IVC102, présente un courant de polarisation de 750 fA, ce qui autorise une interface directe avec une photodiode ( $I_d = 100 \text{ pA}$ ) ou un SiPM ( $I_d = 1.5 \text{ \mu A}$ ) avec un bloc de gain. Un microcontroleur Raspberry Pi 4 gère la période de rafraichissement et

enregistre les mesures, grâce à une carte audio faisant office de convertisseur analogique-digital 24 bits à 192 kHz ou 16 bits à 192 kHz.

Un logiciel de pilotage de l'intégrateur a été écrit en langage Python, avec une interface en QT-5, il est présenté en annexe C V et C VI. Une broche multi-usage «GPIO» utilisée comme entrée du microcontrôleur Raspberry Pi désactive la charge de l'intégrateur si la tension de sortie risque d'endommager la carte audio (seuil à 3.3 V).

La collecte de photons par une multitude de fibres optiques n'ayant pas d'effet sur le signal généré dans le capteur CANOE —pas de retard—, on propose d'utiliser au moins deux fibres optiques en regard de CANOE, chacune partant vers un des photo-détecteurs. Un recouvrement des signaux des deux technologies doit pouvoir s'effectuer sur au moins une décade pour assurer la linéarité de la réponse du système de mesure.

Une photodiode PIN classique en mode photovoltaïque est elle dédiée à la mesure de transitoire de puissance, grâce à une linéarité dépassant 99 % sur jusqu'à 10 décades. Parce que la lecture d'une tension sur 10 décade n'est pas envisageable, la compression du signal par utilisation d'une fonction logarithme se révèle judicieuse. Le composant choisi, le LOG114 produit par Texas Instrument génère une tension dont la valeur est un multiple du logarithme du ratio entre une intensité fixe (règlée par l'utilisateur) et le courant d'un photo-détecteur. Capable d'une linéarité sur 9.5 décades et présentant un courant de polarisation très bas, il est idéal pour le suivi d'un transitoire de puissance.

Une version minimaliste de MONTLUCON, embarquant un SiPM RB-10035 —faute de disponibilité d'une APD-Geiger— et une photodiode Hamamatsu S-5973 a été construite pour évaluer la qualité d'une conversion analogique vers digital basé sur une carte audio grand public. Le synoptique du système MONTLUCON produit est présentée sur la Fig. 5.2.

<sup>6.</sup> Une modification matérielle a été nécessaire pour autoriser la numérisation de signaux DC. La bande passante à -3dB est de 0 à  $17~\mathrm{kHz}$ .

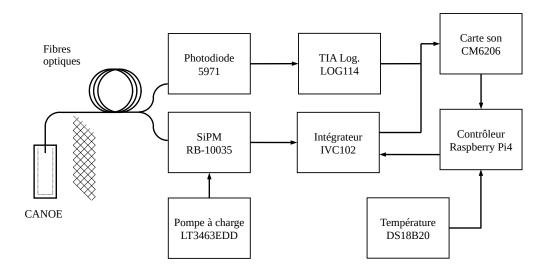


FIGURE 5.2 – Synoptique du système MONLUCON évalué pour un suivi de transitoire de puissance.

Une source de tension de précision type Keithley 6220 permet de calibrer la réponse de notre amplificateur logarithmique, en simulant le courant issu de la photodiode entre  $100~\mathrm{fA}$  et  $10~\mathrm{mA}$ , comme présenté Fig. 5.3:

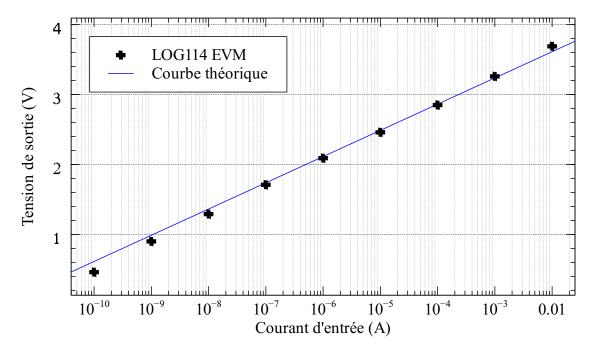


FIGURE 5.3 – Courbes théoriques et expérimentales de la réponse de l'amplificateur logarithmique basé sur une puce LOG114. La compression du courant issu, par exemple, d'une photodiode avec une fonction logarithmique permet d'interfacer simplement le mode courant d'un photodétecteur vers des convertisseurs analogiques standards.

L'excellente linéarité de l'amplificateur logarithmique sur 8 décades, au delà des spécifications du constructeur, associée à une linéarité de photocourant atteignant 9 décades sur la photodiode VTB1013BH ou S-5173 laisse envisager l'acquisition de l'intégralité d'un transitoire de puissance avec un seul détecteur et circuit de conditionnement.

La tension de sortie de l'amplificateur logarithmique oscille entre  $0.47~\rm V$  et  $3.00~\rm V$ , ce qui couvre la quasi totalité de la bande passante de la carte audio :  $0-3.3~\rm V$ . Une profondeur de  $16~\rm bits$  assure ainsi un pas de quantification de  $50~\rm \mu V$ .

Le module SPAD Hamamatsu C1300-01 utilisé pendant les essais en réacteur est connecté indépendamment à une fibre optique regardant l'intérieur de CANOE. Destiné au suivi de la divergence du réacteur (puissances faibles), il assure une redondance des mesures au palier de 100 kW.

# 5.3 Expériences menées sur CABRI

L'expérimentation s'inscrit dans une campagne de caractérisation comprenant 4 paliers de puissance, et 3 tirs de transitoires. La divergence du cœur étant particulièrement suivie par pas moins de 5 chaines de mesure utilisant des technologies différentes, ce moment paraissait opportun pour valider la linéarité de la réponse de capteurs type CANOE sur quelques ordres de grandeur.

CANOE fut simplement fixé en bas de l'APIC par du ruban adhésif, en regard de la pile atomique. Trois fibres optiques furent groupées autour d'une fibre plastique de grand dia-

mètre servant de tire-câble et de fusible mécanique. L'ensemble de 4 fibres fut introduit dans 20 mètres de gaine thermorétractable opaque, elle même passée dans un tuyau plastique souple assurant l'étanchéité du dispositif plongé en piscine. La Fig. 5.4 montre la mise en place de CANOE dans la boite à eau APIC.

Un adaptateur imprimé en 3D plaque l'extrémité d'une des 3 fibres de silice sur le SPAD Hamamatsu C13001-01, seul détecteur de photon alors disponible au moment de l'utilisation du réacteur.

D'autres fibres optiques, commandées mais non reçues à temps étaient prévues car elles offraient des caractéristiques intéressantes, également listées dans le tableau. 4.1.

L'acquisition de données se fit sur un oscilloscope Textronic MSA9104A disposant d'une mémoire de un milliard de points. Une acquisition à 125 MHz autorisait un enregistrement de 4 secondes, déclenché de manière manuelle depuis la salle de mesure. En parallèle, une carte de développement Red Pitaya comportant un convertisseur analogique-numérique 14 bits à 125 MSa/s scrutait le même signal que l'oscilloscope, réparti par un té. Un code développé en Verilog et en C, téléversé dans la carte Red Pitaya comptait durant un intervalle variable le nombre de fronts montants issus du détecteur de photons. Le code source est présenté en annexe C IV.

Mis à part le temps d'échantillonnage et le seuil de comptage de la carte Red Pitaya, aucun paramètre n'était modifiable à distance durant les expériences. Les divers composants électroniques nécessaires à la réalisation de MONLUÇON ne furent pas reçus avant la date de l'expérience, et seul le détecteur de photons SPAD C1300-01 fut donc installé.

## 5.4 Résultats

Avant chaque excursion de puissance, le démarrage préalable de la pile atomique vers un palier de 100 kW en quelques dizaines de secondes permet de juger appréciablement la limite de détection de notre système en terme de puissance de réacteur, et donc de flux de neutrons incident.

La très forte réactivité ajoutée lors des impulsions transitoires permet elle d'estimer la vitesse et la dynamique de mesure de l'ensemble de notre chaîne d'acquisition.

# 5.4.1 Mesures de divergences de CABRI

Lors de la mise en place de CANOE dans la piscine du réacteur, un défaut d'étanchéité à la lumière de l'ensemble de fibres, probablement du à un mauvais raccord sur l'une des soudures de la gaine thermorétractable mena à augmenter le taux de comptage à l'obscurité de 7 cps à 104 cps.

Cette augmentation du bruit de mesure limite la sensibilité du détecteur pour les faibles puissances (0 à 10 kW). Les courbes de divergences obtenues avec CANOE sont représentées sur la Fig. 5.5, elles suivent strictement celles issues des 2 chaines de mesures utiles au pilotage, entre 3 kW et 100 kW, sans correction du signal d'obscurité. Le point de rencontre des deux courbes, à 3 kW correspond au moment où la puissance lumineuse générée par CANOE dépasse la puissance lumineuse parasite issue du défaut d'étanchéité. Si celle-ci avait été parfaite, une puissance de CABRI de 500 W, en périphérie du cœur aurait alors été mesurable sans correction du bruit d'obscurité.

On remarque un plus grand écart type du signal de CANOE au palier de 100 kW du fait de la différence des taux de comptage entre HN1/HN2 et CANOE à fenêtre de mesure constante,



FIGURE 5.4 – Mise en place de CANOE excité par 750 µg d'^2 U et gonflé par 2 atm de néon dans la boîte à eau APIC du réacteur CABRI

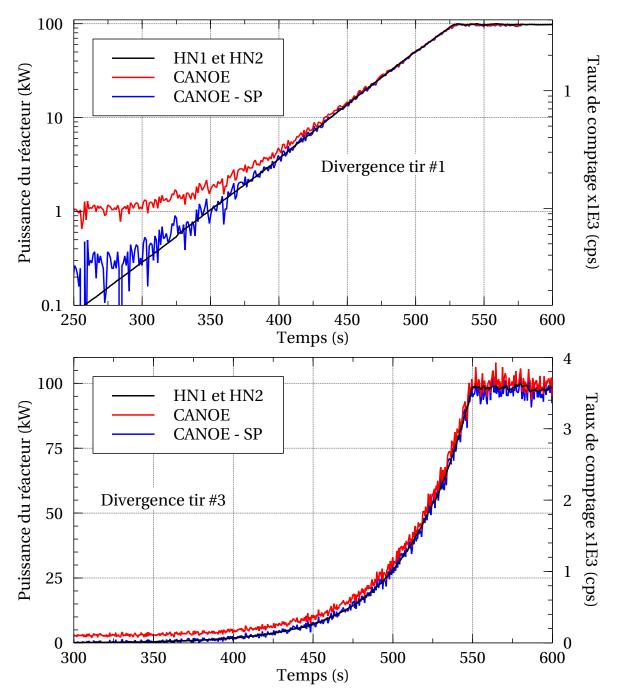


FIGURE 5.5 – Divergences du réacteur CABRI avant le troisième tir, vues par les détecteurs HN1 et HN2 utiles au pilotage, et par CANOE situé dans la boîte à eau, près du cœur. Haut : échantillonnage de 1 ms ré-échantillonné à 1 seconde pour réduire l'incertitude sur le comptage de CANOE. SP : correction du Signal Parasite. L'axe de la puissance en logarithme permet d'apprécier la linéarité du signal.

Bas : signal brut de CANOE échantillonné à 400 ms lors de la troisième divergence.

et d'une différence du mode de mesure. Les chaînes de mesure de l'exploitant reposent sur des chambres à dépôt de bore compensées, utilisées en mode courant, alors que notre CANOE est exploité en mode comptage. La flexibilité de la carte Red Pitaya et son code embarqué permet d'abaisser l'échantillonnage au palier de 100 kW, un taux de comptage de 3600 cps est alors relevé.

L'expérience, réitérée 4 fois, produit une courbe superposable sur celle de la chaine neutronique de l'exploitant : la puissance lumineuse issue d'une chambre à fission optique semble évoluer de pair avec le flux de neutrons incident.

# 5.4.2 Tirs de pics de puissance de CABRI

Le dispositif CANOE présent en pile lors des essais de démarrage du réacteur a pu être irradié lors de tirs de démarrage dits «startups» afin de vérifier le bon fonctionnement des organes de mesure avant un tir d'essais. La présence de l'APIC dans la cuve de CABRI lors d'un transitoire de puissance était alors inédit, et ces 3 tirs ont également prouvé la non-perturbation de la puissance injectée dans le crayon expérimental par la boîte à eau.

Le tableau. 5.2 récapitule les 3 tirs suivis par CANOE. Les traces des impulsions, dites «tran-

| Tir | Pression 3He (atm) | Puissance (GW) | LMH (ms) | Énergie (J) |
|-----|--------------------|----------------|----------|-------------|
| 1   | 7                  | 13.6           | 10.5     | 177         |
| 2   | 11.3               | 21.6           | 8.95     | 237         |
| 3   | 9                  | 18             | 9.37     | 208         |

Table 5.2 – Caractéristiques des transitoires de puissances effectués lors des essais « startup » monitoré par CANOE après les divergences vues plus haut. LMH : Largeur à Mi-Hauteur.

sitoires de puissances» furent calées au palier de puissance post-transitoire, avant chute des barres de contrôle soit environ 50 MW, afin de faire correspondre le taux de comptage de CANOE. La grande incertitude de la mesure de CANOE à faible puissance est due à un échantillonnage très fin —environ 1 ms— ne permettant d'accumuler que quelques coups dans la fenêtre de comptage. La perte de la superposition des traces autour 50 MW correspond à un signal TTL de 2E+6 cps, ce qui est cohérent avec la valeur estimée sur la courbe de réponse du SPAD en annexe B V. La saturation du signal, qui intervient à 1.6 GW n'est pas due à un manque de dynamique de CANOE, mais bien au temps mort du SPAD affichant un taux de comptage de 3.74E+7 cps.

Bien qu'une analyse numérique puisse corriger dans une certaine mesure le temps mort du au recouvrement des impulsions carré TTL générées par le C13001-01, cet instrument n'est pas conçu pour une aussi grande plage de mesure mais a prouvé sa très bonne tenue dans des cas d'utilisation en dehors de ceux préconisés par le constructeur. Le recours à une fibre optique de moins grand diamètre ou d'un filtre obscurcissant aurait permis d'observer la totalité du pic, au prix d'un aveuglement lors du démarrage du réacteur.

La réponse de CANOE et de son capteur SPAD associé est encore ici très satisfaisante, puisque dans la zone de linéarité du SPAD, les courbes du flux neutronique du pic de puissance fournies par l'exploitant, et celle mesurée par nos soins se superposent remarquablement sur 5 décades de puissance.

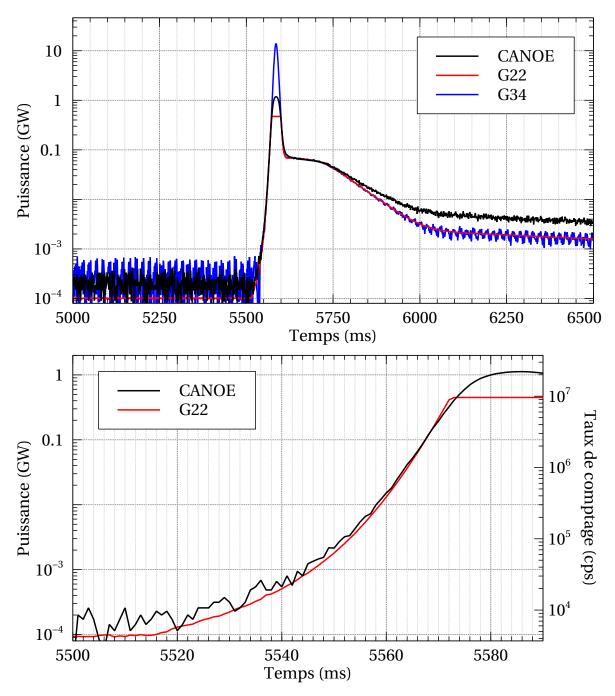


FIGURE 5.6 – Haut : Réponse de CANOE à proximité du coeur et de deux chambres à dépôt de bore situées derrière une protection de plomb durant le second transitoire de puissance. Le taux de comptage est donné pour le seul CANOE.

Bas : Détail de la réponse de la chambre à dépôt de bore G22 et de CANOE associé au SPAD Hamamatsu C13001-01 lors du transitoire de puissance numéro 1. On note une déviation de la linéarité de la réponse dès 2E+6 cps en sortie et une saturation à 3.74E+7 cps. La chambre G22 sature à 465 MW.

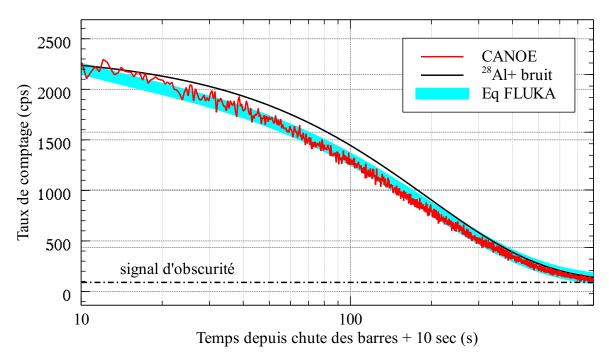


FIGURE 5.7 – Taux de comptage mesuré dans CANOE, dix secondes après le troisième transitoire de puissance de CABRI. On note une décroissance rapide du signal ayant pour contribution majeure l'<sup>28</sup>Al, la courbe de décroissance a pour valeur initiale celle de CANOE.

Après les transitoires de puissance, un signal «résiduel» continue d'être émis malgré la chute des barres de contrôle. Il semblerait que la très forte masse d'aluminium de CANOE —environ 120 g—, ainsi que les structures de la boîte à eau et du caisson réacteur, en aluminium avec des lests de plomb de qualité standard, produisent un fort champ gamma qui excite le gaz tampon. Ce phénomène n'est pas visible sur les courbes de l'exploitant car les détecteurs ne sont pas situés en cœur, mais au loin, à la limite de la cuve et protégés par une épaisse couche de plomb. La fluence reçue par ces capteurs étant moindre, peu d'activation est à attendre. Un détail du signal fantôme résultant est visible Fig. 5.7. Une courbe de décroissance de l'<sup>28</sup>Al additionnée d'un signal d'obscurité de 104 cps est proposée en référence, comme la possible source de signal.

On ajoutera que la géométrie de ce CANOE, optimisé pour un usinage rapide et une polyvalence de remplissage, favorise l'émergence d'un signal bêta et gamma, qui peut néanmoins être discriminé par analyse de hauteur d'impulsion.

# 5.5 Analyse du signal résiduel

Une simulation de la dynamique de production, de destruction et de décroissance des produits de fission dans un dépôt d'uranium est réalisée avec le code Fluka version 2020.0.3 [3] [4] produit par le CERN et l'INFN.

Fluka possède une interface graphique sous Linux dénommée FLAIR, permettant de créer les géométries, les visualiser, et mettre en forme les résultats [5].

On propose d'étudier le dépôt d'énergie dans le gaz de CANOE durant et après un transitoire de puissance afin d'étudier l'origine du signal fantôme.

L'étude complète et la validation du modèle Fluka, est présentée en détail dans l'annexe C I. Une modification du code source de Fluka a été nécessaire pour représenter un spectre neutronique étendu comme vu par notre détecteur CANOE placé dans CABRI. Le spectre simulé est visible sur la Fig. 5.8. On rapporte ici les principales valeurs et tendances d'intérêt pour une analyse du signal résiduel observé après les pics de puissance.

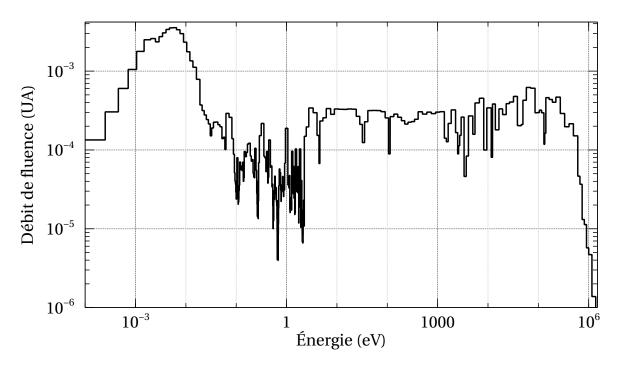


FIGURE 5.8 - Spectre neutronique théorique au centre de l'emplacement d'irradiation

On note une contribution importante de l'aluminium dans le cas où le dépôt est retiré, avec une raie gamma typique à 1779 keV.

Malgré une très forte masse d'aluminium due à un corps épais, la majorité de l'énergie déposée dans le gaz après un transitoire de puissance provient des particules bêta émises par le dépôt épais de 0.5 µm ne pesant que 750 µg. L'évolution de l'énergie déposée dans le gaz avec et sans dépôt suite à un transitoire de 21.6 GW est visible sur la Fig. 5.9.

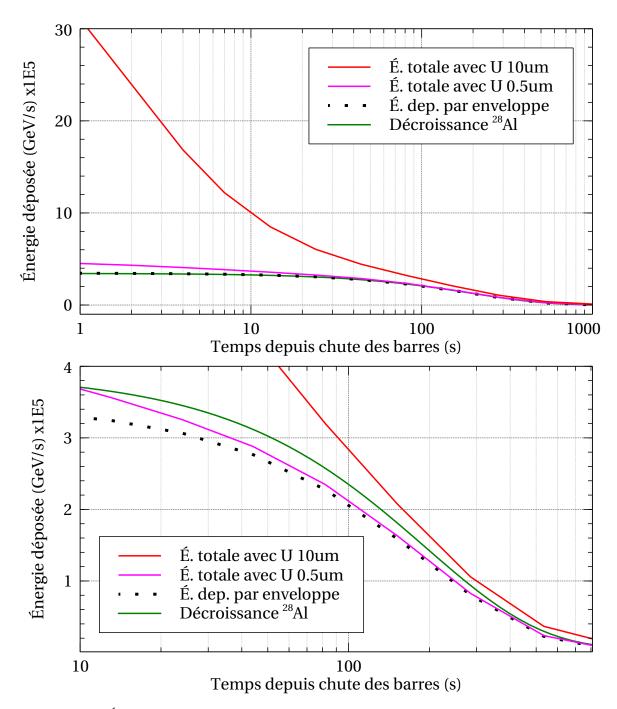


FIGURE 5.9 – Énergie déposée dans le gaz de CANOE après un transitoire de puissance de 21.6 GW par les décroissances des produits de fission de deux dépôts d'épaisseur variable, et d'un corps de CANOE. Un agrandissement est proposé (bas) pour identifier la diminution nette de la contribution d'un dépôt fin et épais dans la dynamique de décroissance. Le fit d'une courbe de décroissance radioactive de l'aluminium sert de référence pour l'expérimentation.

Ce signal, constitué des contributions de l'ensemble des produits de fission et des kermas <sup>7</sup>

<sup>7.</sup> Somme des energies cinétiques initiales des particules chargées (électrons) générées par des particules

de chacun de leurs raies d'émission s'efface au bout de quelques minutes pour prendre l'allure d'une loi de décroissance radioactive classique. La masse fissile semble être un paramètre déterminant et bridant pour le suivi de transitoire de puissance : la décroissance bêta induit un signal résiduel décelable.

neutres (gamma, neutron), divisée par la masse de l'échantillon.

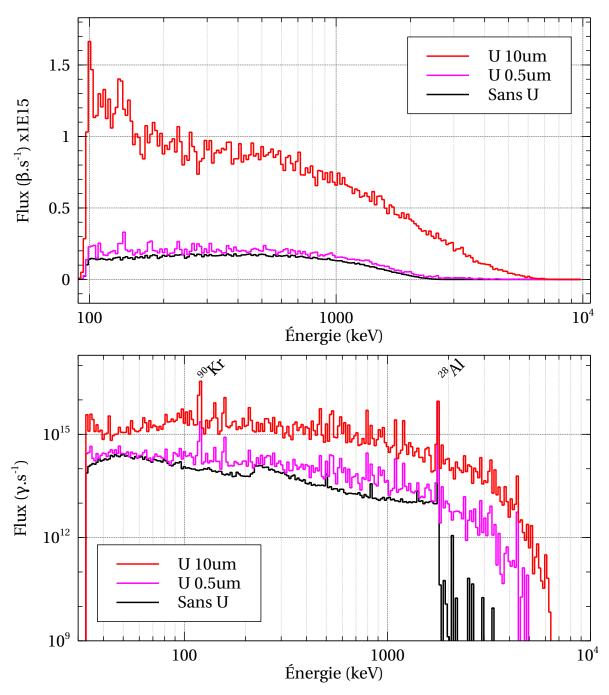


FIGURE 5.10 – Spectres des traces bêtas et gammas dans le gaz de remplissage une seconde après un transitoire de puissance de 21.6 GW. On note une contribution grandissante des produits de fission avec la masse active déposée.

Malgré un dépôt d'énergie spécifique bien inférieur à celui des produits de fission, les rayons bêta, possédant une trajectoire erratique peuvent parcourir dans le gaz une distance bien supérieure à leur portée et ainsi déposer une part de leur énergie suite à de multiples collisions. L'allure du signal post-impulsion doit vraisemblablement suivre une courbe de décroissance telle que décrite par la Fig. 5.9, mais une estimation de sa puissance absolue n'est pas pos-

sible compte tenu des caractéristiques géométrique de ce plasma. De manière qualitative, les courbes de décroissance du signal fantôme émis par CANOE, et celui de l'énergie déposée calculée avec FLUKA présentent les mêmes allures et points d'inflexion. Il est probable qu'un dépôt supplémentaire d'énergie, par les puissants rayons gammas du bloc cœur et de l'APIC en aluminium augmentent davantage le nombre de photo-électrons générés dans les structures de CANOE.

# 5.6 Discussion

Un capteur de neutrons passif, en ligne, basé sur une émission optique en pile a été évalué lors d'irradiations à forte dynamique.

La linéarité de la réponse de CANOE à la puissance d'une pile atomique en phase de divergence lente, et en transitoire de puissance rapide a été démontrée à 3 reprises, grâce à l'utilisation d'une carte d'acquisition programmable, d'une fibre et de détecteur optique grand public. 7 décades de puissances échantillonnées entre 1 et 400 ms ont été mesurées avec CANOE en mode comptage d'impulsions. La dynamique était bridée par la réponse du compteur de photon, aveuglé par une trop forte lumière produite par le capteur à haute puissance. La linéarité de la réponse optique est assurée sur 5 décades de puissance en mode comptage échantillonné à 1 ms.

L'analyse du signal post-tir produit dans CANOE semble montrer qu'il est issu majoritairement de l'émission de particules bêta provenant du dépôt fissile et de la structure en aluminium. De simples adaptations technologiques peuvent transformer CANOE en un véritable système de mesure à très grande dynamique pour le suivi de sources pulsées.

L'utilisation de technologies de détection annexes comme les photodiodes classiques ou les APD-Geiger permettront d'étendre encore la gamme de mesure de CANOE et de rendre possible une discrimination neutron-gamma.

# 5.7 Publication

ELSEVIER

Contents lists available at ScienceDirect

# Nuclear Inst. and Methods in Physics Research, A

journal homepage: www.elsevier.com/locate/nima



# Pulse-reactor core monitoring with an innovative optical neutron detector

M. Lamotte\*, G. De Izarra, C. Jammes

CEA, DES, IRESNE, DER, Instrumentation Sensors and Dosimetry Laboratory, Cadarache, F-13108 Saint-Paul-lez-Durance, France



### ARTICLE INFO

Keywords: Fission chambers Radiation-hard detectors Gaseous detectors Gas scintillation

### ABSTRACT

To minimise uncertainty and strengthen estimation of energy deposited during power transients, we set up an online passive neutron flux measurement of a pulse reactor.

Optical fission chambers, are being developed in the framework of dependable neutron flux instrumentation for Sodium-cooled Fast Reactor (SFR) and Molten-Salt Reactor (MSR) of Generation IV by the French Atomic Energy and Alternative Energies Commission (CEA). Neutron interactions with a fissile layer coating release heavy-ions in the MeV-range, eventually leading to spontaneous photon emission in the ultraviolet to infrared range of the surrounding noble gas. Prototypes have previously been tested in an ideal pure neutron field. In this paper, linearity of optical signal versus reactor power is assessed during startups and high power transients up to 21.6 GW. Excellent linearity results are obtained over 5 reactor power decades and detection remain possible over 7 decades. Detection range is only restrained by photodetector properties. Such detector may be routinely employed for high-dynamic transients monitoring by the core caisson of pulse reactors.

### 1. Introduction

The French Atomic Energy and Alternative Energies Commission (CEA) proposes a new generation of neutron detectors for the neutron flux monitoring of Sodium-cooled Fast Reactors (SFR) and Molten Salt Reactors (MSR). These detectors are based on the luminescence of rare gases excited by collisions with charged particles [1–3] and spontaneously de-excited, generating discrete emission lines.

Photons in the near-infrared spectrum can be channelled in optical fibre under harsh radiation environment over long distances, as low attenuation in silica fibres [4] have been reported in this region.

Previous work on this detector focused on proof-of-concept achievement, light spectrum analysis, signal strength optimisation and solid-state photodetector assessment in a gamma-free cold-neutron beam.

Linearity of optical signal strength against neutron flux is required for future reactor monitoring systems, we therefore assessed the very same CANOE detector in the pool of CABRI, a high-power transient reactor. This unique experimental facility dedicated to fuel rods failures during power excursions allows testing of instrumentation over 11 decades of reactor power, as found in SFR and MSR.

# 2. Materials and methods

The present section details materials, facilities and methods used for neutron flux measurements by passive optical means on a CANOE (Capteur de Neutrons à Optique Expérimentale) gaseous detector.

E-mail address: maxime.lamotte@cea.fr (M. Lamotte).

# 2.1. Luminescent fission chamber assembly

The CANOE detector initially designed for the very low flux pure neutron field of ORPHÉE reactor, was repurposed and re-configured for linearity assessment.

CANOE consists of a 2 mm thick aluminium tube, 30 mm diameter and 80 mm long hosting a 500 nm thin pure  $^{235}\mathrm{U}_3\mathrm{O}_8$  layer deposited on a 18 mm diameter and 200  $\mu\mathrm{m}$  thick stainless steel disk, pictures on Fig. 1. Noble gas filling of the detector can be performed between 0.5 to 5 atm. As maximal light intensity was obtained under 2 atm of ultra-pure Air Liquide N50 neon during experiments on ORPHÉE neutron beams, an identical filling was set in the detector. A fused silica window, maintained against the detector body by a tapered flange and a silicone o'ring ensures light transmission towards optical fibres and an airtight construction.

Near-infrared emission spectrum was originally seek, as wavelengths between 800 and 1100 nm are less prone to Radiation Induced Absorption (RIA) in standard silica optical fibres [4].

As pointed after 120 h of irradiation on ORPHÉE, resulting in  $4\text{E}14~\text{n}~\text{cm}^2$  fluence deposition, no RIA was detected between 450 nm to 2  $\mu\text{m}$  wavelengths, since the optical fibre was away from radiation fields, allowing lossless visible-spectrum light transmission. To improve the signal to noise ratio, it was decided to fill CANOE with neon. This resulted in strong light emission at 585 nm while argon mainly produced peaks at 750, 763 and 912 nm. Low noise high sensitivity photon counters, as the employed Hamamatsu C13001-01, made of a single

<sup>\*</sup> Corresponding author.

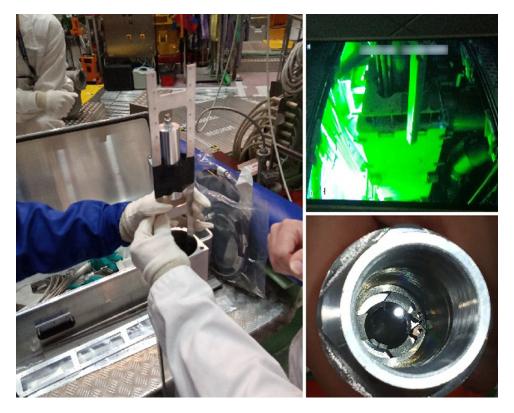


Fig. 1. Left: placement of CANOE inside the experimental box. Up: immersion of the experimental box in CABRI pool, by the core caisson. Down: close-up view of CANOE 0.5 μm thick fissile layer, as seen through its silica window.

cooled silicon Avalanche PhotoDiode in Geiger mode (APD-Geiger), display significantly better detection efficiency in visible wavelengths, from less than 3% at 900 nm up to 40% at 585 nm. Hence, using neon as filling gas improved signal-to-noise ratio up to a decade.

The APD-Geiger photon counting module displays a very low dark noise, less than 10 cps, a linearity over 5 decades and a non-destructive saturation after 7 light power decades. As this photon counter has a single 125  $\mu m$  diameter large photodiode, it does not suffer from Silicon Photomultiplier (SiPM) crosstalk and linearity bias at high count rates, making it suitable for our linearity assessment experiment.

For irradiations on CABRI, we assumed the fluence deposited by several millisecond-long pulses was not high enough to induce significant RIA in silica fibres. We therefore connected the 2-bars neon filled CANOE to three segments of FG200-LEA, 200  $\mu m$  diameter silica-core optical fibres. All 3 fibres were held loose on a 2 mm thick plastic string, acting as mechanical fuse. The assembly was ultimately pulled in light-tight heat-shrinkable sleeves, resulting in a custom-made tri-redundant high strength fibre bundle.

### 2.2. Data acquisition system

Data acquisition was performed on the very same Textronic MSA9104 A oscilloscope with 1 billion points memory as used on ORPHÉE reactor [1]. A 125 Msamples/s acquisition allowed 4 s long recordings, triggered manually from control room countdown.

We also evaluated a low-cost, small-footprint alternative for narrow TTL pulse counting from the photon detector with Red Pitaya boards.

This system hosts two 14 bits Analogue to Digital Converters (ADC) connected to a FPGA, capable of 125 MSamples/s scans and providing an Ethernet interface, allowing remote operation and configuration.

A Verilog code counted rising edges on a ADC input during a user-settable census period, ranging from 1 ms to 1 s. A C-language routine eventually send buffered value translated into counts per second over Ethernet for direct visualisation, and towards onboard storage for further analysis.

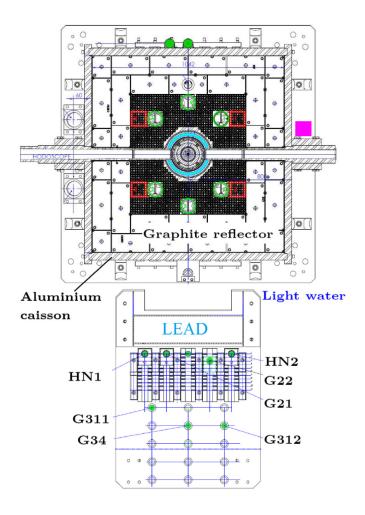
The very particular CABRI reactor operation forbids human presence in its building after criticality, experimenters have therefore no access to devices but through an optical fibre high speed Ethernet port located in a remote control room, 500 metres away.

### 2.3. CABRI power pulse reactor

CABRI is a pool-type experimental reactor dedicated to fuel stress under Reactivity Initiated Accident [5]. CABRI core is made of 6% enrichment <sup>235</sup>UO<sub>2</sub> pellets contained in 1487 stainless steel clads. A large test cell, approx. 30 cm diameter, in the middle of the core hosts a PWR fuel rod within a pressurised water loop. CABRI can reach a 23.7 MW steady state power level with active cooling, or 100 kW if relaying solely on natural convection. Reactivity control is ensured by a set of 6 control and safety rods, each made of 23 hafnium pins [6]. CABRI features a reactivity injection system based on fast depressurisation of <sup>3</sup>He (a strong neutron absorber) contained in 96 tubes located among CABRI fuel rods. Fast depressurisation, from 14.85 atm to vacuum, of <sup>3</sup>He induces a reactivity increase of about 4\$ within tens of milliseconds. CABRI power can burst from 100 kW up to 21.6 GW in few ms and decreases with a similar dynamic thanks to Doppler effect in the fuel and other negative feedbacks.

Reactor power monitoring is performed by 2 boron-lined gamma-compensated ionisation chambers for reactor control connected to a low sampling-rate current measurement system in all phases but power transient (hereafter referred at HN1 and HN2). 5 high-speed neutron measurement systems are dedicated to power transient analysis, each has its detector being placed at different distances from the core to precisely monitor an assigned power range [7]. All detectors are placed behind a 15 cm thick lead shield to attenuate gamma-induced ionisation currents.

CANOE was placed in an experimental box of the size of CABRI fuel assemblies, approximately 8.6 cm by 8.6 cm, 1.2 m long. This waterproof aluminium lead-weighted box is used during commissioning tests [8], holding standard fission chambers CFUL01 and a set of dosimeters, at steady reactor power of 5 kW. It features a 30 mm



**Fig. 2.** View of CABRI reactor pool. CANOE experimental box is placed on the magenta square, by core caisson. 5 pulses monitoring and 2 reactor control boron chambers are placed behind 15 cm of lead and 30 cm of light water. Green circles emphasise safety and control rods, red squares represent<sup>3</sup>He tubes. Central structure contains a pressurised water loop a section of PWR rod, monitored by the lateral hodoscope.

diameter 20 m long polymer pipe for cable placement. Pictures of CANOE being placed in this experimental box are presented on Fig. 1.

The box was immersed in reactor pool, by the core caisson. A neutron/gamma field with a neutron flux of  $1.37E12~n~cm^2~s^{-1}$ , 90% thermalised below Cadmium energy cut-off, and a gamma dose of 350 Gy/h is expected at 1 MW reactor power at this location. A drawing of CABRI pool is presented Fig. 2.

Prior our experiment, no fission chambers have ever been placed by the core during a power pulse as a 21.6 GW pulse would require a destructive 500 W power transmission inside standard CFUL01 chambers. Placement of a neutron detector by the core during a pulse reduces uncertainties due to thermal neutron transport in water.

### 3. Results

Prior each CABRI power pulse, startups up to 100 kW lasting tens of seconds allows for estimation of the detection limit of CANOE, translated into incident neutron flux. Steady power was maintained for as long as 10 minutes for safety systems to be checked before a power pulse.

Neutron monitoring systems HN1 and HN2 having a detection limit of 300 mW reactor power, 6 power decades can be assessed on CANOE during reactor startup. Power pulses extend this range up to 11 decades.

Table 1
CANOE monitored CABRI reactor pulses characteristics. FWHM: Full Width at Half Maximum.

| Pulse | <sup>3</sup> He Pressure (atm) | Peak power (GW) | FWHM (ms) | Energy (J) |
|-------|--------------------------------|-----------------|-----------|------------|
| 1     | 7                              | 13.6            | 10.5      | 177        |
| 2     | 11.3                           | 21.6            | 8.95      | 237        |
| 3     | 9                              | 18              | 9.37      | 208        |

### 3.1. Reactor startups

Upon switching on the photon counter, a 104 cps stray signal was observed, due to room light input in the optical fibre or detector enclosure.

Reactor startup neutron flux acquired with a CANOE detector are presented along HN1 and HN2 traces on Fig. 3. A detection limit of 300 W was found on CANOE, corresponding to a neutron flux of about  $4E8 \ n \ cm^2 \ s^{-1}$ .

HN1 and HN2 boron-lined chambers were exploited on their mean current output while the photo-detector converts CANOE light into discrete TTL pulses. As a result, more fluctuations were observed at low reactor power on CANOE, as it would be on any standard fission chamber used in pulse mode. Sampling rates ranged between 100 to 400 ms during the 4 reactor startups monitored with luminescent fission chambers. One can notice the good agreement between boron-lined chambers and CANOE scintillation strength over 3 reactor power decades. At 100 kW power, a 3600 cps CANOE count rate was measured.

### 3.2. Reactor pulses

Three CABRI pulses have been produced during a single morning, as a commissioning campaign prior to PWR fuel-rod transient power stress test. Table 1 sums-up the pulses endured by CANOE. The very high power surge rate of CABRI – up to a decade per millisecond – forbids any re-setting of our readout system, lacking fast automatic scaling routine.

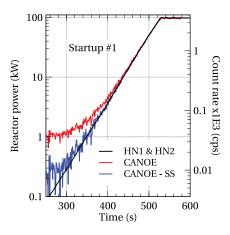
To avoid a buffer overflow of the Red Pitaya FPGA and to obtain detailed profiles of reactor pulses, we set-up a 1 ms short sampling time for all readouts, our counting program limit.

At 100 kW steady power, 3 to 4 TTL pulses were recorded each millisecond from the photon detector, too few to perform absolute calibration. When high power pulses are produced in CABRI, a post-pulse plateau of several tens of megawatts, visible before safety rods fall, lasts tens of milliseconds. After a 13.6 GW pulse, a 67 MW plateau is expected, where about 2.41E+6 cps are forecasted from the photon detector, still in its linearity region. As a result, the CANOE TTL-pulses frequency to reactor power calibration was applied on the post-pulse plateau, with high-flux-dedicated boron-lined ionisation chamber data G22 and G34. An excellent agreement between standard ionisation chambers and CANOE measurements is reported on the rising edge of the pulse, up to photodetector saturation limit, as shown Fig. 4.

Above 110 MW, a deviation of CANOE signal with other neutron flux monitors is reported, corresponding to an approximately 4E+6 cps TTL pulses from the photon detector, where its documented linearity begins to deviate. At this point, a software correction of APD's dead-time remains possible. Even though, saturation is visible at 1.1 GW, or about 4E+7 cps, higher than the C13001-01 manufacturer claimed maximum, 3E+7 cps.

A post-pulse remanent signal, not due to control-rods drop time, is visible solely on CANOE traces for several minutes. CANOE high aluminium content – about 120 g – may induce a significant activation, not experienced by other detectors located tens of centimetres away from the core, behind lead shielding.

General radioactive decay law shape and disappearance of the remanent CANOE signal after 11 min, about 5 <sup>28</sup>Al half-lives (2.2 min)



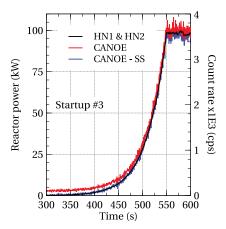


Fig. 3. CABRI reactor startup, as recorded by ionisation chambers HN1 and HN2 monitored in current mode, and CANOE. Left: 100 ms sampling re-sampled to 1 s during startup number 1. SS: correction of Stray Signal. Right: 400 ms sampling during startup number 3, shown on a logarithmic scale to observe the CANOE detection limit.

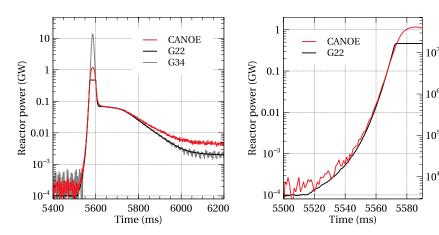


Fig. 4. Left: CANOE and reference ionisation chamber traces during the first 13.6 GW pulse. Count rate is for CANOE trace. Right: closeup of the first monitored power pulse, deviation of CANOE signal linearity is visible from 4E+6 cps and photodetector saturation occurs at 4E+7 cps or 1.1 GW reactor power. Reference ionisation chamber G22 routinely saturates at 465 MW.

points a possible main contribution of neutron-activated aluminium beta decay to this phenomenon.

Fitting an <sup>28</sup>Al decay curve on CANOE post pulses traces, normalised to initial count rates, showed a nearly perfect superposition. Such post-pulse signal can be attenuated by relying on envelope material producing long-lived activation products such as steel, Zircalloy or Inconel.

### 4. Conclusion

An on-line passive neutron detector based on gas scintillation has been assessed during reactor startups and power pulses.

Linearity of the CANOE detector response as a function or neutron flux was found to be comparable to standard ionisation chambers, over 5 decades.

The employed photodetector dynamic range limits power monitoring over 7 decades, relying solely on photoelectric pulses counting.

The weak post-pulse signal found on a CANOE detector is likely induced by aluminium structure activation, a behaviour to be limited on future designs based on other alloys body parts.

Future experiments with CANOE detectors will focus on lowering the detection limit with optical assemblies and assessment of wide range photodiodes.

### **Declaration of competing interest**

The authors declare that they have no known competing financial interests or personal relationships that could have appeared to influence the work reported in this paper.

Count rate (cps)

### Acknowledgements

The authors are very thankful to the CABRI staff and more particularly to V. Cano for his trustiness during this exceptional experiment; E.Gohier, J.Lecerf and A.Gruel for their technical support.

### References

- M. Lamotte, G. De Izarra, C. Jammes, Design and irradiation test of an innovative optical ionization chamber technology, Nucl. Instrum. Methods Phys. Res. A (2020) 163945.
- [2] M. Lamotte, G. de Izarra, C. Jammes, Development and first use of an experimental device for fission-induced spectrometry applied to neutron flux monitoring, Nucl. Instrum. Methods Phys. Res. A (2019) 163236.
- [3] M. Lamotte, G. De Izarra, C. Jammes, Heavy-ions induced scintillation experiments, J. Instrum. 14 (09) (2019) C09024.
- [4] Cheymol, Guy, Long, Herve, Villard, Jean Francois, Brichard, Benoit, High level gamma and neutron irradiation of silica optical fibers in CEA OSIRIS nuclear reactor, IEEE Trans. Nucl. Sci. 55 (4) (2008) 2252–2258.
- [5] AUSY, Modélisation Tripoli Pour la Caractérisation Neutronique Du Réacteur Cabri Dans la Configuration BEP, Tech. Rep. NT DER/SPRC/LPN /16-1728 ind. 1, CEA - Cadarache, 2016.

- [6] AUSY, M. Maillot, étude Neutronique de Référence Du Coeur Cabri Dans la Configuration Boucle à Eau Pressurisée (BEP), Tech. Rep. NT DER/SPRC/LPN /16-1735 ind. A, CEA - Cadarache, 2016.
- [7] J. Lecerf, Y. Garnier, J. Hudelot, B. Duc, L. Pantera, Study of the linearity of cabri experimental ionization chambers during ria transients, in: EPJ Web of Conferences, Vol. 170, EDP Sciences, 2018, p. 04015.
- [8] J.-P. Hudelot, E. Fontanay, C. Molin, A. Moreau, L. Pantera, J. Lecerf, Y. Garnier, B. Duc, Cabri facility upgrade, refurbishment, recommissioning and experimental capacities, in: PHYSOR 2016: The Physics of Reactors conference, 2016, pp. ISBN-978.

# Bibliographie

- [1] J.-P. Hudelot, E. Fontanay, C. Molin, A. Moreau, L. Pantera, J. Lecerf, Y. Garnier, B. Duc, CABRI facility upgrade, refurbishment, recommissioning and experimental capacities, in: PHYSOR 2016: The Physics of Reactors conference, 2016, pp. ISBN-978.
- [2] J. Lecerf, Y. Garnier, J. Hudelot, B. Duc, L. Pantera, Study of the linearity of CABRI experimental ionization chambers during RIA transients, in : EPJ Web of Conferences, Vol. 170, EDP Sciences, 2018, p. 04015.
- [3] A. Ferrari, P. R. Sala, A. Fasso, J. Ranft, FLUKA: A multi-particle transport code (Program version 2005), Tech. rep. (2005).
- [4] T. Böhlen, F. Cerutti, M. Chin, A. Fassò, A. Ferrari, P. G. Ortega, A. Mairani, P. R. Sala, G. Smirnov, V. Vlachoudis, The FLUKA code: developments and challenges for high energy and medical applications, Nuclear data sheets 120 (2014) 211–214.
- [5] V. Vlachoudis, et al., FLAIR: a powerful but user friendly graphical interface for FLUKA, in: Proc. Int. Conf. on Mathematics, Computational Methods & Reactor Physics (M&C 2009), Saratoga Springs, New York, Vol. 1, 2009, p. 3.

# 6

# Perspectives d'études et d'applications

Le développement d'un système de détection neutronique et ses essais dans deux piles atomiques ont permis de valider la preuve de concept d'une instrumentation en ligne par méthode optique passive, capable d'autodioagnostic. Cette étape clé de la thèse atteinte, nous proposons ici les perspectives, évolutions et améliorations possibles du capteur CANOE, ainsi que ses applications, dépassant le champ de la mesure en réacteur à neutrons rapides refroidis au sodium.

Les principaux axes de développement et les opportunités techniques jugées d'intérêt pour une exploitation à court terme sont exposés après un récapitulatif de nos travaux.

# 6.1 Bilan des travaux effectués

Cette thèse de doctorat a suivi trois axes de recherche pour l'évaluation du signal optique produit dans une chambre à fission, utile au suivi de puissance d'un réacteur nucléaire.

Une preuve de la luminescence des gaz rares excités par des ions lourds a été apportée par le Prototype de Scintillateur Électrode-Gaz (PSEG), reproduisant les principaux mécanismes de dépôt d'énergie dans une chambre à fission.

Une scintillation du gaz rare dans la région proche-infrarouge a été détectée à l'aide de caméra CCD, ce qui a permis une localisation de l'émission de lumière autour de la source d'ions lourds.

Les spectres d'émission lumineux acquis révèlent le caractère hors équilibre thermodynamique d'un tel plasma froid, même en son cœur. Le taux d'ionisation y est très faible, mais il existe cependant une excitation suffisante pour mesurer des raies de désexcitations résolues et identifiées comme provenant uniquement du gaz rare à l'état neutre.

Les mécanismes d'élargissement spectraux sont peu nombreux, vu les paramètres de ces plasmas : l'effet Doppler ne saurait être prédominant à des températures si basses, alors que l'effet Stark est négligeable vu la densité électronique, proche de celle d'une flamme. L'élargissement de résonance, Lorentzien, est en revanche bien visible sur les raies éligibles à l'observation d'un tel phénomène, à des pressions autour de l'atmosphère. Une mesure de la densité de gaz au

sein d'une chambre à fission analytique s'est révélée possible, sans appareillage complexe, ce qui apporte ici un avantage clé dans le cas d'une utilisation en cuve de réacteur par rapport aux capteurs à gaz existants.

Aucun continuum n'est apparent, et les graphiques de Boltzmann issus des spectres acquis dans divers gaz rares ne présagent pas d'équilibre thermodynamique local partiel. En conséquence, un modèle de plasma froid alternatif à ceux utilisés dans les codes de calcul basés sur une excitation electro-magnétique est nécessaire pour décrire les plasmas issus de radiations nucléaires, fortement hors-équilibre.

Un code de simulation de la dynamique du mécanisme de peuplement des états radiatifs des gaz excités par des ions lourds a été produit sur la base de modèles semi-empiriques, et de transport de particules par méthode Monte-Carlo.

Ce code, dont les méthodes numériques ont été vérifiées sur des cas tests, a permis de mettre en exergue le caractère transitoire et localisé des plasmas induits le long des traces d'ionisation. Des fonctions de distribution de l'énergie des électrons produits à des temps de recensement très courts démontrent que les états radiatifs des gaz nobles sont peuplés dans les premières picosecondes de ralentissement des électrons générés autour de l'ion lourd projectile.

Les spectres d'émission théoriques produits en considérant un modèle de plasma coronaire, reproduisent les raies d'émission provenant d'états excités à haut potentiel, bien au delà de l'énergie moyenne des électrons libres libérés dans l'ensemble du plasma.

Une comparaison directe des spectres d'émission n'est pas possible en l'état, vu l'absence d'inversion d'Abel réalisées sur un plasma si peu lumineux. Les raies de désexcitation obtenues par méthodes numériques et expérimentales sont en revanche identifiables et présentent des intensités relatives du même ordre de grandeur.

La preuve de concept de la mesure de scintillation gazeuse appliquée à la détection de neutron a été validée via la réalisation du capteur prototype CANOE, irradié dans un faisceau de neutrons froids du réacteur ORPHÉE.

L'établissement de spectres d'émission a mis en évidence la contribution exclusive du gaz de remplissage à la luminescence observée, renforçant la thèse d'une scintillation observable sous irradiation, et détectable avec des photodétecteurs actuels à substrat de silicium. L'utilisation d'une fibre optique, bien que ne canalisant qu'une infime portion des photons produits dans le capteur, permet la lecture à distance du flux de neutron incident.

La sensibilité aux rayons gamma semble faible, du même ordre de grandeur que les chambres à fission classique car aucune scintillation n'a été détectée lors d'essais sous flux gamma pur. L'utilisation d'autres gaz noble que l'argon permet d'optimiser la limite de détection de notre système, en décalant le spectre lumineux vers le domaine visible, où les photo-détecteurs à substrat de silicium ont une efficacité de détection plus élevée. Le néon s'affiche comme un excellent candidat vu sa faible section efficace de réaction aux neutrons, son spectre centré sur le rouge et une forte force d'oscillateur sur plusieurs niveaux résonants, permettant d'estimer la pression de remplissage d'une chambre à ionisation optique. Des essais avec un mélange helium-néon similaire à ceux utilisés dans les lasers rouges à gaz <sup>1</sup> pourront être réalisés pour vérifier la possibilité de pomper des états excités de manière plus efficace.

La réalisation d'essais du capteur prototype CANOE en réacteur de recherche capable d'ex-

<sup>1.</sup> La composition est généralement de 90% d'hélium et 10% de néon.

cursions de puissance de très grande dynamique a confirmé la linéarité de la réponse optique face à un champ mixte fluctuant rapidement.

L'utilisation du mode comptage sur chambre à fission optique peut s'opérer à un niveau sensiblement plus élevé qu'avec les chambres à fission classiques, grâce à des impulsions notablement plus courtes <sup>2</sup> et dont la forme est peu affectée par le conducteur. Six décades de puissance du réacteur CABRI ont été mesurées avec notre système optique, offrant par la même occasion une résolution temporelle du pic de puissance supérieures aux chaînes de mesure installées.

Vu les résultats probants de nos travaux, et de l'intérêt suscité par une technique de mesure novatrice, une poursuite des investigations sur des bancs d'essais est proposée, selon des axes décrits ici.

# 6.2 Perspectives d'études

La scintillation des gaz rares appliquée à la mesure neutronique en environnement de réacteur nucléaire a été démontrée. Face aux méthodes classique de mesure de l'ionisation d'un gaz au sein d'une chambre à fission, la méthode optique présente des avantages décisifs, mais également une méthode d'exploitation différente.

La maquette de chambre à fission à collection optique CANOE a permis de valider la faisabilité technologique du suivi de puissance d'un réacteur, dans des conditions représentatives d'un réacteur nucléaire.

Les excellents résultats obtenus avec du matériel non dédié à la mesure nucléaire ou à l'acquisition de données à grande vitesse laissent entrevoir des axes d'optimisation permettant de décupler la supériorité de la méthode optique face à la méthode électrique classique.

Dans les sections suivantes, nous apportons quelques pistes pour un détecteur et un système d'acquisition plus aboutis, dans l'objectif de la poursuite de nos travaux.

# 6.2.1 Collecte optique

Dans une phase exploratoire, nous n'avons considéré qu'un montage optique rudimentaire pour la collecte des photons, avec une fibre optique nue de qualité passable en regard du détecteur, massif.

La grande variabilité de la perte des photons générés dans le gaz est analysée plus en détail suivant 6 paramètres, grâce à code de calcul précédement créé pour estimer la proportion de photons atteignant les fibres évaluées d'un CANOE simplifié dessiné en annexe D I.

L'analyse de sensibilité présentée en annexes D III, D IV et D V montre que certains paramètres géométriques impliquent une évolution linéaire du nombre de photons captés, alors que d'autres impliquent la recherche d'une solution optimale, notamment pour les couples pression-diamètre du détecteur et pression-ouverture numérique de la fibre.

Une forte ouverture numérique (NA) permet de capturer davantage de photons générés dans la partie haute du cylindre fissile, mais sa valeur vaut toujours 0.2 pour les fibres à cœur silice pure, ce qui correspond à un cône d'acceptance d'environ 23° seulement. Le recul de la fibre permet que son cône d'acceptance recouvre la zone utile mais cela diminue aussi l'angle solide sous lequel cette zone est vue.

 $<sup>2.\,</sup>$  Notre compteur de photon produisait des impulsions TTL calibrées de 20ns, mais la photodiode produit des impulsions d'une LMH de 50 ps

La proportion de photons canalisés dans la fibre, qui évolue avec le carré de sa surface est là un levier commode pour décupler le signal optique, mais au prix d'un encombrement supérieur. Si des fibres optiques à cœur de silice pure de diamètre supérieur à 2 mm sont rares, des assemblages de plusieurs dizaines sont disponibles dans le commerce, permettent d'obtenir une surface de conducteur supérieure au cm² avec cependant des rayons de courbure très inférieurs à ceux des câbles blindés utilisés actuellement ³. Cette solution à plusieurs conducteurs présente l'avantage non négligeable d'assurer une redondance; le bris d'une des dizaines de fibres ne remettra pas en cause la mesure de flux neutronique ⁴.

Dans le cas d'étude à très fort flux et doses, en cuve de réacteur rapide comme  $J\bar{o}y\bar{o}$ , les fibres à corps creux (HCF) disponibles commercialement assurent une transmission sans pertes, dans une courte zone spectrale choisie : 800, 1060 et 1550 nm sont actuellement disponibles

Une fois le signal hors-cuve, il est possible de collimater cet ensemble de fibres vers une unique fibre de faible diamètre avec une lentille ou un cône de fibres afin de réduire les coûts du conducteur sur de grandes distances.

Un système de collimation classique embarqué dans le détecteur-même, basé sur des optiques en silice placées dans des boitiers en titane permettrait d'augmenter substantiellement la quantité de photons canalisés dans une unique fibre de très faible diamètre pour un surcoût modique, mais au prix d'un allongement d'environ 40 mm du détecteur.

La soudure d'une lentille sphérique ou d'un cône «taper» en silice au bout de la fibre (voir Fig. 6.1) est désormais possible grâce aux techniques développées pour les besoins des télécommunications, ce qui autoriserait une augmentation massive du signal photon —facteur de 25 avec un taper de ratio 5, sans modifier le diamètre de la fibre conductrice et en réduisant l'encombrement général du détecteur, pour un surcoût, de l'ordre du millier d'euros.

En conclusion, la puissance du signal optique en sortie d'une chambre à fission peut être augmentée avec des solutions technologiques déjà commercialisées, ne modifiant que peu l'encombrement final du détecteur.

La question de la tenue aux radiations des solutions «taper» et «bundle» se révèle peu pertinente, étant donné des compositions chimiques et structurelles strictement similaires à celles des fibres en silice.

Cette meilleure collecte des photons permet d'abaisser la limite de détection du système de manière spectaculaire, jusqu'à trois décades, augmentant sensiblement le rapport signal sur bruit à bas flux.

# 6.2.2 Détection des photons

Durant nos expérimentations en réacteur, nous avons presque exclusivement estimé le flux lumineux sortant du capteur CANOE avec un photodétecteur de type photodiode à avalanche surpolarisée (APD-Geiger) utilisé en mode comptage. Cette technologie est optimale pour mesurer des flux de photons particulièrement faibles, montrant ainsi les limites de détections basses d'un capteur scintillant.

On rappelle la puissance instantanée d'un flux de photon :

$$W_p = \phi_p E_p \tag{6.1}$$

<sup>3.</sup> On considère généralement un rayon de courbure minimal d'une fibre égal à 100 fois son diamètre.

<sup>4.</sup> Il convient de séléctionner un assemblage fait de fibres de faible diamètre, ce qui réduira le rayon de courbure minimal



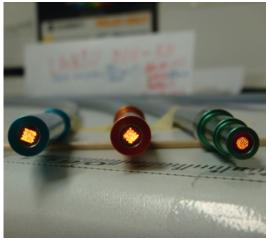


FIGURE 6.1 – Solutions disponibles pour augmenter sensiblement l'efficacité d'un couplage optique de chambre à fission optique.

Gauche : Cône «taper» consitué de milliers de fibres optiques en silice fusionnées à l'étranglement. D'autres formes existent.

Droite : Assemblage «bundle» de fibres optiques en silice avec revêtement d'aluminium, souble, robuste et offrant une redondance au signal.

avec  $\phi_p$  le flux de photons d'énergie  $E_p$ .

En considérant une longueur d'onde moyenne des photons d'intérêt à 900 nm, chaque photon possède une énergie de 2.21E-19 J, soit 1.37 eV. Notre CANOE contenant de l'argon et 750 µg d'uranium, exposé aux neutrons du réacteur ASTRID à puissance nominale sous le bouchon tournant laisse ainsi présager une puissance optique de l'ordre de 5.2E-14 W, —cinquantedeux femto-watt— si le couplage s'effectue avec une simple fibre optique de 1 mm de diamètre. Bien qu'infime, des puissances similaires ont été mesurées lors de nos expérimentations sur ORPHÉE.

D'autres modes de mesure, liés à la technologie des photodétecteurs employés existent, et peuvent se prêter davantage au suivi de puissance d'un réacteur, ou à des applications de recherche demandant des résolutions temporelles très courtes. De manière similaire aux chambres à fission classique, il est possible de mesurer une puissance lumineuse suivant plusieurs modes :

- 1. La discrimination et le comptage d'impulsions (Pulse Height Analysis)
- 2. L'intégration d'impulsions (amplificateur de charge)
- 3. La mesure d'un courant photo-induit moyen (amplificateur transimpédance)

Nous détaillons ici les différentes technologies de capteurs opto-électroniques aptes à détecter une puissance minimale de l'ordre de quelques dizaines de femto-watt.

Quelques grandeurs d'intérêt pour la sélection de photodétecteur sont présentées ici afin de sélectionner d'autres systèmes de détection.

**Responsivité**  $R_{\lambda}$ , l'intensité émise par le photodétecteur en fonction de la puissance lumineuse reçue à une longueur d'onde donnée vaut  $I/P_{\lambda}$ . Typiquement 0.6 A/W pour un détecteur silicium à 900 nm.

- Efficacité quantique , fraction des photons incidents induisant un photocourant. Elle atteint 90% à 900 nm pour les détecteur à substrat silicium.
- Courant d'obscurité (Id) , le courant traversant dans la photodiode en mode photoconductive dans l'obscurité totale. Il est fonction de la température, de la surface sensible et de la tension de polarisation. Typiquement de quelques nA.
- Impulsions d'obscurité (DCR) , le nombre d'impulsions générées en l'absence d'illumination. Il varie avec la surface du détecteur, sa température d'utilisation et sa tension de polarisation, entre autres.
- Efficacité de détection (PDE), le rapport entre le nombre d'impulsions en sortie du photodétecteur et le nombre de photons incident. Le PDE varie avec la longueur d'onde.
- Puissance équivalente de bruit (NEP) , la plus petite puissance détectable par le système à une fréquence d'échantillonnage donnée, usuellement exprimée en  $pW/\sqrt{Hz}$
- Gain en intensité ou en tension, est le rapport entre la grandeur en sortie du photodétecteur, et la valeur obtenue par sa seule responsivité. Obligatoirement de 1 pour les photodiodes et CCD, elle peut atteindre 1E+7 sur des modèles spécialisés type SiPM.

L'impact d'un photon sur un substrat semi-conducteur peut générer des paires électrons-trous si son énergie est supérieure à celle de la bande interdite (quelques eV). En libérant des électrons dans la zone de diffusion, la conductivité électrique augmente et l'application d'une tension de polarisation aux zones P et N laisse ainsi apparaître un courant proportionnel au flux incident. Ce régime de fonctionnement, **photoconductivité**, est communément utilisé pour la transmission de données par fibre optique car elle autorise des fréquences de lecture très élevées, grâce à l'abaissement significatif de la capacitance de la zone PN, permettant une analyse de hauteur d'impulsion. Une chaîne de mesure classique, comme employée en gamma-spectroscopie peut avantageusement être employée pour la discrimination et le comptage d'impulsions.

Si aucune polarisation n'est appliquée, un courant de fuite proportionnel à l'illumination apparait toutefois aux bornes de la photodiode car des électrons seront éjectés de la surface photosensible, le mode fonctionnement est dit **photovoltaïque**. Ce mode offre l'avantage d'une réponse linéaire si la résistance de charge est très inférieure à la résistance interne de la photodiode. Un courant de charge virtuellement constant peut être généré en branchant la photodiode aux bornes d'entrée d'un amplificateur transimpédance ou de charge à remise à zéro pilotée comme nous l'avons évalué sur notre système MONTLUÇON. Le mode photovoltaïque offre l'avantage d'un bruit d'obscurité plus bas (seul le bruit Johnson est déterminant), et d'une simplicité de construction, mais n'est pas exploitable en discrimination de hauteur d'impulsion. Les circuits de mise en forme du signal étant strictement similaires, le basculement d'un mode de mesure à l'autre est possible en apposant simplement la tension de biais voulu, comme exposé Fig. 6.2. Afin d'apporter une amplification au signal, des photodiodes possédant une zone intrinsèque large peuvent être polarisées à la limite de leur seuil d'avalanche, ce qui offre un gain de l'ordre de la centaine : on parle alors de **photodiode à avalanche** (APD). Un schéma d'APD est présenté Fig. 6.3.

Parce qu'elles produisent cette amplification, les APD génèrent un meilleur rapport signalsur-bruit que les photodiodes standard (facteur 12) mais doivent idéalement êtres refroidies, jusqu'à -20°C.

Si la photodiode à avalanche est polarisée au delà de son seuil d'avalanche, un photon impactant le substrat générera une avalanche électronique qui ne s'éteindra que si la tension à ses

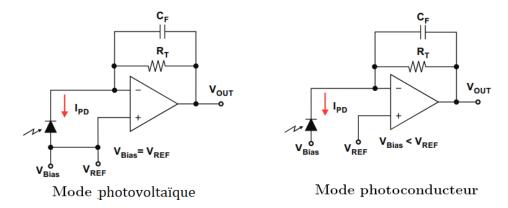


FIGURE 6.2 – Modes d'opération d'une photodiode classique. Gauche : photovoltaïque (sans biais), Droite : photoconducteur (avec biais négatif)

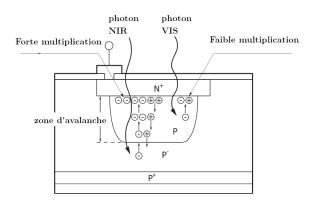


FIGURE 6.3 – Mécanisme d'amplification intrinsèque du signal dans un APD. Une large zone intrinsèque permet de mieux détecter les photons proche-infrarouge et amplifier le photosignal.

bornes est abaissée, par un circuit externe. Ces photodiodes en régime Geiger appartiennent à la famille des Single Photon Avalanche Photodiodes (**SPAD**) et sont adaptées au comptage de photon unique à très bas bruit (quelques coups par seconde), avec une efficacité quantique atteignant 90% dans certaines zones spectrales. C'est la technologie que nous avons choisie pour notre CANOE, dont la puissance lumineuse est faible vu les débits de fluence de neutrons rencontrées.

Une matrice de plusieurs milliers de SPAD branchés en parallèle peut atteindre des surfaces considérables, du millimètre au centimètre carré, autorisant la détection de photons uniques sur l'ensemble d'une fibre optique multimode ou d'un bloc scintillateur. Un schéma des deux technologies de détection est présenté Fig. 6.4

Ces Silicon PhotoMultiplier (SiPM) ou Multi-Pixels Photon Counters (MPPC) tendent à remplacer les tubes à photocathode-dynodes dans les applications d'imagerie nucléaire, où les blocs scintillants émettent une lumière dans la gamme 300-400 nm. Le fort gain se paye au prix d'un important bruit de fond, de l'ordre de la centaine de milliers de coups par millimètre carré.

Parce qu'une matrice de conducteurs et résistances de désactivations se trouvent sur le même substrat, les cellules des SiPM ont une zone intrinsèque moins grande que celles des APD

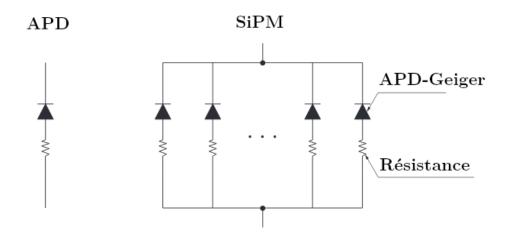


FIGURE 6.4 – Schémas d'un SPAD basé sur une APD-Geiger, et un SiPM

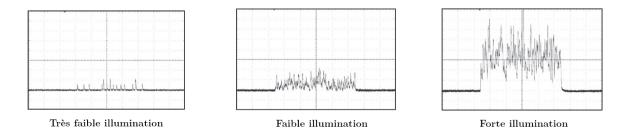


FIGURE 6.5 – Évolution du signal d'un SiPM en fonction de l'illumination. Un courant moyen peut être mesuré à haut flux.

classiques, réduisant leur efficacité pour la détection du rouge-infrarouge.

Les SiPM actuels ont une efficacité de détection dans la zone 900 nm autour de 1% pour la plupart des modèles bas-bruit, et jusqu'à 10% pour les modèles spécialisés «proche infrarouge». Si une discrimination de la hauteur d'impulsion n'est pas désirée, les SiPM peuvent également être utilisés en mode «courant» ou seule la composante continue du signal sera exploitée, avec une linéarité presque parfaite sur 4 à 5 décades. L'allure du signal d'un SiPM en fonction de l'illumination est présentée Fig. 6.5

Le NEP à 900 nm ces différentes technologies de détection et leurs prix caractéristiques techniques sont récapitulées dans le tableau. 6.1. Si cette donnée est absente de la documentation de la photodiode/APD, on calcul le NEP par :

$$NEP = h \ \nu \frac{\sqrt{2DCR}}{PDE} \tag{6.2}$$

Le NEP d'un SiPM utilisé en mode analogique est simplement estimé par un flux lumineux monochromatique égalant le courant d'obscurité tel que :

$$NEP_a = \frac{I_d}{PDE \cdot Gain} \tag{6.3}$$

À très faible illumination, le comptage par SPAD est le seul moyen d'obtenir de hauts taux

| Technologie                      | NEP (fW)@900 nm                      | Prix |
|----------------------------------|--------------------------------------|------|
| Comptage d'impulsions            |                                      |      |
| APD industrielle C30737XH-230-9X | 1                                    | 40   |
| APD refroidie C30902SH-DTC       | 1.85E-02                             | 1000 |
| SPAD C13001-01                   | 3.3E-02                              | 2500 |
| SPAD~C14463-050GD                | $3.45\mathtt{E-}02$                  | 3000 |
| SPAD SPCM-AQRH-16                | 3.9E-03                              | 8500 |
| Mesure de courant                |                                      |      |
| PIN VTB1113H                     | 5.9                                  | 2    |
| PIN S5971                        | 7.4                                  | 10   |
| PIN020-A                         | 2.8                                  | 15   |
| SiPM PM3350                      | $\sim\!\!3\mathrm{E}\!+\!03$         | 65   |
| SiPM PM1125                      | $\sim\!\!6.32$ E+ $02$               | 52   |
| SiPM RB-10010                    | $\sim \! 1.85 \mathtt{E} \! + \! 04$ | 172  |
| SiPM RB-10035                    | $\sim\!\!8.02$ E+ $03$               | 172  |

Table 6.1 - NEP à 1 Hz de différents photodétecteurs sous une illumination monochromatique à 900 nm, et leur prix indicatif.

de comptage avec quelques femto-Watts d'illumination proche-infrarouge [1].

La mesure de courant directe (non intégré) que ce soit par diode PIN-photovoltaique [2] ou SiPM [3] peine à produire une mesure à haut SNR car le bruit est du même ordre de grandeur que le photocourant produit : cette méthode n'est intéressante qu'en excursion de puissance, avec des capteurs de grandes dimensions ou pour la mesure entre les plaques de combustible.

En régime de puissance, une photodiode utilisée en photoconduction, couplée à un amplificateur de charge produira des impulsions similaires à celles des tubes PMT classiques, autorisant une analyse de hauteur d'impulsions, ainsi que la discrimination du signal alpha, gamma et neutron.

# 6.2.3 Étanchéité

CANOE se voulait un détecteur prototype polyvalent, réalisable rapidement avec des pièces disponibles dans le commerce et ré-utilisable. Une réduction drastique de sa masse, de l'encombrement et du vieillissement de celui-ci est possible pour de futures études.

Le système d'étanchéité joint-hublot n'est pas envisageable à haut flux, et nécessite de recourir à de grosses pièces mécaniques, activables. Les fibres optiques à revêtement métallique acquises à l'occasion des essais sur CABRI permettent d'envisager la brasure pour accouplement étanche.

Une version optimisée de CANOE réalisable au LDCI avec une enveloppe d'acier, deux capu-

chons soudés par laser et une fibre brasée est à l'étude. Des fibres à gaine de cuivre pourront être sélectionnées pour leur excellente capacité de brasure sur l'acier.

Des études de tenue des brasures aux radiations et au bain de sodium turbulent peuvent être entreprises pour vérifier leur bon vieillissement en conditions réacteur.

# 6.2.4 Influence gamma

Les photons gammas et X sont produits lors de deux phénomènes distincts :

**Photons prompts** issus de la fission des noyaux combustibles et des réactions  $(n,\gamma)$  sur les matériaux

Photons de désexcitation émis après des désintégrations radioactives de matériaux activés

Le spectre énergétique des photons présents en cuve de RNR-Na est une distribution allant de quelques keV à plusieurs MeV.

Les rayons X et gamma ayant une demi-longueur d'atténuation (et donc de dépôt d'énergie) directement liée à la densité du milieu, les gaz rares leur seront essentiellement transparents. L'impact de ces photons sur la structure du SMN —enveloppe de métal— va en revanche produire une gerbe d'électrons d'énergie allant jusqu'au MeV.

Nous avons vu lors de l'irradiation de CANOE au sein du réacteur CABRI, que l'activation de la structure du détecteur était suffisante pour produire un signal gamma fantôme indiscernable de la puissance résiduelle du réacteur avec une APD utilisée en mode comptage. Notons que CANOE, dimensionné pour une utilisation unique dans ORPHÉE possède une enveloppe significativement plus épaisse que les chambres à fission classiques, réalisées en titane.

Notons également qu'un placement de chambre à fission classique à cet emplacement durant un transitoire de puissance n'a jamais été envisagé, vu sa destruction prévisible.

Afin d'estimer l'effet des rayons gammas prompts sur la puissance du signal, nous avons simulé avec GEANT 4 version 10.05.p01 [4] [5] [6] la production de photo-électrons une chambre à fission simplifiée décrite en annexe D I. Le tableau. 6.2 présente l'énergie déposée par les photo-électrons issus de l'enveloppe et du gaz de remplissage lors de l'exploitation de ASTRID à puissance nominale. Différents matériaux employables pour notre application sont analysés, avec des alliages classiques type nickel, titane, zirconium ou acier de sécurité, mais aussi des alliages aéronautiques (aluminium, magnésium) et de fusion (tungstène).

La bibliothèque GEANT4 de physique électromagnétique choisie pour notre étude est la Livermore-Electromagnetic, qui permet la description de processus impliquant les gammas et les électrons suivant les données de l'EADL-EEDL-EPDL. La production d'électrons par photo-ionisation est décrite entre 250 eV et 100 GeV, la partie inférieure du spectre électronique dues aux interactions gammas avec les couches L,M,.. n'est donc pas quantifiable en l'état. Le dépôt d'énergie dans le gaz par interaction gamma sur l'enveloppe n'est que dif-

| Enveloppe   | Al-6061    | APX-4            | Ny-690  | ${ m Ta6V}$ | W97NiFe | ZR4     | ZT1     |
|-------------|------------|------------------|---------|-------------|---------|---------|---------|
| Dose totale | 2.59E+ $4$ | 2.75 <b>E</b> +4 | 2.68E+4 | 2.78E+4     | 2.28E+4 | 3.25E+4 | 2.73E+4 |

Table 6.2 – Taux de dépôt d'énergie dans le gaz, par interactions gammas sur une chambre à fission simplifiée en MeV/s. Le taux est donné par 1E+11  $\gamma$ .cm<sup>-2</sup>.s<sup>-1</sup> dans un tube long de 78 mm de 30 mm de diamètre.

ficilement modifiable : les matériaux ont peu d'effet sur des photons aussi énergétiques et des électrons seront toujours éjectés de leur surface libre au gaz. L'alliage de tungstène se démarque néanmoins des autres matériaux traditionnellement utilisés pour la réalisation de chambre à fission : sa forte densité réduit de moitié la dose photo-électron déposée dans le gaz et il n'est pas neutrophage. Par rapport à l'alliage ZR4 utilisé principalement pour la réalisation de gaines de combustible, il diminue de 30% la dose induite par les photo-électrons, à épaisseur égale.

À flux nominal, la chambre à fission présentée ici (surface d'émission de  $47~\rm cm^2$ ) aura un dépôt d'énergie dans le gaz de  $1.1E+9~\rm MeV/s$  dus aux neutrons, contre  $2.68E+4~\rm MeV/s$  dus aux photons gammas. Le rapport entre les deux contributions est de 2.44E-5, rendant l'impact des gammas négligeable à haute puissance stationnaire.

Le spectre des photo-électrons issus des structures est d'intérêt pour estimer la puissance et le spectre du signal lumineux produit dans une chambre à fission optique. Dans notre simulation GEANT4, une kyrielle de détecteurs «multifonctionnels» associés à des filtres à électrons d'énergies variables compte le flux de photo-électrons pénétrant le gaz afin de produire un spectre. Les résultats de simulations dans diverses configurations d'enveloppes sont présentées Fig. 6.6.

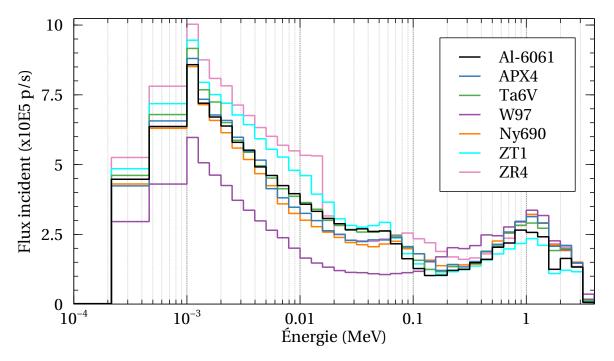


FIGURE 6.6 – Spectre des photo-électrons en sortie d'une enveloppe épaisse de 1 mm d'une chambre à fission suivant le matériau employé. Le spectre de photons gamma est celui sous le bouchon tournant de ASTRID à puissance nominale, avec un flux de 1E+11  $\gamma$ .cm<sup>-2</sup>.s<sup>-1</sup>, 540 JEPP.

Le spectre des photo-électrons est également peu modifié par la nature des matériaux, les photo-électrons émergeant dans le gaz n'étant issus que de l'interface gaz-dépôt. La forte

énergie moyenne des électrons est un point positif pour les chambres à fission optiques : ces électrons interagiront peu avec le gaz car leur sections efficaces d'excitation et d'ionisation par impact électronique sont minimales. En rappelant la Loi de Lotz, on estime que la section efficace d'ionisation de l'argon par un photo-électron varie comme :

$$\sigma_i(\epsilon) \propto \frac{log(\epsilon)}{\epsilon}$$
 (6.4)

En extrapolant la section efficace d'ionisation de l'argon [7] avec l'équation précédente, une valeur de 9E-21 m² est à attendre à 1 keV, 25 fois moins qu'à 40 eV, énergie moyenne des électrons deltas issus des fragments de fission. Malgré un flux conséquent d'électrons entrant dans le gaz, peu d'énergie lui est transféré, l'influence des gammas dans le gaz est donc restreinte.

# 6.2.5 Dégradation du gaz

Les produits de fission de l'uranium 235 sont répartis en deux familles, présentées comme les LFF et HFF. La distribution en continu de toutes les espèces chimiques présentes dans le tableau des éléments ajoute des polluants dans le gaz tampon de la chambre à fission, pouvant influencer la chimie du plasma froid.

Les travaux de [8] ont porté sur une étude analytique de l'impact du xénon — un des produits de fission les plus abondants— sur la cinétique du plasma froid d'une chambre à fission soumise classique soumise à un haut flux de neutron durant plusieurs semaines. Le xénon possède en effet une énergie d'ionisation inférieure à celle de l'argon : 12.13 eV contre 15.75 eV. Néanmoins, le xénon même radioactif reste un gaz noble, son potentiel d'ionisation figure nécessairement parmi les plus élevés du tableau des éléments puisque sa couche électronique externe est saturée.

Le cæsium, produit avec une fréquence similaire au xénon dans les réactions de fission, est en revanche un métal alcalin ayant le potentiel d'ionisation le plus bas des éléments connus : 3.89 eV. Le cæsium 137 est également un produit de fission ayant période radioactive moyenne —environ 30 ans— ce qui implique que sa population ne sera pas saturée dans un cycle de réacteur industriel (environ 2 ans), à l'inverse du xénon où quelques jours suffisent. La Fig. 6.7 présente les sections efficaces d'excitation de l'argon, du xénon et du cæsium.

www.lxcat.net 15 May 2020

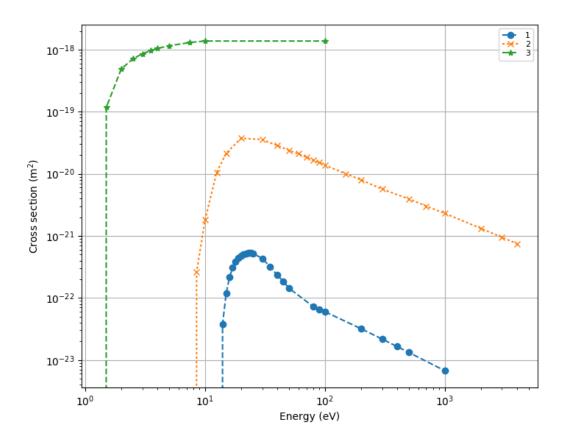


FIGURE 6.7 – Sections-efficaces d'excitation de différents éléments. Vert : niveau  $6^2P_{1/2}$  du Caesium (E = 1.39 eV) [9]. Jaune : somme des excitations du xenon (E = 8.32 eV) [10]. Bleu : niveau 2P10 de l'argon (E = 12.90 eV, émettant des photons à 912 nm) [7]. On note la très haute probabilité de peuplement des niveaux des polluants alcalins comme le sodium, plutôt que le gaz noble. Données compilées et mises en forme par LX-Cat [11].

Le rubidium, généré dans la famille des fragments légers pose le même problème : son occurrence est forte (1.38 %), son seuil d'ionisation n'est que de 4.18 eV. La période radioactive du rubidium 87 est de 4.92E+10 années, il va donc s'accumuler de la même façon que le rubidium 85 (stable) produit par décroissance du krypton 85.

Dans une chambre à fission prototype reprenant les dimensions vues en annexe D I, c'est alors une surface émissive S de 47 cm<sup>2</sup> et un volume de gaz  $V_c$  de 55 cm<sup>3</sup> à une pression  $P_c$  une atmosphère qui sont en jeu. La proportion d'ions lourds atteignant le gaz  $R_n$  est de 43%. De manière conservative, on estime la proportion totale de produits de fissions  $p_{pf}$  s'accumulant dans le gaz pendant deux ans (6.3E+7 s):

$$p_{pf} = p_{dep} \frac{S \ R_n \ 6.3 \text{E+7}}{V_c} \ \frac{K_b \ T}{P_c} = 3.11 \text{E-13} \eqno(6.5)$$

où  $K_b$  est la constante de Boltzmann.

Cette très faible proportion produira un effet négligeable sur la dynamique du plasma, malgré le fort pouvoir électropositif de certains fragments de fission. Une telle pollution du gaz le ferait néanmoins entrer dans la catégorie des gaz de pureté spectroscopique : au long de cette étude, aucun gaz utilisé n'avait une contamination inférieure à la dizaine de ppm, cela était cependant sans effet visible.

Le placement du SMN de ASTRID joue en faveur d'une faible pollution du gaz; un placement entre les aiguilles de combustible, où le flux atteint 1E+15n.cm<sup>2</sup>.s<sup>-1</sup> aurait non seulement épuisé la matière fissile, mais également largement pollué le gaz de chambre à fission, rendue inutilisable par fonctionnement électrique ou optique.

# 6.2.6 Réduction du signal fantôme

Lors d'un transitoire de puissance, deux mécanismes brident la dynamique d'un détecteur de neutrons basé sur une chambre à ionisation classique placé en pile;

- Lors de la brusque montée en puissance, le temps de collecte des charges induit un retard de plusieurs dizaines de nano-secondes jusqu'à la production d'une impulsion. La saturation due à la charge d'espace fixe le haut de la plage de détection.
- Lors d'une brusque baisse du flux de neutrons, la décroissance des radioisotopes générés dans l'enveloppe et les produits de fission va générer un signal fantôme masquant le faible flux de neutrons retardés si l'on fonctionne en régime courant.

Notons que l'interaction gamma pure avec le gaz est négligeable, et que sa capacité à éjecter des photo-électrons des structures est limitée aux très hauts flux, hors refroidissement.

Une chambre à fission optique n'ayant pas les problèmes du temps de collecte des électrons et de la charge d'espace, sa dynamique en montée de transitoire est —nous l'avons vu—excellente, la période de désexcitation d'une transition optique du gaz est de l'ordre de la nanoseconde. L'activation des matériaux et la décroissance de produits de fissions (particules bêta) sont évitables par de simples modifications ou la discrimination par hauteur d'impulsion. Une fine enveloppe en titane ne produira presque aucun rayon bêta et le bore comme matériau de conversion n'émettra plus de signal après irradiation.

### 6.2.7 Multiplexage - indice de spectre

L'absence de champ électrique dans une chambre à fission optique permet une grande liberté de géométrie, d'ordinaire cylindrique. Toute cellule ayant une distance caractéristique de l'ordre de grandeur du parcours d'un ion lourd dans le gaz est éligible à la mesure de neutrons, et des formes complexes augmentant sensiblement la masse déposée ou la captation de photons sont envisageables.

Le placement de plusieurs dépôts fissiles possédant des sections efficaces de réaction aux neutrons différents à l'intérieur d'une même enceinte est également plausible. Si une séparation empêche le passage des photons d'une cellule à une autre, on obtient alors une chambre à indice de spectre à la simplicité appréciable. Une esquisse d'un tel capteur, adapté de notre CANOE est présenté en annexe D II.

La collection des photons peut s'effectuer avec une seule, plusieurs fibres optiques ou encore à l'aide d'une fibre à maintien de polarisation. La discrimination des signaux est réalisable par trois moyens identifiés ici :

- Cellules étanches remplies de gaz différents, fibre unique. Discrimination spectrale.
- Cellules ouvertes baignant dans le même gaz, au moins deux fibres. Discrimination physique.
- Cellules ouvertes, filtres polarisants et une fibre à maintien de polarisation. Discrimination par plan de polarisation

L'indice de spectre est ainsi mesurable dans toute chambre à fission moyennant une complexité accrue du détecteur et un traitement du signal associé. Cette configuration est intéressante pour des mesures en pile de puissance nulle ou sur des sources de démarrage lors d'essais de commission. Une étude plus aboutie sur des cas de référence peut aider à la cartographie in-situ du taux de combustion des cœurs, par exemple.

# 6.3 Domaines d'application

La méthode de détection des neutrons par voie optique supprime trois points limitant les domaines d'application des chambres à fission actuelles :

Décharges partielles qui ne sauraient intervenir sans champ électrique

Charges d'espaces inexistantes puisque la distance inter-électrode n'existe plus

Sensibilité au bruit RF qui est sans effet sur les fibres optiques

Ce dernier point est d'intérêt pour les réacteurs à fusion thermonucléaire de type tokamak comme **ITER**, où des puissances pulsées de plusieurs dizaines de mégawatt RF sont situées à quelques centimètres des chambres à fission monitorant le taux de réactions neutrogènes.

Placées dans des couvertures tritigènes ou près de l'enceinte de confinement, les chambres à fission optiques supporteront le très fort champ électromagnétique ambiant, qu'il soit dans infrarouge ou le domaine RF.

Le temps mort des photo-détecteurs modernes—de l'ordre de la nanoseconde— peut se prêter à une utilisation pour l'étude de source de neutrons générés par impulsion laser de type LULI, **MÉGAJOULE** ou par spallation : **SONATE**, SINQ, ESS, MYRRHA.

Le suivi de divergence du faisceau d'accélérateurs de particules, comme le **GANIL**, peut être équipé de détecteurs optiques gazeux, multiplexables. Face aux chambres à fission classiques nécessitant un temps de migration des électrons entre les électrodes, un capteur de type CANOE pourra déclencher un système d'arrêt d'urgence en cas de collision du faisceau d'ion lourd avec l'enceinte de confinement.

Les faibles volumes nécessaires à la réalisation d'une cellule de chambre à fission optique, couplés aux faibles diamètres des fibres optiques permettent d'entrevoir un intérêt pour des mesures en cuve des petits réacteurs modulaires (PRM) ou des réacteurs de **propulsion navale**. La capacité d'auto-diagnostic en ligne renforce la disponibilité du capteur, et donc celles de ces réacteurs.

# Bibliographie

- [1] D. Bronzi, F. Villa, S. Tisa, A. Tosi, F. Zappa, SPAD figures of merit for photon-counting, photon-timing, and imaging applications: a review, IEEE Sensors Journal 16 (1) (2015) 3–12.
- [2] H. Photonics, Si photodiodes, Opto-Semiconductor Handbook (2013) 22–66.
- [3] F. Acerbi, S. Gundacker, Understanding and simulating SiPMs, Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section A: Accelerators, Spectrometers, Detectors and Associated Equipment 926 (2019) 16 35, silicon Photomultipliers: Technology, Characterisation and Applications. doi:https://doi.org/10.1016/j.nima.2018.11.118. URL http://www.sciencedirect.com/science/article/pii/S0168900218317704
- [4] S. Agostinelli, et al., GEANT4—a simulation toolkit, Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section A: Accelerators, Spectrometers, Detectors and Associated Equipment 506 (3) (2003) 250–303. doi:https://doi.org/10.1016/S0168-9002(03)01368-8.
  - URL https://www.sciencedirect.com/science/article/pii/S0168900203013688
- [5] J. Allison, et al., GEANT4 developments and applications, IEEE Transactions on Nuclear Science 53 (1) (2006) 270–278. doi:10.1109/TNS.2006.869826.
- [6] J. Allison, et al., Recent developments in GEANT4, Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section A: Accelerators, Spectrometers, Detectors and Associated Equipment 835 (2016) 186-225. doi:https://doi.org/10.1016/j.nima.2016.06.125. URL https://www.sciencedirect.com/science/article/pii/S0168900216306957
- [7] A. Yanguas-Gil, J. Cotrino, L. L. Alves, An update of argon inelastic cross sections for plasma discharges, Journal of Physics D: Applied Physics 38 (10) (2005) 1588.
- [8] S. Chabod, Development and modelling of fission chambers designed for high neutron fluxes: applications at the HFR reactor (ILL) and the MEGAPIE target (PSI), Ph.D. thesis, Université de Paris-Sud (2006).
- [9] N. Dyatko, I. Kochetov, A. Napartovich, A. Sukharev, EEDF: the software package for calculations of the electron energy distribution function in gas mixtures www.lxcat.laplace.univ-tlse.fr/software (2011).
- [10] W. Morgan, Kinema research & software, LLC http://www.kinema.com/sigmalib.dat (2003).
- [11] L. C. Pitchford, L. L. Alves, K. Bartschat, S. F. Biagi, M.-C. Bordage, I. Bray, C. E. Brion, M. J. Brunger, L. Campbell, A. Chachereau, et al., LXCat: an open-access, web-based platform for data needed for modeling low temperature plasmas, Plasma Processes and Polymers 14 (1-2) (2017) 1600098.

# Conclusion

La preuve de concept d'un système de mesure neutronique par mesure optique passive et capable d'autodiagnostic a été présentée. Des essais en conditions réacteur ont eu lieu, démontrant la supériorité de ce système en terme de dynamique, plage de mesure et simplicité de réalisation.

Une large partie des travaux de thèse ont porté sur l'étude des mécanismes de dépôt d'énergie dans un gaz rare par des ions lourds. Un banc d'essais nommé PSEG a fourni des spectres d'émission optique dans des conditions d'excitation similaires à celles de notre capteur irradié CANOE. Ces dispositifs polyvalents ont non seulement fourni des données de base pour l'élaboration d'un modèle, mais également permit l'évaluation de photodétecteurs et assemblées optiques.

Le plasma froid généré par le ralentissement d'ions lourds apparait fortement hors-équilibre et peu ionisé, mais sa dynamique d'excitation a pu être modélisée dans une suite de code de calculs nommée SCENA.

Une faible proportion des niveaux radiatifs peuplés peut mener à des désexcitations spontanées via l'émission de photons dans le proche-infrarouge, de l'ordre de quelques pourcents de l'intégralité des niveaux peuplés. La désexcitation du plasma froid, considérée dans un modèle coronaire aux hypothèses fortes, s'apparente satisfaisant pour une estimation du spectre d'émission des chambres à fission optique. Un raffinement pourra être apporté ultérieurement en considérant des mécanismes de plasma-chimie comme la désexcitation collisionnelle.

Cette émission de lumière peut être exploitée pour mesurer un flux de neutron dans un environnement très irradiant, comme le cœur d'un réacteur à spectre rapide, car c'est dans cette plage spectrale que la RIA est la plus faible pour les fibres optiques en silice.

La canalisation de photons dans une fibre optique induit une perte notable du signal optique, mais des voies d'optimisation ont été présentées, notamment par l'ajout de réseaux de fibres soudées, de montages optiques de collimation, ou d'assemblage de fibres optiques de grands diamètres. De précédentes études ont prouvé la tenue des fibres optiques à des champ mixtes plus intenses que ceux observables dans un réacteur à caloporteur sodium.

La puissance optique attendue en bout de fibre optique doit atteindre la dizaine de femtowatts

pour être détectable avec un bon rapport signal-sur-bruit par des photodiodes à avalanche surpolarisées refroidies par module Peltier (APD-Geiger), que nous recommandons pour la mesure de divergences.

Une telle puissance lumineuse peut être atteinte avec de faibles débits de fluence neutroniques (1E+9 n.cm<sup>-2</sup>.s<sup>-1</sup>) et des faibles masses d'uranium (quelques centaines de micro-grammes) déposées si une bonne collection des photons est réalisée, et que le spectre d'émission spontanée du gaz est centré sur le pic d'efficacité du photodétecteur.

L'utilisation du signal optique d'une chambre à fission peut renforcer la disponibilité de l'instrumentation des réacteurs électrogènes, améliorer la qualité des mesures effectuées, simplifier les systèmes de conditionnement et interprétation du signal et étendre le champ d'application des détecteurs gazeux aux grands instruments.

L'absence de phénomènes parasites dans une chambre à fission optique comme les charges d'espace permet d'augmenter sensiblement la dynamique de mesure d'un flux de neutron dans le cas d'un transitoire de puissance. Un système de mesure neutronique basé sur la scintillation de gaz rares est pertinent pour la caractérisation de transitoires de puissance et la mesure de sources pulsées. Le temps de vie des niveaux excités —quelques nanosecondes— est similaire au temps de réponse d'une chambre à ionisation classique miniature, sans l'impédance et la sensibilité au bruit radiofréquence de son conducteur.

La capacité d'auto-diagnostic en ligne a été démontrée, elle permet de mesurer la densité et la composition du gaz de remplissage d'une chambre à fission optique. Cette fonction unique permet de vérifier la bonne santé d'un capteur placé en cuve, et ainsi valider la mesure neutronique effectuée par une simple acquisition spectroscopique en ligne. Une maintenance préventive ou un rejet des mesures effectuées par un capteur de neutron optique jugé défaillant peut être actée sur la base signaux faibles, ce qui améliore sensiblement la fiabilité des mesures en réacteur.

Des recherches complémentaires sont nécessaires pour mieux juger de l'opportunité de cette technologie, et des améliorations de notre capteur sont réalisables avec un investissement restreint.

Parmi les évolutions identifiées, notons la possibilité d'obtenir un indice de spectre neutronique par l'utilisation de plus d'un type de matière fissile déposée dans le même capteur renforce son intérêt en physique expérimentale. La mise à l'étude d'un véritable hodoscope portable dans le cadre de l'expérience SAIGA prévue en 2023 démontre l'intérêt apporté à ce capteur innovant. Cette évolution de la chambre à fission optique utilisera cette fois le signal lumineux généré par une interaction élastique de neutrons rapides sur de l'hélium à haute pression, rejetant ainsi la contribution du cœur nourricier et la nécessité d'utiliser des matières nucléaires.

D'autres champs d'applications ont déjà été identifiés et les travaux entamés dans cette thèse de doctorat sont prorogés malgré l'abandon du projet initiateur, traduisant l'intérêt généré par cette innovation de rupture.



# Supplément au chapitre 2

I Code de calcul du spectre énergétique d'ions lourds en sortie de dépôt

```
SPECTRE IONS LOURDS
### FRAG code ###
### Spectrum of ions at solid/gas interface
clear all
close all
        = 1e8 ; "Incident neutron flux in /cm2/s, dummy value for alpha case.
flux
       Parameters for u235 in U308 fission
1.1.1.
%r_{-}f
       = 1e-3
                 ; % 235U Fission reactions per um and cm2 of coating per unit flux
\hookrightarrow of 25me V
%r_{f} = 2.71e-3; %235U Fission reactions per um and cm2 of coating per unit flux

    of 3.5me V

##r_f = 3.25e-5;
                       % 235U Fission reactions per um and cm2 of coating per unit flux
\hookrightarrow of SFR
##rangeH = 7.74
                       % Range of the heavy particle in micrometre
##rangeL = 10.04 ;
                        % Range of the light particle in micrometre
##EiH
      = 68e6
                       % Initial kinetic energy of heavy particle
##EiL
        = 99e6
                        % Initial kinetic energy of light particle
                        % Fitting coefficient for heavy particle
##nH
       = 1.65
                        % Fitting coefficient for light particle
       = 1.69
%%% Parameters for B10 in B4C n, alpha
       = 3.4e-2 ; % Fission reactions per um and cm2 of coating per unit flux of
##r_f

→ 25meV

\hookrightarrow RNR
```

```
% Range of the heavy particle in micrometre
   ##rangeH = 3.70
   ##rangeL = 1.04
                      % Range of the light particle in micrometre
   ##EiH
       = 1.495e6 ;
                     % Initial kinetic energy of heavy particle
         = 0.855e6 ;
                     % Initial kinetic energy of light particle
   ##EiL
   ##nH
         = 1.25
                     % Fitting coefficient for heavy particle
         = 1.25
                      % Fitting coefficient for light particle
   ##nL
   %%% Parameters for 238Pu alpha (heavy==light particle)
   r_f = 6.10E0; % Disintegrations per um and cm2 of coating per sec (set flux
   \hookrightarrow = 1E8)
   rangeH = 11.36
                  ;  % Range of the heavy particle in micrometre
                     % Range of the light particle in micrometre
   rangeL = 11.36
  EiH
       = 5.593e6
                     % Initial kinetic energy of heavy particle
32
   EiL = 5.593e6
                     % Initial kinetic energy of light particle
                ;
                     % Fitting coefficient for heavy particle
   nН
       = 0.74
34
       = 0.74
                     % Fitting coefficient for light particle
   nL
35
                 ;
36
       = [0.2 0.5 1 5 15];
   ft
                        % Fissile coating thickness in micrometre
37
   n_f = flux * r_f ; % Number of fission events per um and cm2 of coating at this
   \hookrightarrow given flux
   n_f = uint64(n_f); % Convert it to uint as high values are expected
39
   for i= 1:length(ft)
40
   RE
       41
   RD
       = rand(RE,1).*ft(i);  % Randon Depth of generation
42
       = 2*pi*rand(RE,1);
                       % Randon Phi angle of generation
   RР
43
       = RD./cos(RP); % Computed Random Length to travel
44
   RL(RL<0) = [] ;
                     % Remove non positive values (fragments going inside the coating)
45
46
      47
   48
   EoL(EoL==0) = [] ; % Remove particles that didnt make it up to the gas
49
   51
52
   53
   54
   EoH(EoH==0) = [] ; % Remove particles that didnt make it up to the gas
55
   56
   mH(i) = mean(EoH) ;  % Mean energy of the light particle at gas interface
57
58
   mT(i) = mean([mH(i) mL(i)]); % Overall mean energy of particles reaching the gas
59
   pT(i) = mean([pH(i) pL(i)]); % Overall proportion of particles reaching the gas
60
61
                     % Energy spectrum Total (both fragments)
62
        = [EoL; EoH] ;
                     % Overall Total deposited energy in the gas
   dT(i) = sum(EsT);
   65
   semilogy(C(i,:), 'LineWidth',3);
```

```
xlabel('Ion energy in eV');
    hold on;
    endfor
    legend(strcat('t = ',num2str(ft(:)),'um'));
    figure 2
    plot(ft, pT*100, 'LineWidth',3);
    title('Proportion of particles reaching the gas in percent');
    xlabel('layer thickness in um');
    ylabel('Proportion in percent');
    %xticklabels(ft);
76
    figure 3
77
    plot(ft,mT,'LineWidth',3);
    hold on
79
    plot(ft,mL,'LineWidth',2, ':g');
80
    plot(ft,mH,'LineWidth',2, ':r');
    title('Mean energy of particles reaching the gas');
    xlabel('layer thickness in um');
    ylabel('Energy in eV');
    %xticklabels(ft);
85
    figure 4
    plot(ft,dT,'LineWidth',3);
    title('Deposited energy in the gas');
    xlabel('layer thickness in um');
    ylabel('Energy in eV');
    %xticklabels(ft);
```

# II Code de calcul de la proportion de photons sortant du PSEG

```
PHOTONS
                                -----//
    "Lancement de alphas depuis un point central
    %À une distance R_e pondérée par la courbe de Bragg
    "Sur les angles theta_e et phi_e aléatoires sur 1 et 2 pi
    "Émission d'un photon sur deux angles aléatoires theta_p phi_p
    "Intersection par un disque diamètre R_h centré sur z_h, y_h et x(0)
    "Version 3: courbe de Bragg implementée en pondération
    "Version 4: Limites de la cuve, pour étude à basse pression
   "Wersion 5: Piliers de supports des disques limitant le volume actif
    "Version 6: Vectorisation
    "Wersion 7: Abandon de la boucle while pour un Monte-Carlo histo
    "Version 8: Ajout d'un découpage voxels pour publication
13
    clear all;
    clc;
14
    format shortEng;
15
16
```

```
"Constantes de conversion
    A_{to_mm} = 1e-7;
    Aev_to_MeVmm = 10;
    "Fonction de dépot d'énergie (Bragg Peak)
    R_max = 36.3;  % For display purpose only
22
   R_{lim} = 39.8;
                     % For display purpose only
   Pressure = 2;
                     % Gas pressure (density) in Atmss
   fid = fopen('He_in_Ar.dat', 'r');
   formatSpec = '%f';
   sizeA_ela = [2 Inf];
   fA = fscanf(fid,formatSpec, sizeA_ela);
   fclose(fid);
   A_{ela}(1,:) = fA(1,:);
    A_{ela}(1,:) = A_{ela}(1,:)*A_{to_mm.}/Pressure;
   A_{ela}(2,:) = fA(2,:);
   figure 1
34
   hold on;
   plot(A_ela(1,:),A_ela(2,:),'g.-','Linewidth',3); % Plot the Bragg peak from file
    "Données de base
   "TOUTES DISTANCES EN MM
    nb_alphas = 1e5; % Nombre d'alphas générés, max 1e7!!!!!!!!!
   y0h = 100;
                     % Distance centre pastille-hublot
    z0h = 5;
                     % Hauteur bas du hublot
41
42
   Rc = 45%62.50; % Rayon de la cuve (intérieur)
43
   Rh = 15;
                     % Rayon du hublot
44
                     % Rayon de la pastille
45
   Rd = 7.5;
   hu = 70.0;
                     % Hauteur maximum intérieur cuve
46
                      % Taille d'un voxel (coté en mm)
    nv = 1;
47
                     % Limite de la partie voxélisée depuis 0
   vmax = 50;
48
   %DE GUG
   BD = 0:
                     % Bonne Direction
50
   DC = 0;
                      % Dans la Cuve
   PC = 0;
                      % Photon Compté
52
53
   "Dessin de la limite de la cuve
54
   figure 2
55
   axis "equal"
56
    Cc = [0, 0, 0];  % centre de la cuve
   hold on
   teta = 0:0.1:2*pi ;
   xc = Cc(1) + Rc * cos(teta);
   yc = Cc(3) + Rc * sin(teta);
   zc = Cc(2) + zeros(size(xc));
62
   %patch(xc,yc,zc,'m')
```

```
%plot3(xc,yc,zc,'k')
     "Dessin du hublot cible
     Ch = [0, y0h, Rh+z0h];
                                % centre du hublot
     teta = 0:0.1:2*pi ;
     xh = Ch(1) + Rh * cos(teta);
     yh = Ch(2) + zeros(size(xh));
     zh = Ch(3) + Rh * sin(teta);
     %patch(xh, yh, zh, 'c');
     %plot3(Ch(1),Ch(2),Ch(3),'*b')
73
74
    % plan du hublot
75
     P1 = [xh(3), yh(3), zh(3)];
76
     P2 = [xh(10), yh(10), zh(10)];
77
     P3 = [xh(30), yh(30), zh(30)];
78
     %plot3(P1(1),P1(2),P1(3),'*r')
     %plot3(P2(1),P2(2),P2(3),'*r')
     %plot3(P3(1),P3(2),P3(3),'*r')
     N = cross(P2-P1,P3-P1);
82
                              % Normale au plan du hublot (trois points au hasard)
83
     "Dessin de la pastille émettrice
84
     85
     teta = 0:0.1:2*pi ;
86
     xd = Cd(1)+Rd*cos(teta);
     yd = Cd(3) + Rd * sin(teta);
     zd = Cd(2) + zeros(size(xd));
     %patch(xd,yd,zd,'k')
     %plot3(Cd(1),Cd(2),Cd(3),'*g')
91
92
     "Trait de la limite des ions sans cuve
93
     Cg = [0, 0, 0];  // centre de portee
94
     hold on
95
     teta = 0:0.1:2*pi ;
     xg = Cg(1) + (R_1im+Rd)*cos(teta);
97
     yg = Cg(3)+(R_lim+Rd)*sin(teta);
98
     zg = Cg(2) + zeros(size(xg));
99
     %patch(xc,yc,zc,'m')
100
     %plot3(xg,yg,zg, '--g')
101
     hold off
102
103
     [a,r,xs,ys,zs, rvals, theta_e, phi_e, R_e, b, xe, ye, xe, ze, ...
104
     xa, ya, za, DC, R_p, BD] = deal(zeros(1,nb_alphas));
105
106
     "Points de sortie des alphas de la pastille
     hold on
107
108
     a=2.*pi.*rand(1,nb_alphas);
     r=sqrt(rand(1,nb_alphas));
109
     xs=(Rd.*r).*cos(a);
```

```
ys=(Rd.*r).*sin(a);
111
     zs=zeros(1,nb_alphas);
     %plot3(xs, ys, zs, '*y');
113
     hold off
114
     "Émission des alphas (vecteur aléatoire et distance pondérée Bragg Peak);
115
     hold on
116
     rvals = rand(1,nb_alphas);
117
     theta_e = asin(rvals);
                                        % Angle theta des alphas (demi sphere)
118
     119
     d = 1:length(A_ela);
120
     w = A_{ela}(2,:);
121
    RN = rand(1,nb_alphas);
122
     [~,R] = histc(RN,cumsum([0;w(:)./sum(w)]));
123
     R = d(R);
124
     R_e = A_ela(1,R);
125
     [xe,ye,ze] = sph2cart(phi_e,theta_e,R_e);
126
                        % Décalage du à l'émission sur disque
127
     xa = xe + xs;
128
     ya = ye + ys;
129
     za = ze + zs;
130
     DC((((xa.^2+ya.^2).^0.5) < Rc) & (za < hu)) = 1;
131
     xa=xa(DC>0);
132
     ya=ya(DC>0);
133
     za=za(DC>0);
                        % Dans la Cuve
134
     %plot3(xa,ya,za,'*m');
135
     hold off
136
137
     "Enregistrement des points de naissance dans les voxels
     voxel_matrixX = linspace(-vmax,vmax,2*vmax/nv+1) ; % linspace des voxels (nv*nv*nv)
138
     voxel_matrixY = linspace(-vmax,vmax,2*vmax/nv+1) ; % linspace des voxels (nv*nv*nv)
139
     voxel_matrixZ = linspace(0, vmax, vmax/nv+1)
                                                        ; % linspace des voxels (nv*nv*nv)
140
     A_voxelX = histc(xa(:),voxel_matrixX(:))
                                                        ; % A histogram to store the counts of
141

→ electrons in each bins

142
     voxelA=zeros(length(voxel_matrixX),length(voxel_matrixY),length(voxel_matrixZ));
143
     for i=1:length(xa)
144
     voxelA(round((xa(i)+vmax)/nv)+1,round((ya(i)+vmax)/nv)+1,round((za(i))/nv)+1)= \dots
145
     voxelA(round((xa(i)+vmax)/nv)+1,round((ya(i)+vmax)/nv)+1,round((za(i))/nv)+1)+1;
146
147
     end
148
149
     %Émission de photons (vecteur aléatoire et portée infinie);
150
     hold on
151
     [theta_p, phi_p] = deal(zeros(1,sum(DC)));
152
     theta_p = asin(2*rand(1,sum(DC))-1);
153
154
     phi_p = 2.*pi.*rand(1,sum(DC));
     R_p = 100;
155
     [xp,yp,zp] = sph2cart(phi_p,theta_p,R_p);
```

```
% Décalage du à l'émission sur disque
157
     xp = xp + xa;
     yp = yp + ya;
     zp = zp + za;
     to_show = find(zp > 0); %Condition pour l'affichage uniquement (on vire si le photon
     161
     hold off
162
163
     "Calcul de l'intersection vecteur photon et surface hublot
164
     Q1 = [xa; ya; za];
165
     Q2 = [xp; yp; zp]';
166
     BD = zeros(1,length(Q1));
167
     %On vérifie que le vecteur parte bien dans la direction y
168
     BD(Q2(:,2)-Q1(:,2) > 0) = 1;
169
     Q1=Q1.*BD';
170
     Q1=Q1(any(Q1,2),:);
171
     Q2=Q2.*BD';
172
     Q2=Q2(any(Q2,2),:);
173
    N = N.*(ones(sum(BD),1));
174
    P1 = P1.*(ones(sum(BD),1));
175
     PC = zeros(1,sum(BD));
176
     P0 = Q1 + dot(P1-Q1,N,2)./dot(Q2-Q1,N,2).*(Q2-Q1); % Intersection plan vectour
177
     desax = ones(1,length(P0)) * (z0h+Rh);
178
     Rhm = ones(1,length(P0)) * Rh;
179
     PC (P0(:,1).^2+(P0(:,3) - desax^1).^2 < Rhm^1.^2)=1;
180
     printf("\n %d photons crossed the hatch", sum(PC));
181
182
     printf("\n %d alphas were generated in the deposit", nb_alphas);
     printf("\n %d photons were created inside the vessel", sum(DC));
183
     printf("\nThat's %d per cents photons recovered\n",(sum(PC)*100/sum(DC)));
184
     % Enregistrement des voxels
185
     printf("\nSaving voxels...\n",(sum(PC)*100/sum(DC)));
186
     fprintf(fich,'z coord, y coord, x coord, scalar\n');
187
     for i=1:size(voxelA,3)
188
     for j=1:size(voxelA,2)
189
     for k=1:size(voxelA,1)
190
     fprintf(fich, '%f, %f, %f, %f\n', i, j, k, voxelA(k, j, i));
191
     end
192
     end
193
194
     printf("\n0ver\n",(sum(PC)*100/sum(DC)));
195
     fclose(fich);
196
```

# III Code de calcul du facteur de correction en réponse du spectromètre

```
%----- BLACKBODY -----%
    clear all;
    clc:
    %R(T)/R(ambiante) = -0.52427113 + 0.00466128*T + 2.842071810e-7*T^2%
5
    printf("Computing the efficiency correction curve for spectrometry \n\n\n");
    printf("Please select the calibration file... \n");
    calibration_file = uigetfile;
    OriginalIntensity = csvread(calibration_file);
    OriginalIntensity = OriginalIntensity(2:end,2);
10
    OriginalBins = csvread(calibration_file);
11
    OriginalBins = OriginalBins(2:end,1);
12
13
    HiB = length(OriginalBins);
14
    LoW = OriginalBins(1);
15
    HiW = OriginalBins(end);
16
    printf('Lower wavelength of calibration is (in nm): \t %u \n', LoW);
    printf('Upper wavelength of calibration is(in nm): \t %u \n', HiW);
18
    T = str2num(inputdlg('Filament temperature? (in K)'){1});
19
    Grating = (inputdlg('Grating number ?'){1});
20
21
    Experimental_resized = OriginalIntensity./max(OriginalIntensity);
22
    h = 6.62607015e-34;
24
    c = 299792458;
    kb =1.38064852e-23;
    lambda = OriginalBins;
    A = 2*h*c^2./(lambda.*1e-9).^5 .* (1 ./(exp(h.*c./((lambda.*1e-9).*kb.*T))-1));
    A_{resized} = A./max(A);
    hold on
    figure 1
    plot(lambda, A_resized, '-r');
    plot(lambda, Experimental_resized, '-b');
    title('Calibration file and theoretical emission')
    xlabel('Wavelength (nm)')
    ylabel('Intensity (AU)')
    hold off
38
    ##Correction_curve = A_resized./Experimental_resized;
    ##Correction_curve = Correction_curve./max(Correction_curve);
41
    Correction_curve = A_resized -Experimental_resized;
42
    figure 2
```

```
hold on

plot(lambda, Correction_curve, '-g');

##plot(lambda, Correction_curve.*Experimental_resized, 'm');

plot(lambda, Correction_curve.+Experimental_resized, 'm');

title('Correction file')

xlabel('Wavelength (nm)')

ylabel('Correction (AU)')

printf('Saving the correction file.... \n');

Correction_file(size(Correction_curve), 2) = 0;

Correction_file(:,1) = lambda;

Correction_file(:,2) = Correction_curve;

filename = strcat('Correction_file_Grating', Grating, '.csv');

csvwrite(filename, Correction_file);

printf('\n\n... Done. Good bye!');
```

# IV Code de calcul de la correction en réponse du spectromètre

```
%----- EFFICIENCY -----%
    clear all;
    clc;
    printf("Correction of spectrometer's response \n\n\n");
    printf("Please select the efficiency CORRECTION file... \n");
    correction_file = uigetfile;
    Correction_curve = csvread(correction_file);
    printf("Please select the DATA file... \n");
    data_file = uigetfile;
    Original_data = csvread(data_file,0,1);
    Original_bins = csvread(data_file,0,0);
    Original_bins (1,:) = [];
    Original_bins (:,2) = [];
    Original_data (1,:) = [];
    printf("Please select the DARK spectrum file... \n");
    dark_file = uigetfile;
    dark_spectrum = csvread(dark_file,1,1);
    Original_data = Original_data - dark_spectrum;
19
20
    ##printf("How long was the acquisition step time (in mins) ? \n");
21
    ##Time_dark = inputdlg('How long was the dark time (in mins) ? ','Time?');
    ##Time_original = str2num(Time_dark{1,1});
    ##Time_step = inputdlg('How long was the acquisition step time (in mins) ? ','Time?');
    ##Time_new = str2num(Time_step{1,1});
25
26
```

```
HiB = length(Original_data);
    LoW = Original_bins(1,1);
    HiW = Original_bins(end,1);
    printf('Lower wavelength of spetrum is (in nm): \t %u \n', LoW);
    printf('Upper wavelength of spectrum is(in nm): \t %u \n', HiW);
    Original_data = Original_data./max(Original_data);
    Correction_curve(:,2) = Correction_curve(:,2)./max(Correction_curve(:,2));
35
    fitLambda = interp1(Correction_curve(:,1),Correction_curve(:,2),Original_bins,'nearest')';
36
37
    Data_corrected(:,1) = Original_bins(:,1);
    #Data_corrected(:,2) =

    fitLambda.*(Original_data-mode(dark_spectrum./Time_original.*Time_new));
    ##Data_corrected(:,2) = fitLambda'.*(Original_data);
    Data_corrected(:,2) = fitLambda'.+(Original_data);
    Data_corrected (:,2) = Data_corrected(:,2)+ abs(min(Data_corrected(:,2))); % Shift
    printf('Saving the plot to file...\n');
43
    csvwrite(strcat('Corrected_',data_file), Data_corrected);
44
    printf('Done\n');
46
    hold on
47
    figure 1
48
    plot(Data_corrected(:,1),Data_corrected(:,2), '-b');
    plot(Data_corrected(:,1),Original_data,'-r');
    title('Raw and efficiency corrected spectra')
51
    xlabel('Wavelength (nm)')
    ylabel('Intensity (AU)')
    hold off
54
55
    ##Corrected_file(size(Correction_curve),2) = 0;
56
    ##Corrected_file(:,1) = lambda;
57
    ##Corrected_file(:,2) = Correction_curve;
    ##csvwrite('Correctied_spectrum.csv', Correction_file);
```

# V Routine de détection et intégration de pics d'émissions

```
printf("/Finding peaks and their areas from optical spectroscopy spectra/\n");
    printf("Please select the spectra file(csv file)... \n");
    spectrum_file = uigetfile;
    spectrum = csvread(spectrum_file);
    % Now, get the baseline slope (no need for polynoms so far)
                                          ; % Get the lower baseline
    LowB = mean(spectrum(1:10,2))
    HiB = mean(spectrum(end-10:end,2))
                                          ; % get the upper baseline
    baseline = (HiB-LowB)/(length(spectrum)) ; % Compute the slope of the baseline
17
    deter = linspace(1,length(spectrum), length(spectrum))*baseline+LowB ;  # Index the baseline
    spectrum(:,2) -= deter(:)
                                           ; % Remove the baseline from the spectrum
    round(spectrum(:,2))
                                           ; % Round the values around the baseline to zero
    v = spectrum(:,2) ; % Create a dummy values array for the next step
    \nabla (\Delta < 0) = 0
                ; % Eject any negative value
                   ; % Truncate the crumbs left (anything below 1 is gone)
    v = fix(v)
    spectrum(:,2) = v ;  % Copy this vector to replace spectrum values
    % Identify the peaks
    trigger = 20
                ; % The discrimination factor, in fraction of the highest peak
    per = max(spectrum(:,2))/trigger ; % Percentage of peak detection based on max
    → value of the most intense peak
                    ; % Minimum distance between peaks (also set the max width for
    mindis = 30

→ discrimination)

    \hookrightarrow the findpeaks function to detect anything above trigger of max peak
    peaks (:,1) = spectrum(loc,1)
                                   ; % Location of the peaks (should look like
    \rightarrow wavelengths)
   peaks (:,2) = pks ; % Intensity of the peaks
    peaks_m = zeros(length(loc),5)
                                    ; % Create a peak matrix with their
    \hookrightarrow characteristics
    "/Index | "Wavelength | "Intensity | "Lower bin | "Upper bin | "Area |
   peaks_m(:,1) = loc ;  % Fill the first column with spectrum index
    peaks_m(:,2) = spectrum(loc,1)
                                           ; % Fill the first column with the corresponding
    \hookrightarrow wavelength
    % Look for the left and right side of the curves & get area (no peak side more than 20 bins
    \hookrightarrow away)
                                           ; % No way to vectorize this function : (
    for(i=1:length(loc))
    [r,~]=find(spectrum(loc(i)-mindis:loc(i)+mindis,2)>0); % Find when we have something around

    the peak bigger than the noise

   ls = loc(i)-mindis+r(1)
                                          ; % Set the left side of the peak
    peaks_m(i,3) = spectrum(ls,1)
                                          ; % Record in the Matrix as wavelength
   Ms(1,i) = 1s; % Record in a matrix as bin index
    rs = loc(i)-mindis+r(end)
                                           ; % Set the right side of the peak
   Ms(2,i) = rs; % Record in a matrix as bin index
    peaks_m(i,4) = spectrum(rs,1)
                                         ; % Record in the Matrix
45
    % Now if a left/right side is used twice, find the minimum between those 2 peaks
```

```
for (i=1:length(loc)-1)
                                              % Loop around the peaks (length of loc)
    if(Ms(1,i+1) == Ms(1,i))
                                               ; % If the left side of peak 1 is also the one
    \hookrightarrow of peak 2
    [~,g] = min(spectrum(loc(i):loc(i+1),2)) ; % The right side of peak 1 is now the minima
    \hookrightarrow betwwen the 2 close peaks
    Ms(2,i) = loc(i)+g
                                              ; "Copy this in terms of energy bins
    [~,h] = min(spectrum(loc(i):loc(i+1),2)) ; % The left side of peak 2 is now the minima
    \hookrightarrow betwwen the 2 close peaks
    Ms(1,i+1) = loc(i)+g
                                              ; % Copy this in terms of energy bins
    endif
    peaks_m(i,5) = sum(spectrum(Ms(1,i):Ms(2,i),2));

→ peak's area

    peaks_m(:,3) = spectrum(Ms(1,:),1)
                                              ; % Copy the peaks_m bound values with updated
    \hookrightarrow values
    peaks_m(:,4) = spectrum(Ms(2,:),1);
    peaks_m(:,6) = spectrum(peaks_m(:,1),2)
                                              ; % Maxima of the peak
    peaks_m(:,7) = peaks_m(:,5)./peaks_m(:,6); % Ratio area/peak
    \%peaks_m(:,5) = sum(spectrum(ls:rs,2))
                                            ; % Just a raw integral for faster results
    % Compute the FWHM
62
63
    % Save and display the data
64
    fprintf("\nIndex nb \t Wavelength \t Left wl \t Right wl \t Area \t Maxima \t Area/max \n");
65
    peaks_m
66
    figure 1
67
    hold on
    plot(spectrum(:,1), spectrum(:,2))
                                             ; % Plot the filtered spectrum
    plot(peaks_m(:,3),0,'*r');
    plot(peaks_m(:,4),0,'*g');
71
    plot(peaks_m(:,2),pks(:),'*b');
72
73
    printf('Saving the plot to file...\n');
74
    csvwrite('Peaks_data.csv', peaks_m);
75
    %plot(spectrum(Ms, 1), 'r*');
76
    %plot(spectrum(loc,1),'b*');
    hold off
```

#### VI Routine de générations de graphiques de Botlzmann

```
1 %------%
2 %Routine to load peaks, load NIST lines data and plot Boltzmann graphs
3
4 ### Console clearing and loading physical constants ###
```

```
clc
       clear all
       h = 6.626e - 34;
       c = 2.998e + 8;
       ### Let's import the data first ###
       printf("// Ploting Boltzmann Graphs from optical spectroscopy data files //\n");
       printf("Please select the PEAKS data file(csv file)... \n");
       peaks_file = uigetfile;
14
       peaks = csvread(peaks_file)
                                                                           ; "Let's import the data first, a csv file should
       peaks(:,2) = fix(peaks(:,2))
                                                                         ; % Fix the wavelengths for identification as
       \rightarrow Octave doesn't have ismembertol implemented yet
       17
       printf("Lines database should be in the form: wl | RI | Aki | Ei | Ek | gi | gk \n");
       printf("Please select the NIST data file(csv file)... \n");
       nist_file = uigetfile()
                                                                           ; % Get the Einstein coefficients and decay scheme
       \hookrightarrow from the NIST file in ASCII
       ### Re-modelling the NIST file and keep only useful data ###
      A_coefs = dlmread(nist_file, '|''-', 6, 0); " This is the original matrix from the Nist, it

    needs to be reshaped

      A_coefs( ~any(A_coefs,2), : ) = [] ; % Remove empty rows due to the ---- separators
       \hookrightarrow from the file
      A_coefs(:, ~any(A_coefs,1)) = [] ; % Remove empty column due to useless data from
       \hookrightarrow the file
       A_coefs((A_coefs(:,2)<1000),:) = [] ; % Remove insignificant lines (low relative
       \hookrightarrow intensity)
       A_{coefs}(:,1) = fix(A_{coefs}(:,1))
                                                                      ; % Fix the wavelengths for identification
26
       ### Locate the elements of the Peaks that are registred in the NIST ###
27
       [Lia,LocP]=ismember(A_coefs(:,1),peaks(:,1)); % Find elements of peaks that are in the NIST
        → lines database
       A_coefs(:,8) = 0 ; % Add a column in the Coefs matrix to add the corresponding peak area
29
       LocP = LocP+1; % Add one to each element as matlab arrays start at 1
30
       peaks = [zeros(1,columns(peaks));peaks] ; % Add a row to the peaks with empty data
31
      A_{coefs}(:,8) = peaks(LocP,4)
                                                                         ; % Add the corresponding peak area to the
32
        A_{coefs}(A_{coefs}(:,8)==0,:)=[]
                                                                            ; % Trim non-detected peaks and data
33
       A_{coefs}(A_{coefs}(:,8) < max(A_{coefs}(:,8)) * 0.3,:) = []; % Trim peaks with a low value of the coefs (:,8) < max(A_{coefs}(:,8)) * 0.3,:) = []; % Trim peaks with a low value of the coefs (:,8) < max(A_{coefs}(:,8)) * 0.3,:) = []; % Trim peaks with a low value of the coefs (:,8) < max(A_{coefs}(:,8)) * 0.3,:) = []; % Trim peaks with a low value of the coefs (:,8) * 0.3,:) = []; % Trim peaks with a low value of the coefs (:,8) * 0.3,:) = []; % Trim peaks with a low value of the coefs (:,8) * 0.3,:) = []; % Trim peaks with a low value of the coefs (:,8) * 0.3,:) = []; % Trim peaks with a low value of the coefs (:,8) * 0.3,:) = []; % Trim peaks with a low value of the coefs (:,8) * 0.3,:) = []; % Trim peaks with a low value of the coefs (:,8) * 0.3,:) = []; % Trim peaks with a low value of the coefs (:,8) * 0.3,:) = []; % Trim peaks with a low value of the coefs (:,8) * 0.3,:) = []; % Trim peaks with a low value of the coefs (:,8) * 0.3,:) = []; % Trim peaks with a low value of the coefs (:,8) * 0.3,:) = []; % Trim peaks with a low value of the coefs (:,8) * 0.3,:) = []; % Trim peaks with a low value of the coefs (:,8) * 0.3,:) = []; % Trim peaks with a low value of the coefs (:,8) * 0.3,:) = []; % Trim peaks with a low value of the coefs (:,8) * 0.3,:) = []; % Trim peaks with a low value of the coefs (:,8) * 0.3,:) = []; % Trim peaks with a low value of the coefs (:,8) * 0.3,:) = []; % Trim peaks with a low value of the coefs (:,8) * 0.3,:) = []; % Trim peaks with a low value of the coefs (:,8) * 0.3,:) = []; % Trim peaks with a low value of the coefs (:,8) * 0.3,:) = []; % Trim peaks with a low value of the coefs (:,8) * 0.3,:) = []; % Trim peaks with a low value of the coefs (:,8) * 0.3,:) = []; % Trim peaks with a low value of the coefs (:,8) * 0.3,:) = []; % Trim peaks with a low value of the coefs (:,8) * 0.3,:) = []; % Trim peaks with a low value of the coefs (:,8) * 0.3,:) = []; % Trim peaks (:,8) * 0.3,:) = []; % Trim peaks (:,8) * 0.3,:] * 0.3,:] * 0.3,:] * 0.3,:] * 0.3,:] * 0.3,:] * 0.3,:] * 0.3,:]
34
       ### Compute Boltzmann coeficients ###
35
       BP = BP = log((A_coefs(:,1).*A_coefs(:,8))./(h.*c.*A_coefs(:,3).*A_coefs(:,7)));
36
       P = polyfit(A_coefs(:,5), BP,1)
                                                                      ; % Linear fit for temperature determination
37
       yfit = P(1)*(A_coefs(:,5))+P(2)
                                                                         ; % The Line
38
39
40
       figure 1
41
       plot(A_coefs(:,5), BP,'*k')
```

```
g_name = strcat("Boltzmann Plot of Ar ", nist_file);
hold on

plot(A_coefs(:,5), yfit, 'k-') ;

#title(g_name);
xlabel("Upper level energy (eV)");
ylabel("ln(\lambda I/hcAg)");
```

#### VII Résultats du code de calcul du spectre d'ions lourds en sortie de dépôt, pour des matières réactives aux neutrons

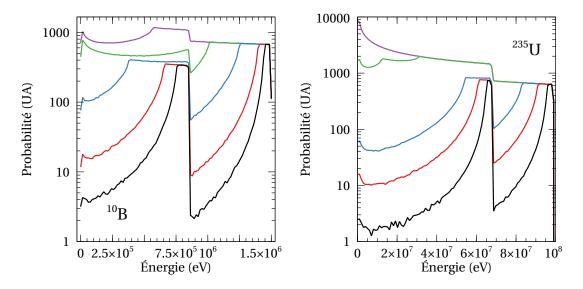


FIGURE A.1 – Spectre des ions lourds en sortie de dépôt réactifs aux neutrons en fonction de son épaisseur.

Gauche: bore de 0.1 (noir), 0.2 (rouge), 0.5 (bleu), 1 (vert), 5 (violet) μm. Droite: uranium de 0.2 (noir), 0.5 (rouge), 1 (bleu), 5 (vert), 15 (violet) μm.

## VIII Vue éclatée du dispositif PSEG

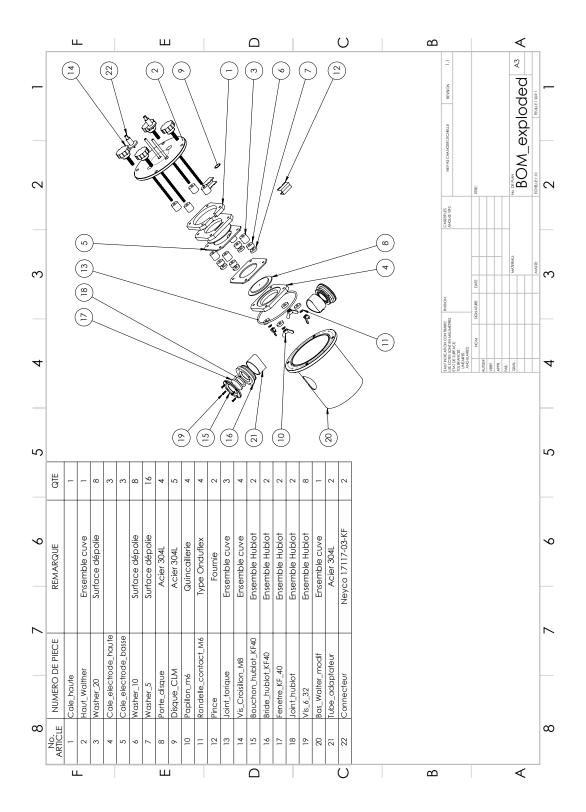


FIGURE A.2 – Vue éclatée du PSEG avant sa mise en fabrication. La nomenclature sur la gauche comprend des pièces fabriquées avec notre imprimante 3D, et des pièces de quincaillerie standard.



## Supplément au chapitre 4

I Code de calcul de la proportion de photons canalisée dans une fibre optique

```
PHOTONS CYLINDER -----%
close all
clear all
format short eng
"Données de base
"TOUTES DISTANCES EN MM
              = 1e10
                                                              % Incident neutron flux en
flux
\hookrightarrow /cm2/s.
             = 3.25e-5
                                                        % 235U Fission reactions par um et

→ cm2 of coating per unit flux of SFR

Edep = 169e6;
                                    % Energie produite par chaque fission (dépot fin =
\hookrightarrow 169/2 MeV)
W_{exc} = 68
                                             % W-excitation du gaz tampon (68eV pour Argon)
N_photons = flux*r_f*Edep/W_exc; % Nombre de photons sources generes/cm2 de depot
Prop = 1e-12;  // Facteur de réduction du nombre de particules à simuler (max 1E7)
Rc = [25];
                                 % Rayon de la cuve (interieur) en millimétres
Rf = 20;
                                       % Rayon du hublot/fibre en millimètres
                                           % Ouverture numérique de la fibre optiqu
NA = 0.2;
                                % Longueur Active U2/Pu/B10 en millimètres
hu = [ 100 ];
Pressure = [1];
                                 % Gas pressure in Atms
fA = dlmread('LFF_Ar_1atm.dat', '\t'); % Fichier indiquant le nb d'electron generés/mm
\hookrightarrow parcouru
sizeA_ela = [2 Inf];
A_{to_mm} = 1e-10;
```

```
Aev_to_MeVmm = 10;
22
    iterations = 1;
    for(j=1:length(Rc))
                                    % Distance cul du detecteur-fibre en millimètre
    z0h = hu+100;
    SC = 2*Rc(j)/10*pi*hu/10;
                                         % Surface active en cm2
    nb\_alphas = floor(SC*N\_photons); % Nombre de particules sources (toutes directions), on
    \hookrightarrow considere que 1FF = 1 photon, la normalisation se fait plus loin
    printf('\nNombre de photons potentiellement generables/sec dans cette configuration:
    nb_alphas = uint64(nb_alphas*Prop);
                                                       " Réduction du nombre de sources
    for(i=1:iterations)
                                                     % i est le nombre d'itérations du calculs
31

→ (Octave plante avec 1E7 particules)
    "Dessin de la limite de la cuve
32
33
    hold on
    grid on
35
    axis "equal"
    [xc, yc, zc] = cylinder ([Rc(j) Rc(j)]);
    zc(end,:) = hu;
    surf(xc,yc,zc, 'FaceAlpha',0.3,'EdgeColor' , 'none');
    img = imread('up.jpg');
40
    img = double(img)/255;
41
    xImage = [-Rc(j)*1.4 Rc(j)*1.4; -Rc(j)*1.4 Rc(j)*1.4];  %# The x data for the image corners
42
    zImage = [-z0h*1.2 -z0h*1.2; -z0h*1.2 -z0h*1.2];
                                                                %# The y data for the image
    \hookrightarrow corners
    zImage = [-10 -10; -10 -10];
                                            %# The y data for the image corners
    45
    46
    'cdata',img,...
47
    'FaceColor', 'texturemap', 'FaceAlpha', 0.5);
48
    \mathtt{set}(\mathtt{gca}, \texttt{'XLim'}, [-\mathtt{Rc}(j)*1.4 \ \mathtt{Rc}(j)*1.4], \texttt{'YLim'}, [-\mathtt{Rc}(j)*1.4 \ \mathtt{Rc}(j)*1.4], \texttt{'ZLim'}, [-10 \ \mathtt{z0h}*1.2]);
49
    *Dessin de la fibre optique (partie conductrice)
    hold on
51
    Ch = [0, 0, z0h];
                                               % centre du hublot
52
    teta = 0:0.1:2*pi ;
53
    xf = Ch(1) + Rf * cos(teta);
    yf = Ch(2) + Rf * sin(teta) ;
55
    zf = Ch(3) + zeros(size(xf));
    patch(xf,yf,zf,'c');
    plot3(Ch(1),Ch(2),Ch(3),'*p');
58
60
    % Cone d'acceptance de la fibre optique
    rk = linspace(0, tan(asin(NA))*z0h, 10);
    thk = linspace(0,1*pi,10);
    z0k = z0h+(Rf*tan(asin(NA)*2));
                                               % Point de depart du cone (vertex)
63
    [Rk,Tk] = meshgrid(rk,thk);
```

```
Xk = Rk.*cos(Tk);
     Yk = Rk.*sin(Tk);
     Zk = -Rk./tan(asin(NA));
     surf(Xk,Yk,Zk+z0h,'FaceAlpha',0.5,'EdgeColor', 'none');
     % Plan de la fibre optique (utilisé pour le calcul final)
70
     P1 = [xf(3), yf(3), zf(3)];
71
     P2 = [xf(10), yf(10), zf(10)];
     P3 = [xf(30), yf(30), zf(30)];
     plot3(P1(1),P1(2),P1(3),'*r')
     plot3(P2(1),P2(2),P2(3),'*r')
     plot3(P3(1),P3(2),P3(3),'*r')
     N = cross(P2-P1,P3-P1);
                                                 % Normale au plan de la fibre (trois points au
     \rightarrow has ard)
78
     % Generation de particules sur la surface émetrice (cylindre)
79
     % Pre-calcul du rayon de génération de l'atome de gaz excité
80
     d = 1:length(fA);
81
82
     RN = rand(1,nb_alphas);
     if(Pressure >=1)
     fR2 = interp1(colon(1,length(fA)),fA,colon(1,floor(length(fA)/Pressure)));
     → Ajustement de la courbe à la pression positive demandée
     endif
85
     fR2=fR2/(sum(fR2));
     fR = fA./sum(fA); % Fonction de distribution normalisée de l'énergie en fonction du trajet de
     \hookrightarrow l'ion
     [\tilde{R}] = histc(RN, cumsum([0; fR2(:)./sum(fR2)]));
     R = d(R);
                              % Rayon aléatoire pondéré d'émission (depuis ligne centrale)
89
90
     1.1.1.
                Position initiale sur le cylindre des points de sortie des fragments
91
     ze = rand(1,nb_alphas).*hu;
                                                  % Hauteur aléatoire de génération (CYLINDRICAL)
92
     te = rand(1,nb_alphas).*2*pi;
                                         % Angle Theta aléatoire de génération (CYLINDRICAL
93

    → depuis ligne centrale)

                                          ", Rayon aléatoire pondéré d'émission (depuis cylindre)
     re = ones(1,length(te))*Rc(j);
     [xe,ye,ze] = pol2cart(te,re,ze); % Coordonnées des points d'émission des photons depuis la
     → lique centrale
     scatter3(xe,ye,ze,'d', 'MarkerEdgeColor','g','filled','MarkerFaceColor',
                               <>>< PLOT points de départ fragments
     \hookrightarrow 'g');
                     %
     //// Envoi des particules depuis la surface du cylindre, suivant angle aléatoire
     ta = asin(2*rand(1,nb_alphas)-1); "Angle d'émission de l'ion lourd aléatoire
     pa = 2.*pi.*rand(1,nb_alphas);
                                              % Angle d'émission de l'ion lourd aléatoire
100
     ra = R;
                                     % Distance entre le cyclindre et le point d'émission des
101
     \hookrightarrow photons
102
     [xa,ya,za] = sph2cart(ta,pa,ra); % Coordonnées des points d'émission des photons depuis la

→ ligne centrale

     xa = xa + xe;
                           % Décalage du à la distance de vol libre du fragment
```

```
" Décalage du  à la distance de vol libre du fragment
104
         ya = ya + ye;
                                              % Décalage du à la distance de vol libre du fragment
         za = za + ze;
         \hookrightarrow (normalement moins de 50%)
         scatter3(xa,ya,za, 'd', 'MarkerEdgeColor','b', 'filled','MarkerFaceColor',
                                   → 'b'): //
         plot3([xa; xe],[ya; ye],[za; ze],'b');
                                                                                   % <<<<< PLOT
108
109
110
         %Emission de photons (vecteur aléatoire et portée infinie);
         theta_p = asin(2*rand(1,nb_alphas)-1);
                                                                                   % Angle d'émission des photons
111
         phi_p = 2.*pi.*rand(1,nb_alphas); // Angle d'émission des photons
112
                                       % Longueur fictive, uniquement pour affichage
         R_p = hu*1.2;
113
         [xp,yp,zp] = sph2cart(phi_p,theta_p,R_p);
114
         xp = xp + xa;
                                                                                % Décalage du à l'émission sur disque
115
116
         yp = yp + ya;
         zp = zp + za;
117
         %to_show = find(zp-za>0)
                                                                           ; "Condition pour l'affichage uniquement (on vire si
118
          → le photon traverse le plancher)
119
         %to_show = 1:nb_alphas;
                                                               % Pour montrer tout le monde
         \protect\protect\protect\protect\protect\protect\protect\protect\protect\protect\protect\protect\protect\protect\protect\protect\protect\protect\protect\protect\protect\protect\protect\protect\protect\protect\protect\protect\protect\protect\protect\protect\protect\protect\protect\protect\protect\protect\protect\protect\protect\protect\protect\protect\protect\protect\protect\protect\protect\protect\protect\protect\protect\protect\protect\protect\protect\protect\protect\protect\protect\protect\protect\protect\protect\protect\protect\protect\protect\protect\protect\protect\protect\protect\protect\protect\protect\protect\protect\protect\protect\protect\protect\protect\protect\protect\protect\protect\protect\protect\protect\protect\protect\protect\protect\protect\protect\protect\protect\protect\protect\protect\protect\protect\protect\protect\protect\protect\protect\protect\protect\protect\protect\protect\protect\protect\protect\protect\protect\protect\protect\protect\protect\protect\protect\protect\protect\protect\protect\protect\protect\protect\protect\protect\protect\protect\protect\protect\protect\protect\protect\protect\protect\protect\protect\protect\protect\protect\protect\protect\protect\protect\protect\protect\protect\protect\protect\protect\protect\protect\protect\protect\protect\protect\protect\protect\protect\protect\protect\protect\protect\protect\protect\protect\protect\protect\protect\protect\protect\protect\protect\protect\protect\protect\protect\protect\protect\protect\protect\protect\protect\protect\protect\protect\protect\protect\protect\protect\protect\protect\protect\protect\protect\protect\protect\protect\protect\protect\protect\protect\protect\protect\protect\protect\protect\protect\protect\protect\protect\protect\protect\protect\protect\protect\protect\protect\protect\protect\protect\protect\protect\protect\protect\protect\protect\protect\protect\protect\protect\protect\protect\protect\protect\protect\protect\protect\protect\protect\protect\protect\protect\protect\protect\protect\protect\pro
120
          \hookrightarrow zp(to\_show)], 'r');
                                                           % <<<<< PLOT
         xlabel('X AXIS >>>');
121
         ylabel('Y AXIS >>>');
122
         zlabel('Z AXIS >>>');
123
124
         "Calcul de l'intersection vecteur photon et surface fibrée
125
126
         Q1 = [xa; ya; za];
         Q2 = [xp; yp; zp]';
127
         BD = zeros(1,length(Q1));
128
         PC = zeros(1,length(Q1));
129
         P1 = P1.*(ones(length(Q1),1));
130
         N = N.*(ones(length(Q1),1));
131
         PO = Q1 + dot(P1-Q1,N,2)./dot(Q2-Q1,N,2).*(Q2-Q1);
                                                                                                        % Intersection plan vecteur
132
133
         "Verification si photon a été émit depuis l'intérieur du cone d'acceptance
134
         135
136
         %Rhm = ones(1, length(P0)) * Rf;
137
         PC (P0(:,1).^2+P0(:,2).^2 < Rf^2)=1;
138
139
        Idf= find(PC>0)
                                                             ; % Index des photons partant vers le tube
         PCF= Idf(zp(Idf)-za(Idf)>0) ;
                                                                                      % Index des photons (...) et vers la fibre
140
         PCF2 =PCF(xa(PCF).^2+ya(PCF).^2<Rcone(PCF).^2);  // Index des photons (...) et émits

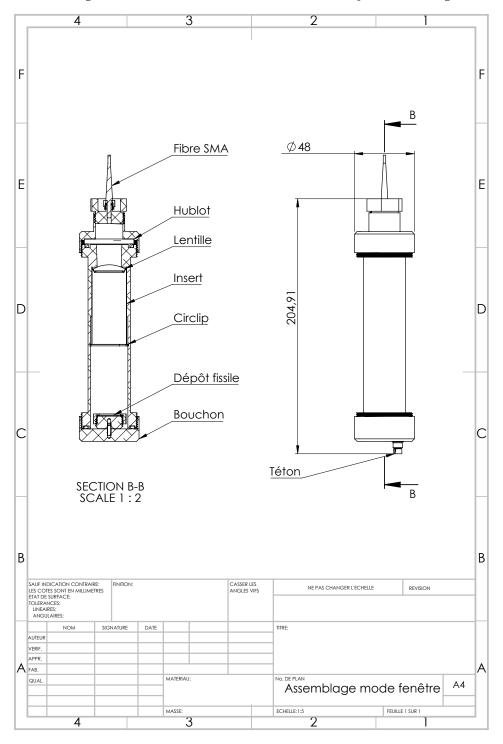
→ depuis le cone d'acceptance

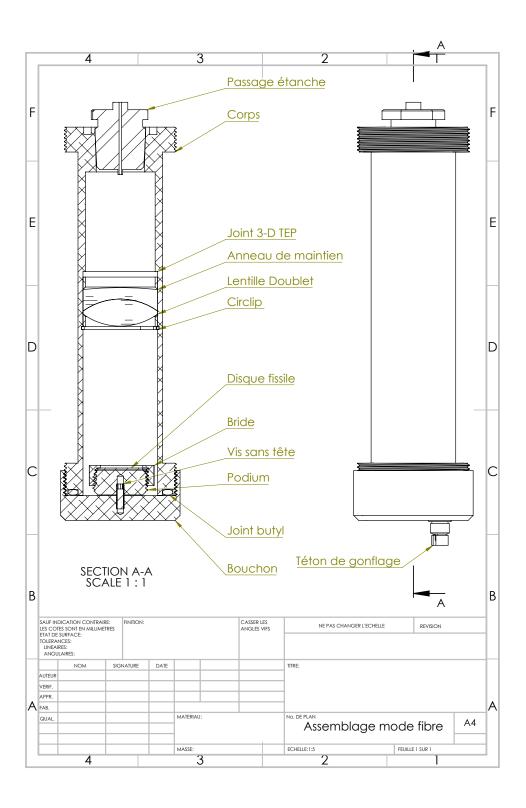
        PCF2 = PCF2(xa(PCF2).^2+ya(PCF2).^2<Rc(j).^2 & za(PCF2)>0 & za(PCF2)<hu); % Index des
          → photons (...) et émits depuis l'intérieur du tube!
        %to_show = PCF2;
143
        to_show = 1:nb_alphas; // Pour montrer tout le monde
```

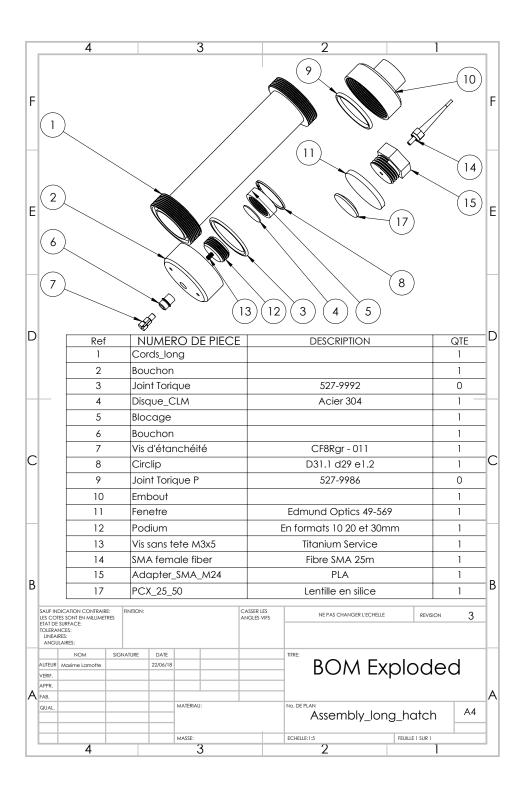
```
axis "equal"
145
     plot3([xa(to_show); xp(to_show)],[ya(to_show); yp(to_show)],[za(to_show);

    zp(to_show)],'r');
                                    % <<<<<
                                               PLOT
     ratio_gaz(i) = DC/single(nb_alphas)*100;
147
     proportion(i) = length(PCF2)/DC;
     nb_canalise(i) = length(PCF2)/Prop;
149
     endfor
150
     av_ratioGaz(j) = mean(ratio_gaz);
151
                                  = mean(proportion);
     av_prop(j)
152
     av_canalise(j) = mean(nb_canalise);
153
     printf('\nProportion d''energie restituee au gaz en pct:\t%1.1f\n',av_ratioGaz(j));
154
     printf('\nProportion de photons recouvrés par la fibre / générés dans le cylindre
     \rightarrow :\t\%1.2e\n',av_prop(j));
     printf('\nNombre de photons captés par la fibre :\t%1.2e\n',av_canalise(j));
156
     endfor
157
```

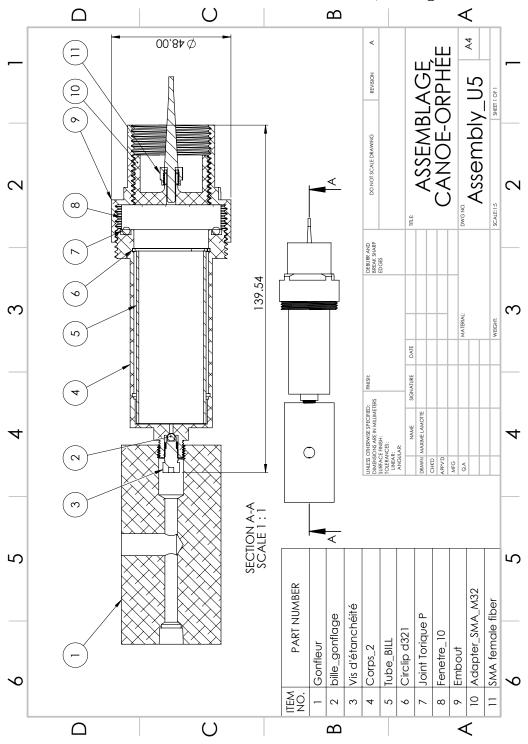
## II Plans de la première version de CANOE jamais exploitée







## III Plans de la seconde version de CANOE, chargé en bore



#### IV Résultats des mesures d'absorption des fibres

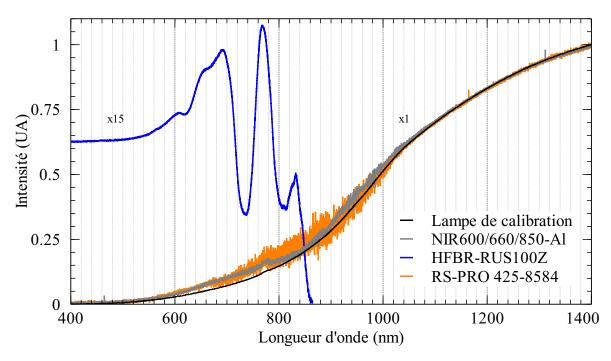


FIGURE B.1 – Spectres d'une lampe à ruban de tungstène vue à travers deux mètres de fibre optique. On note une très forte atténuation du signal dans la fibre en plastique PMMA ainsi que des bandes d'absorption autour de 735 nm et 810 nm. Les valeurs sont données en unités relatives à cause d'une correction logicielle intrinsèque au spectromètre.

#### V Données techniques du SPAD Hamamatsu C1300-01

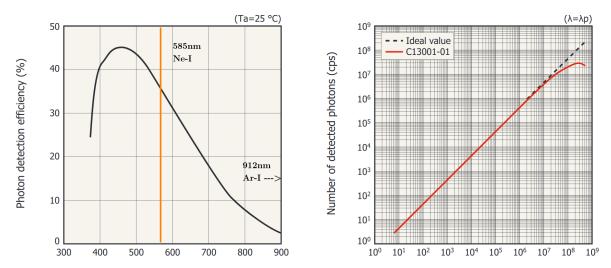


FIGURE B.2 – Gauche : efficacité de détection du SPAD C13001-01 en fonction de la longueur d'onde des photons incidents. Les raies les plus intenses de l'argon et du néon sont annotées pour justifier le choix du néon.

Droite : courbe de réponse du SPAD en fonction du débit de fluence incident. On note une déviation de la linéarité de la réponse dès 1E+6 cps en sortie et une saturation autour de 3E+7 cps.

#### VI Acquisition de spectre par fibre optique avant irradiation



FIGURE B.3 – CANOE chargé en  $^{238}$ Pu et en argon pour des expériences hors flux. Une fibre optique EO-58-397 canalise les photons émis dans le gaz vers le spectromètre dont la fente d'entrée est réglée grande ouverte. On identifie clairement le spectre d'émission de l'argon sous forme de taches.

#### VII Image spectrale conduite par fibre optique

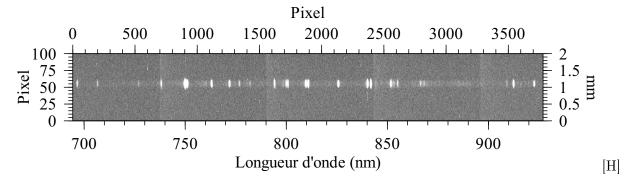


FIGURE B.4 – Image en sortie du capteur CCD obtenue après 20 minutes de pose. On note des taches blanches du même diamètre que la fibre optique RS-PRO 425-8584 utilisée, soit 200 µm. CANOE était rempli d'une atmosphère d'argon et excité par la pastille de 1.8 mg de <sup>238</sup>Pu utilisée dans le PSEG. L'efficacité de détection du système optique n'est pas corrigée, ainsi, la raie à 912 nm est plus intense qu'elle n'apparait sur l'image. Le rapport largeur/hauteur de l'image a été modifié pour l'édition du document.

#### VIII Images brutes issues de la première irradiation

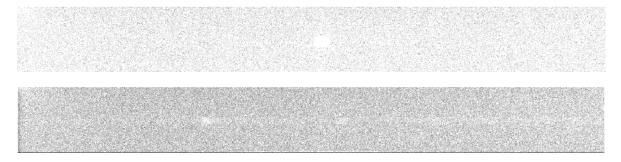


FIGURE B.5 – Haut : image en sortie du capteur CCD obtenue après 20 minutes de pose, l'ordre zéro du réseau de diffraction est utilisé pour mesurer l'intensité lumineuse totale. On note une tache blanche du même diamètre que la fibre optique RS-PRO 425-8584.

Bas : image du capteur CCD obtenue après une nuit de pose, on note deux taches identifiées à 750 nm et 763 nm, qui correspond aux désexcitations des niveaux  ${}^2P_1$ et ${}^2P_6$  de l'Ar I.

#### IX Sensibilité d'un SiPM à la température ambiante

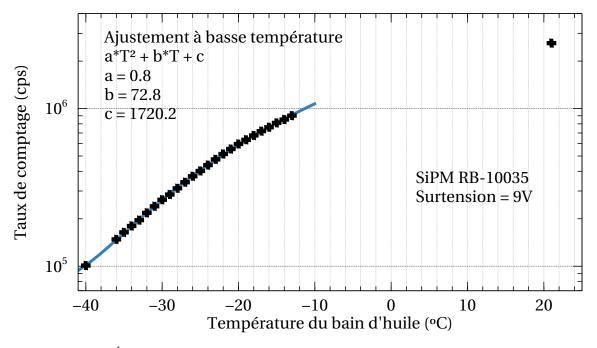


FIGURE B.6 – Évolution du taux de comptage d'obscurité d'un SiPM ONS RB-10035 en fonction de sa température. L'alimentation stabilisée étant également plongée dans le bain d'huile, il n'était pas possible de modifier sa valeur une fois l'ensemble scellé. La tension d'avalanche du SiPM évoluant avec la température du milieu, le taux de comptage ne pu être relevé qu'une fois la température ambiante permettant l'avalanche. Le point à 21 °fut mesuré pour U=39~V.

#### X Essais de discrimination du signal par PHA

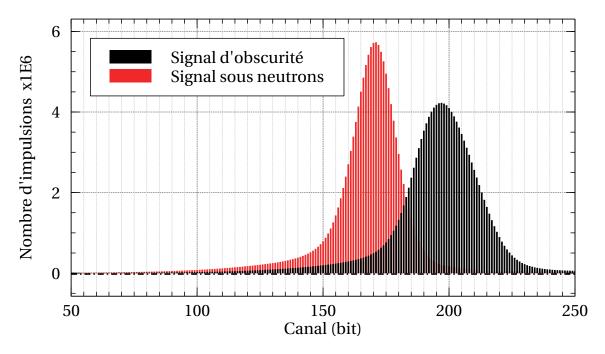


FIGURE B.7 – Histogrammes des hauteurs d'impulsions en sortie du SiPM RB refroidi à - 40 °Cavec et sans neutrons impactant CANOE. L'intégrale des signaux est strictement égale, traduisant l'acquisition de bruit de mesure.

#### XI Images brutes du spectromètre

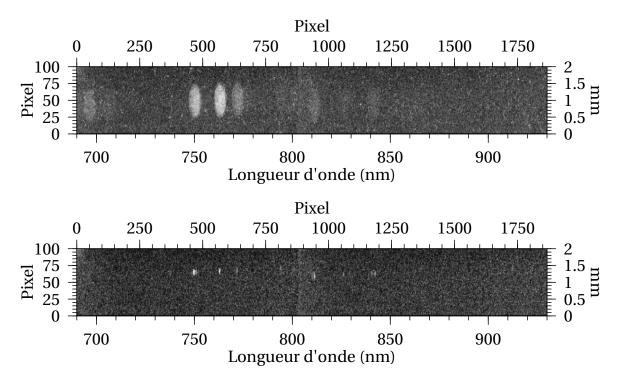


FIGURE B.8 – Images en sortie du capteur CCD obtenues après 10 heures de pose durant l'irradiation de CANOE chargé au bore au cours de la seconde campagne à ORPHÉE. On note une collection de la lumière bien supérieure avec la fibre plastique HFBR-RUS100Z de 1 mm de diamètre, que la fibre silice RS-PRO 425-8584 de 200  $\mu m$  (bas). Le rapport largeur/hauteur de l'image a été modifié pour l'édition du document.

#### XII Spectres d'émission sous flux de neutron

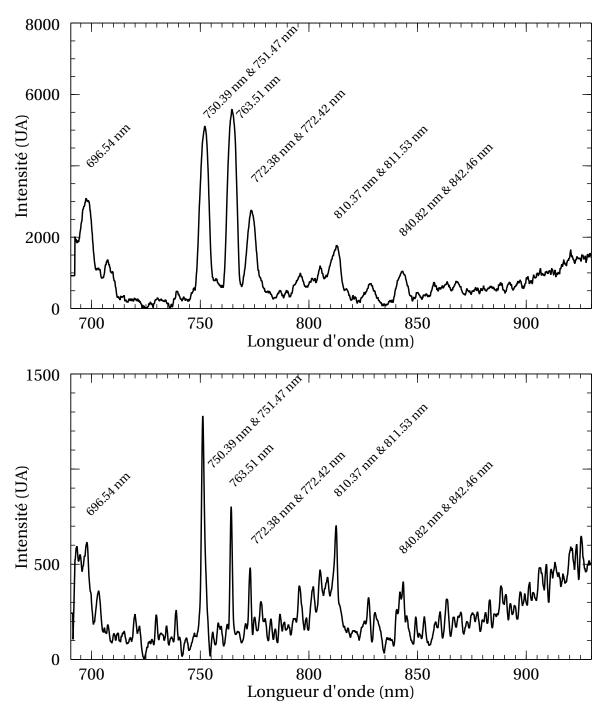


FIGURE B.9 – Somme des intensités le long des rangées des images issues du capteur CCD vues Fig. XI. L'efficacité quantique du spectromètre et de la caméra CCD a été corrigée. Un lissage par moyenne mobile sur 15 et 8 échantillons a été appliqué. On note des rapports d'intensité différents entre la fibre plastique de 1 mm de diamètre et la fibre silice de 200  $\mu$ m (bas). La forte absorption de la zone spectrale rouge dans la fibre plastique semble expliquer ce résultat.

## XIII Montage pneumatique de terrain

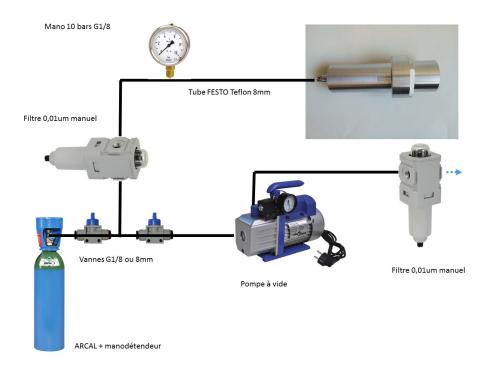


FIGURE B.10 – Schéma du système de vidange et remplissage en gaz rares utilisé lors de la seconde et troisième campagne de mesure sur ORPHÉE.



## Supplément au chapitre 5

#### I Création et validation d'un modèle FLUKA de l'expérience menée sur CABRI

FLUKA est un code Monte-Carlo de transport de particules et radiations gérant les décroissances radioactives de façon semi-analogique ou active. Il est principalement employé pour des études de calorimétrie, de production de radio-éléments et de radioprotection. FLUKA est capable en une seule simulation d'estimer l'évolution temporelle de l'activation du dépôt, mais également la dose reçue par le gaz due aux rayonnements gammas émis depuis l'enveloppe métallique et les produits de fission.

Notre simulation comprend une géométrie représentative de CANOE, associée à des dosimètres or et cobalt dans un environnement vide, comme visible sur la Fig. C.1.

Les activités radionucléides présents dans le dépôt sont comptabilisées et triées dans des histogrammes à différents temps de recensement. FLUKA ne gère pas le transport des fragments de fission, et on considérera donc que l'intégralité des produits de fission reste prisonnière du dépôt.

Parmi les «cartes» d'entrée, dont l'intégralité est présentée en annexe III, notons celles permettant une analyse temporelle :

- **IRRPROFIle** décrit le débit de fluence et le temps d'irradiation : spectre APIC à côté de l'hodoscope durant un pallier de chauffe suivi d'un transitoire de puissance.
- **RADDECAY** demande la prise en compte de la décroissance radioactive dans la simulation de manière active (Monte-Carlo)
- **RESNUCLEi** est un estimateur renseignant sur la nature et l'activité des isotopes à des temps de recensement donnés
- **USRTRACK** renseigne le spectre bêta et gamma traversant le gaz par estimation de longueur de traces
- USRBIN estime l'énergie déposée dans l'intégralité du gaz tampon aux temps de recensements choisis

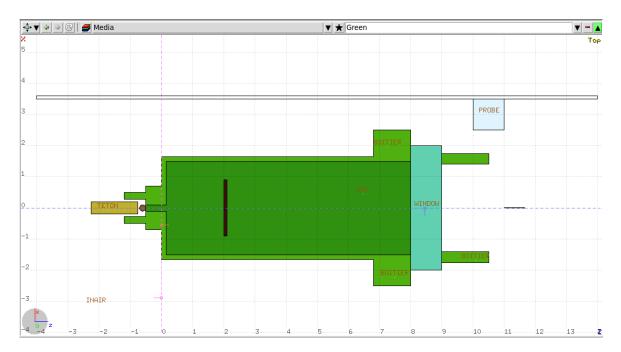


FIGURE C.1 – Vue de la géométrie représentative de CANOE. Certains détails comme les pas de vis ont été omis, mais les masses restent scrupuleusement les mêmes que celles du capteur réel. Le volume PROBE analyse le spectre des neutrons le traversant avant interaction sur CANOE.

**DCYSCORE** oriente les différents temps de recensement DCYSCORE vers les estimateurs RESNUCLEI, USRTRACK et USRBIN

On estime la fluence reçue sur l'échantillon en considérant le transitoire comme décrit par une Gaussienne tel que :

$$\phi(x) = a \exp -4 \log 2 (x - b)^2 / w^2$$
 (C.1)

avec pour paramètre a = 21.6 GW\*1.38E+12 n.cm $^{-2}$ .s $^{-1}$ .MW $^{-1}$  w = 8.95 ms. L'intégrale du débit de fluence lors du transitoire est alors :

$$\Phi_{mulse} = \sqrt{2} \ a \ |c| \sqrt{\pi} \tag{C.2}$$

où c = w/2.3582. On obtient ainsi une fluence durant le pic de puissance de 2.71E+16 n.cm<sup>-2</sup> À nouveau, on utilise le code FLUKA, mais en décrivant une irradiation équivalente à celles effectuées pour les mesures dosimétriques lors de la commission du réacteur :

- 1. Palier de divergence à 100 kW pendant 4 minutes
- 2. Transitoire de puissance produisant 2.81E+14 n.cm<sup>-2</sup>
- 3. Palier de refroidissement à 100 MW pendant 135 ms

Le spectre neutronique d'entrée est lui décrit par les travaux de simulation de [1] [2], normalisé par les mesures d'activation de [3].

On propose ici d'estimer un débit de fluence équivalent thermique pur à partir des informations obtenues par dosimétrie d'activation de fils d'or et de cobalt, à une puissance de 100 kW durant

45 minutes (270 MJ):

$$\phi_{25.3meV} = \frac{A_{Au}}{\sigma_{25.3meV} \ N_{dos} \ T_{irr} \ \lambda_{Au}}$$
 (C.3)

L'activité mesurée à l'emplacement de CANOE étant d'environ 1.91E+5 Bq/mg, on en déduit un débit de fluence monoenergétique équivalent de 7.89E+10  $n_{25.3\text{meV}}.\text{cm}^{-2}.\text{s}^{-1}$  à 100 kW. Parce que le spectre neutronique à l'emplacement d'irradiation est fortement thermalisé mais présentant d'importantes résonances, l'utilisation d'une fonction de distribution cumulative en entrée de FLUKA sur-générerai des particules de haute énergie, peu utile à notre étude. Afin de simuler correctement le spectre neutronique à l'emplacement de mesure avec FLUKA, nous optons pour la méthode dite de bande «tape» similaire à celle exploitée lors de calculs de criticalité sur MCNP. À l'intérieur de la bande se trouve des énergies de neutrons, piochées aléatoirement à chaque appel de particule. La proportion de particules d'énergie donnée dans cette bande reproduit scrupuleusement l'allure de la courbe du spectre. La routine servant à la génération de cette bande de longueur variable fut écrite en script Octave, et est présentée en annexe II.

Pour assurer une meilleur représentativité des neutrons dans la bande, une distribution aléatoire à l'intérieur de chaque intervalle d'énergie est appliquée par un second nombre aléatoire. Une comparaison des deux techniques implémentées par mes soins dans un fichier source est présenté ci-après :

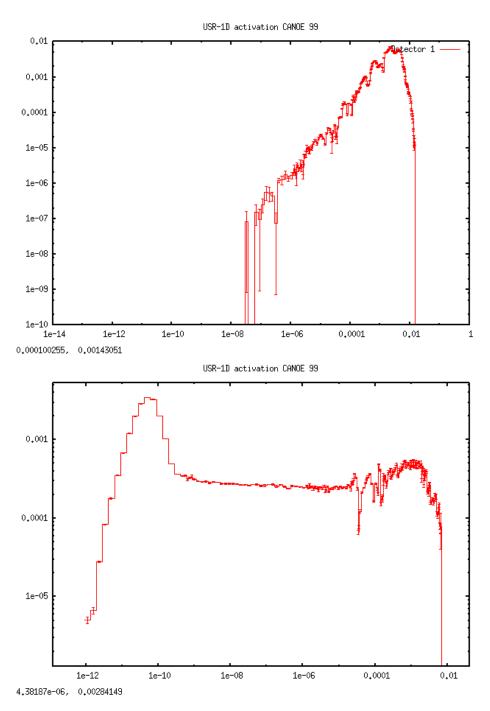


FIGURE C.2 – Spectre des neutrons ayant traversé le volume «probe» suivant une méthode de génération des neutrons basée sur la fonction cumulative de probabilité (haut), et en utilisant un fichier de neutrons sources échantillonnés (bas). Dans les deux cas, 1E+6 particules sources sont générées, avec un temps de calcul de 2 et 3 minutes, respectivement. On note une surreprésentation des neutrons à haute énergie dans le cas de la méthode de fonction probabilité cumulée.

Parce qu'un écart de l'ordre de 30 % a été mis en évidence lors des mesures d'activa-

|    | S7.89E+11 th        |                     | S9.20E-              | S9.20E+10 sim |  | P2.47E+16 sim         |                      | P2.2E+16 th          |                    |
|----|---------------------|---------------------|----------------------|---------------|--|-----------------------|----------------------|----------------------|--------------------|
|    | Calcul              | FLUKA               | Mesure               | FLUKA         |  | Mesure                | FLUKA                | Calcul               | FLUKA              |
| Au | 1.915E+5            | 1.914E+5            | 1.915E+5             | 1.901E+5      |  | 2.14E+5               | 2.153E+5             | 2.30E+5              | 2.40E+5            |
| Co | $2.96 \mathtt{E+2}$ | $3.10 \mathtt{E+2}$ | $3.15\mathrm{E}{+2}$ | 1.88E+ $2$    |  | $3.73 \mathrm{E}{+2}$ | $1.47\mathrm{E}{+2}$ | $1.41\mathrm{E}{+2}$ | $2.17\mathrm{E+2}$ |

TABLE C.1 – Débits de fluence mesurés et estimés à l'emplacement d'irradiation en considérant un spectre monoenergétique à 25.3 meV (th) et complet (sim) en irradiation à puissance stationnaire durant 2700 s (S) ou pulsée (P) avec une LMH de 8.95 ms (P). Les activités estimées par FLUKA présentent une incertitude de 4.1 % et 6.1 % pour l'or et le cobalt, respectivement.

tion, le débit de fluence du transitoire calculé est ramené à 2.63E+14 n.cm<sup>-2</sup>.s<sup>-1</sup> à puissance maximale afin de réduire l'écart avec les mesures des dosimètres or et cobalt. L'énergie déposée dans le gaz est analysée à plusieurs temps de recensement, ainsi que le spectre et le flux bêta et gamma traversant le néon. Pour mieux identifier la contribution de l'enveloppe et des produits de fission au dépôt d'énergie, l'uranium du dépôt est remplacé par du néon dans une simulation. Un fil d'or épais de 100 µm placé à côté de CANOE assure le suivi do-simétrique de la simulation, et son activité spécifique est comparée aux valeurs expérimentales.

# II Routine de génération d'une «source tape» pour FLUKA à partir d'un flux MCNP/TRIPOLI

```
MC_TAPE
    % Routine to produce a random energy source tape given a wide log distribution
   % Version implemented in FORTRAN file source_tape.f
    clear all;
    A = dlmread('flx_cote.dat','\t');
                                   % Open the flux distribution file
    eA = A(:,1).*1e-9
                                     % Energy bin, take care of units (FLUKA = GeV)
    eA(end+1) = A(end, 2).*1e-9
                                      % Add an extra bin at the end
   fA = A(:,end)
                                      % Flux in this given bin == weight
   NIm = 1E7
                                      % Sampling population
   pEEDM = 0
                                      % Output sample
10
11
   d = 1:length(eA)
                                      % Vector with indexes
12
   RN = rand(1,NIm)
                                      % Random Numbers for sampling
13
    [",R] = histc(RN,cumsum([0;fA(:)./sum(fA)])); " Count the occurence of the RN in the
14
    R = d(R)
                                 : % Replace the index
15
   pEEDM = eA(R)
                                 ; % Matrix filled with discrete bin energies
16
   17
    pEEDM = eA(indexE) + (eA(indexE+1)-eA(indexE)) .* rand(NIm,1); % Generate random numbers
    → between 2 bins to smooth final spectrum
```

```
%loglog(eA,histc(pEEDM,eA)) ; % Spectrum plot
fileID = fopen('tape.dat','w') ; % Create an output file
fprintf(fileID, ' %2.2E\n',pEEDM(:)) ; % Fill it with the tape
fclose(fileID) ; % Close it
```

#### III Carte d'entrée de FLUKA, simulant CANOE dans CABRI

```
TITLE
   Activation_CANOE
   DEFAULTS
                                                                  PRECISIO
    * Mandatory yet useless card for external source. Don't change energy: gives tally upper bin
           -0.02 0.0 100. 1. 1.
    * 1: half X 2: half Y 3: half Z
             5: NA 6: NA
    * 7: xpos 8: ypos 9: zpos 10: logical unit
   * 11: nb samples
   SOURCE
                 0.0
                           2.5
                                   10.
                                          0.0
                                                      0.0
                                                               0.0tape
                            0.0
                                             98.
   SOURCE
                  4.
                                    8.
    * Un petit angle d'attaque permet de lecher la plaquette fissile (pas de divergence

    faisceau)

   BEAMPOS
                                            -0.85 0.0
                                                                  NEGATIVE
   #if 0
    OPEN
                 18.
                                                                  OLD
   the
   #endif
   GEOBEGIN
                                                                  COMBNAME
    0 0
                  CANOE
20
    * Bodies
22
    * -----
   * Blackhole to include geometry
            0.0 0.0 0.0 10000.
   SPH BLK
   RPP PROBE
               3. 4. -0.5 0.5 10. 11.
   * Void sphere
^{27}
   SPH VOID
               0.0 0.0 0.0 1000.
                0.0 0.0 0.0 0.0 0.0 0.15 1.65
   RCC cul
   RCC envlp1 0.0 0.0 0.15 0.0 0.0 7.85 1.65
   RCC envlp2 0.0 0.0 0.15 0.0 0.0 7.85 1.5
31
                0.0 0.0 6.8 0.0 0.0 1.2 2.5
   RCC envlp3
                0.0 0.0 0.15 0.0 0.0 -0.65 0.1
   RCC envlp4
   RCC neck
               0.0 0.0 0.0 0.0 0.0 -0.5 0.7
34
   RCC SThread 0.0 0.0 -0.5 0.0 0.0 -0.7 0.5
35
   RCC SThreadI 0.0 0.0 -1.2 0.0 0.0 0.7 0.275
```

```
RCC conduit 0.0 0.0 9. 0.0 0.0 1.5 1.75
    RCC conduit1 0.0 0.0 9. 0.0 0.0 1.5 1.4
                 0.0 0.0 -2.25 0.0 0.0 1.5 0.20
    RCC teton
                  0.0 0.0 2. 0.0 0.0 0.1 0.9
    RCC piece
    * Dépôt U308 d'épaisseur variable. Diametre 15mm comme dans CANOE
                  0.0 0.0 2.1 0.0 0.0 0.00005 0.75
    RCC depot
                  0.0 0.0 8. 0.0 0.0 1. 2.
43
    RCC window
    * Dosimetre fil d'or 100um diametre masse 1mg
    * Résultat Reisnuclei == activite Bq/mg
    RCC dosi_or 0.0 0.0 11. 0.0 0.0 0.654 0.005
    * Dosimetre fil cobalt 0.25 \, \mathrm{mm} diametre masse 1 \, \mathrm{mg} == 0.231 \, \mathrm{cm} Hz
    * Résultat Reisnuclei == activite Bq/mg
    RCC dosi_co 0.0 0.5 11. 0.0 0.0 0.231 0.0125
49
    SPH bille
                  0.0 0.0 -0.60 0.1
    * This is a dummy blackhole to stop neutrons, leave it outside the geometry!
    SPH blkh1 0.0 0.0 4. 30.
    SPH blkh2 0.0 0.0 4. 29.
54
    END
55
56
    * Regions
57
     * -----
58
59
    * Blackhole
60
                 5 +BLK -VOID +blkh1 -blkh2
    BLKHOLE
61
62
63
     * Air around target
                 5 +VOID -teton -piece -depot -window -cul -envlp1 -envlp2 -envlp3
    -neck -SThread -SThreadI -bille -conduit +blkh2 -dosi_or -dosi_co -PROBE
    +SThreadI-teton -bille
    +conduit1
    +VOID -blkh1
68
69
    * Body of CANOE
70
    BOITIER
                 5 | +cul -envlp4
71
    +envlp1 -envlp2
72
    +envlp3 -envlp2 -envlp1
73
    +neck -envlp4
74
    +SThread -SThreadI
75
    +conduit -conduit1
    -piece -depot
77
    * Window
    WINDOW 5 +window
    * Filling nipple
           5 +teton
    TETON
    * Gas filling of CANOE
```

```
5 +envlp2-cul -piece -depot
     GAS
     +envlp4
84
     * Porte_depot
85
     SUPPORT
                  5 +piece
86
87
     * Porte_depot
     DEPOT
                  5 +depot
     * Porte_depot
     BILLE
                 5 +bille
     * Dosimetre Or
     DOSI_OR
                5 +dosi_or
     * Dosimetre Cobalt
     DOSI_CO 5 +dosi_co
     * Dosimetre air (spectre neutrons)
                 5 +PROBE
     PROBE
     END
     GEOEND
     COMPOUND
                                                                          NITROGEN
                                         2.7
100
     MATERIAL
                                                                          AL6061
101
     COMPOUND
                   -96. ALUMINUM
                                       -1.2 MAGNESIU
                                                          -0.8
                                                                   SILICONAL6061
                                        -0.4
                    -0.7
                                                                      ZINCAL6061
     COMPOUND
                               IRON
                                                COPPER
                                                           -0.25
102
     COMPOUND
                    -0.15 TITANIUM
                                        -0.15 MANGANES
                                                           -0.35 CHROMIUMAL6061
103
                                         2.7
     MATERIAL
                                                                          Si02
104
                                         2.
     COMPOUND
                     1.
                          SILICON
                                                OXYGEN
                                                                          Si02
105
     MATERIAL
                     24.
                                                                           CHROMIUM
106
                                         7.18
     MATERIAL
                     25.
                                        7.21
                                                                          MANGANES
107
                                79.
                                        197.
     LOW-MAT
                     GOLD
                                                 296.
                                                                           GOLD
108
     LOW-MAT
                   COBALT
                                27.
                                        59.
                                                  296.
                                                                           COBALT
109
                  235-U
                                92.
     LOW-MAT
                                         235.
                                                  296.
                                                                          235-U
110
     MATERIAL
                    15.
                                         1.82
                                                                          PHOSPHO
111
                                        2.07
     MATERIAL
                    16.
                                                                          SULFUR
112
                    30.
     MATERIAL
                                        7.133
                                                                           ZINC
113
     MATERIAL
                                         4.4
                                                                          TA6V
114
     COMPOUND
                    -88.3 TITANIUM
                                         -6.5 ALUMINUM
                                                            -4.5 VANADIUMTA6V
115
     COMPOUND
                    -0.4
                               IRON
                                        -0.1
                                                CARBON
                                                            -0.2
                                                                    OXYGENTA6V
116
     MATERIAL
                     23.
                                         6.11
                                                                          VANADIUM
117
     * Steel316LN
118
     * Stainless steel AISI316LN
119
     MATERIAL
                                        7.8
                                                                          SS316LN
120
     MATERIAL
                     10.
                                    8.3851E-4
                                                                          NEON
121
     MATERIAL
                     92.
                                      18.95
                                                                      235.235-U
122
     * Uranium oxide U_02
123
124
     MATERIAL
                                           8.
                                                                          U308
125
     COMPOUND
                     8.
                             OXYGEN
                                         3.
                                                 235-U
                                                                          U308
126
     COMPOUND
                 -0.67145
                               IRON
                                       -0.185 CHROMIUM
                                                        -0.1125
                                                                    NICKELSS316LN
127
     COMPOUND
                  -0.02 MANGANES
                                       -0.01 SILICON -0.00045
                                                                   PHOSPHOSS316LN
128
     COMPOUND
                  -0.0003
                             SULFUR
                                      -0.0003
                                                CARBON
129
                                                                           SS316LN
```

```
MATERIAL
                                                                      COBALT
                    27.
                                       8.9
130
131
     * Assign materials
133
     ASSIGNMA
               BLCKHOLE BLKHOLE
              AL6061 BOITIER
     ASSIGNMA
135
     ASSIGNMA
                  SiO2 WINDOW
136
    ASSIGNMA
                  NEON
                              GAS
137
     ASSIGNMA
                VACUUM
                         INAIR
138
    ASSIGNMA
                 TA6V
                         TETON
139
    ASSIGNMA SS316LN SUPPORT
140
                 IRON
    ASSIGNMA
                         BILLE
141
                   U308
    ASSIGNMA
                            DEPOT
142
                    GOLD DOSI_OR
    ASSIGNMA
143
    ASSIGNMA
                 COBALT DOSI_CO
144
                  AIR
    ASSIGNMA
                            PROBE
145
    LOW-NEUT
                    260.
146
147
148
     *\ {\tt electromagnetic\ thresholds}
149
    EMFCUT
                 -1E-05 0.01E-3
                                             VACUUM
                                                                      PROD-CUT
150
     EMFCUT
                 -1E-05 0.01E-3
                                             BLKHOLE
151
     EMF
152
153
    PHYSICS
                    3.
                                                                      EVAPORAT
154
     IONTRANS
                    0.0
155
156
    PHYSICS
                    1.
                                                                      COALESCE
                 1000. 1000.
                                              1000.
    PHYSICS
                                    1000.
                                                       1000.
                                                                 1000.PEATHRES
157
158
     * Irradiation profile
159
     * -----
160
     RADDECAY
                    1.
                                                        99999
161
     * Cartographie du flux incident de neutrons sources.
162
     * Utile pour visionner la surface d'émission
163
                   10. BEAMPART -21.
164
     USRBIN
                                              5.
                                                         5.
                                                                  20.PRIM_MAP
     USRBIN
                   -5. -5.
                                      -5.
                                              200.
                                                         200.
                                                                  500. &
165
                    -1. BEAMPART
166
    USRTRACK
                                      -99.
                                              PROBE
                                                                  200. TRACKPRIM
                    2E-2 1E-12
167
     * Vérification du taux de fission.
168
     * Le résultat est INDÈPENDANT du temps d'irradiation, on vérifie juste que:
169
     * Reaction = N*sigma*volume du depot == 1.8E20*585E-24*volume
170
     * Compter au moins 1E7 particules pour avoir une réaction!
171
                     2. FISSIONS 74.
                                              DEPOT
     USRBIN
                                                                      FISSIONS
172
173
    USRBIN
                  DEPOT
     * BILAN THERMIQUE
174
     *IRRPROFI 2700. 0.92E13
175
     * SPECTRE COMPLET
176
```

| * Total =              | env 3E14n/  | cm2          |           |           |             |               |
|------------------------|-------------|--------------|-----------|-----------|-------------|---------------|
| * Facteur              | 100 cause s | source recta | angulaire | !         |             |               |
| IRRPROFI               | 240.        | 0.92E13      | 8.95E-3   | 2.47E18   | 0.135       | 0.92E16       |
| *                      |             |              |           |           |             |               |
| * Cooling:             | logspa      | ce(1,3,12)   |           |           |             |               |
| DCYTIMES               | 1.          | 2.           | 4.        | 7.        | 13.         | 24.           |
| *                      |             |              |           |           |             |               |
| * SUITE                |             |              |           |           |             |               |
| DCYTIMES               | 44.         | 82.          | 152.      | 285.      | 534.        | 1000.         |
| *                      |             |              |           |           |             |               |
| * Scoring              |             |              |           |           |             |               |
| *                      |             |              |           |           |             |               |
| * ACTIVITE             | SPECIFIQUE  | E DES COMPOS | SANTS     |           |             |               |
| DCYSCORE               | 1.          |              |           | DEPOT1s   | DEPOT1s     | RESNUCLE      |
| RESNUCLE               | 3.          | -60.         |           |           | DEPOT       | DEPOT1s       |
| DCYSCORE               | 1.          |              |           | DOSI_OR   | DOSI_OR     | RESNUCLE      |
| RESNUCLE               | 3.          | -60.         |           |           | DOSI_OR     | DOSI_OR       |
| DCYSCORE               | 1.          |              |           | DOSI_CO   | DOSI_CO     | RESNUCLE      |
| RESNUCLE               | 3.          | -60.         |           |           | DOSI_CO     | DOSI_CO       |
| DCYSCORE               | 1.          |              |           | CORPS1s   | CORPS1s     | RESNUCLE      |
| RESNUCLE               | 3.          | -60.         |           |           | BOITIER     | 1.CORPS1s     |
| *                      |             |              |           |           |             |               |
| DCYSCORE               | 6.          |              |           | DEPOT1E5s | DEPOT1E5s   | RESNUCLE      |
| RESNUCLE               | 3.          | -61.         |           |           | DEPOT       | 1.DEPOT1E5s   |
| *                      |             |              |           |           |             |               |
| DCYSCORE               | 6.          |              |           | CORPS1E5s | CORPS1E5s   |               |
| RESNUCLE               | 3.          | -61.         |           |           | BOITIER     | 1.CORPS1E5s   |
| *                      |             | ~            |           |           |             |               |
| _                      | gamma 1 se  | c GAZ        |           |           |             |               |
| DCYSCORE               | 1.          |              |           |           | TRACKGAM    | USRTRACK      |
| USRTRACK               |             |              | -22.      | GAS       | 1.          | 300. TRACKGAM |
| USRTRACK               | 1E-2        | 1E-5         |           |           |             | &             |
| *                      | 1. 4.       | 0.4.7        |           |           |             |               |
| _                      | beta 1 sec  | GAZ          |           | mn a cree | TID A CIVIT | Harmy 4 cm    |
| DCYSCORE               | 1.          | T 1 0 T      | 0.0       | TRACKE    |             | USRTRACK      |
| USRTRACK               | -1.         |              | -23.      | GAS       | 1.          | 300.TRACKE    |
| USRTRACK<br>*          | 1E-2        | 1E-5         |           |           |             | &             |
|                        | inglosts 1  | and Doctmen  | rDC       |           |             |               |
| * Dose equ<br>DCYSCORE | 1.          | sec DOSIMET  | 11612     | ActiDoci  | ActiDoci    | USRBIN        |
| USRBIN                 |             | ACTIVITY     | 2.4       | DOSI_OR   | ActiDosi    | ActiDosi      |
| USRBIN                 | DOSI_OR     | WOITATLE     | 24.       | חאח"דפחת  |             | ACTIDOSI<br>& |
| *                      | אט_דפטע     |              |           |           |             | œ.            |
|                        | ivalonto 1  | sec DOSIMET  | rrF       |           |             |               |
| * Dose equi            | 1.          | PEC DOPINE!  | 1615      | ActiDocC  | ActiDosC    | USRBIN        |
| USRBIN                 | 2.          | ACTIVITY     | 25        | DOSI_CO   |             | ActiDosC      |
| USRBIN                 | DOSI_CO     | MOLIVILL     | 20.       | חסד־כח    |             | & &           |
| ODITION                | חס ד מחת    |              |           |           |             | 0.            |

| ## 225 * Dose equivalente 1 sec GAZ    DoseEq1E0 DoseEq1E0                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                     |  |
|--------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------|--|
| 226         DCYSCORE         1.         DoseEq1EO DoseEq1EO         USRBIN           227         *AUXSCORE         USRBIN         PHOTON         DoseEq1EO DoseEq1EO           228         USRBIN         12.         ENERGY         62.         GAS         DoseEq1EO           229         USRBIN         GAS         1.         &           230         *         *         *           231         * Dose equivalent 2 sec GAZ         *         USRBIN         USRBIN           232         DCYSCORE         2.         DoseEq1E1 DoseEq1E1         USRBIN           233         USRBIN         12.         ENERGY         63.         GAS         DoseEq1E1           234         USRBIN         GAS         1.         &           235         *         *         DoseEq1E2 DoseEq1E2         USRBIN           236         * Dose equivalent 4 sec GAZ         GAS         DoseEq1E2         USRBIN           238         USRBIN         12.         ENERGY         64.         GAS         DoseEq1E2           239         USRBIN         GAS         1.         &           240         *         *         DoseEq1E3 DoseEq1E3         USRBIN                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                       |  |
| ### AUXSCORE USRBIN PHOTON DoseEq1EO DoseEq1EO  #### SURBIN 12. ENERGY 62. GAS DoseEq1EO  ### SURBIN GAS 1.                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                    |  |
| USRBIN 12. ENERGY 62. GAS  USRBIN GAS  1. &  230 *  231 * Dose equivalent 2 sec GAZ  232 DCYSCORE 2. DoseEq1E1 DoseEq1E1 USRBIN  233 USRBIN 12. ENERGY 63. GAS DoseEq1E1  234 USRBIN GAS 1. &  235 *  236 * Dose equivalent 4 sec GAZ  237 DCYSCORE 3. DoseEq1E2 DoseEq1E2 USRBIN  238 USRBIN 12. ENERGY 64. GAS DoseEq1E2  239 USRBIN GAS 1. &  240 *  241 * Dose equivalent 7 sec GAZ  242 DCYSCORE 4. DoseEq1E3 DoseEq1E3 USRBIN  243 USRBIN 12. ENERGY 65. GAS DoseEq1E3  244 USRBIN GAS 1. &  258 DoseEq1E3 DoseEq1E3  268 USRBIN 15. ENERGY 65. GAS DoseEq1E3  268 USRBIN GAS 1. &  268 DoseEq1E3  279 USRBIN GAS 1. &  280 USRBIN 68 1. &  280 USRBIN 68 1. &  281 USRBIN 68 1. &  281 USRBIN 68 1. &  282 USRBIN 68 1. &  283 USRBIN 68 1. &  284 USRBIN 68 1. &  285 USRBIN 68 1. &  286 USRBIN 68 1. &  287 USRBIN 68 1. &  288 USRBIN 68 1. &   |  |
| USRBIN GAS 1. &  230 *  231 * Dose equivalent 2 sec GAZ  232 DCYSCORE 2. DoseEq1E1 DoseEq1E1 USRBIN  233 USRBIN 12. ENERGY 63. GAS DoseEq1E1  234 USRBIN GAS 1. &  235 *  236 * Dose equivalent 4 sec GAZ  237 DCYSCORE 3. DoseEq1E2 DoseEq1E2 USRBIN  238 USRBIN 12. ENERGY 64. GAS DoseEq1E2  239 USRBIN GAS 1. &  240 *  241 * Dose equivalent 7 sec GAZ  242 DCYSCORE 4. DoseEq1E3 DoseEq1E3 USRBIN  243 USRBIN 12. ENERGY 65. GAS DoseEq1E3  244 USRBIN 12. ENERGY 65. GAS DoseEq1E3  245 *  246 * Dose equivalent 13 sec GAZ                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                             |  |
| ## 230 ## 231 * Dose equivalent 2 sec GAZ  ## 232 DCYSCORE                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                     |  |
| ## Dose equivalent 2 sec GAZ    DoseEq1E1 DoseEq1E1                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                            |  |
| DCYSCORE   2.   DoseEq1E1 DoseEq1E1   USRBIN                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                   |  |
| USRBIN 12. ENERGY 63. GAS  USRBIN GAS  1. &  235  *  236  * Dose equivalent 4 sec GAZ  237  DCYSCORE 3. DoseEq1E2 DoseEq1E2 USRBIN  238  USRBIN 12. ENERGY 64. GAS  240  *  241  * Dose equivalent 7 sec GAZ  DCYSCORE 4. DoseEq1E3 DoseEq1E3  USRBIN 12. ENERGY 65. GAS  DOSEEq1E3  242  DCYSCORE 4. DoseEq1E3 DoseEq1E3  243  USRBIN 12. ENERGY 65. GAS  DoseEq1E3  244  USRBIN GAS 1. &  245  *  246  * Dose equivalent 13 sec GAZ                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                          |  |
| USRBIN GAS  1. &  235 *  236 * Dose equivalent 4 sec GAZ  237 DCYSCORE 3. DoseEq1E2 DoseEq1E2 USRBIN  238 USRBIN 12. ENERGY 64. GAS DoseEq1E2  239 USRBIN GAS 1. &  240 *  241 * Dose equivalent 7 sec GAZ  242 DCYSCORE 4. DoseEq1E3 DoseEq1E3 USRBIN  243 USRBIN 12. ENERGY 65. GAS DoseEq1E3  244 USRBIN GAS 1. &  245 *  246 * Dose equivalent 13 sec GAZ                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                  |  |
| ### 235 **  236 * Dose equivalent 4 sec GAZ  237 DCYSCORE 3.                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                   |  |
| # Dose equivalent 4 sec GAZ    DoseEq1E2 DoseEq1E2 USRBIN                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                      |  |
| DOYSCORE 3. DoseEq1E2 DoseEq1E2 USRBIN  DOSEEq1E2 DOSEEq1E2 USRBIN  DOSEEq1E2  DOSEEq1E2  DOSEEq1E2  DOSEEq1E2  DOSEEq1E2  DOSEEq1E2  DOSEEq1E2  DOSEEq1E2  DOSEEq1E3  DOSEEq1E3 |  |
| 238       USRBIN       12.       ENERGY       64.       GAS       DoseEq1E2         239       USRBIN       GAS       1.       &         240       *       *       *         241       * Dose equivalent 7 sec GAZ       *       USRBIN       USRBIN         242       DCYSCORE       4.       DoseEq1E3 DoseEq1E3       USRBIN         243       USRBIN       12.       ENERGY       65.       GAS       DoseEq1E3         244       USRBIN       GAS       1.       &         245       *         246       * Dose equivalent 13 sec GAZ                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                      |  |
| 239       USRBIN       GAS       1.       &         240       *         241       * Dose equivalent 7 sec GAZ         242       DCYSCORE       4.       DoseEq1E3 DoseEq1E3 USRBIN         243       USRBIN       12. ENERGY 65. GAS DoseEq1E3         244       USRBIN       GAS 1.       &         245       *         246       * Dose equivalent 13 sec GAZ                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                |  |
| # Dose equivalent 7 sec GAZ    Variable   Part   Pa |  |
| # Dose equivalent 7 sec GAZ  DOSEEq1E3 DoseEq1E3 USRBIN  USRBIN 12. ENERGY 65. GAS DoseEq1E3  USRBIN GAS 1. &  **  DoseEq1E3 DoseEq1E3  **  **  **  **  **  **  **  **  **                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                     |  |
| 242       DCYSCORE       4.       DoseEq1E3 DoseEq1E3 USRBIN         243       USRBIN       12. ENERGY       65. GAS       DoseEq1E3         244       USRBIN       GAS       1.       &         245       *         246       * Dose equivalent 13 sec GAZ                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                    |  |
| 242       DCYSCORE       4.       DoseEq1E3 DoseEq1E3 USRBIN         243       USRBIN       12. ENERGY       65. GAS       DoseEq1E3         244       USRBIN       GAS       1.       &         245       *         246       * Dose equivalent 13 sec GAZ                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                    |  |
| 243       USRBIN       12.       ENERGY       65.       GAS       DoseEq1E3         244       USRBIN       GAS       1.       &         245       *         246       * Dose equivalent 13 sec GAZ                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                             |  |
| 244 USRBIN GAS 1. & 245 * 246 * Dose equivalent 13 sec GAZ                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                     |  |
| * Dose equivalent 13 sec GAZ                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                   |  |
|                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                |  |
|                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                |  |
| 247 DCYSCORE 5. DoseEq1E4 DoseEq1E4 USRBIN                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                     |  |
| 248 USRBIN 12. ENERGY 66. GAS DoseEq1E4                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                        |  |
| 249 USRBIN GAS 1. &                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                            |  |
| 250 *                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                          |  |
| * Dose equivalent 24 sec GAZ                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                   |  |
| DoseEq1E5 DoseEq1E5 USRBIN                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                     |  |
| 253 USRBIN 12. ENERGY 67. GAS DoseEq1E5                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                        |  |
| 254 USRBIN GAS 1. &                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                            |  |
| 255 *                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                          |  |
| * Dose equivalent 44 sec GAZ                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                   |  |
| DoseEq1E6 DoseEq1E6 USRBIN                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                     |  |
| 258 USRBIN 12. ENERGY 68. GAS DoseEq1E6                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                        |  |
| 259 USRBIN GAS 1. &                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                            |  |
| 260 *                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                          |  |
|                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                |  |
|                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                |  |
|                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                |  |
| •                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                              |  |
| 264 USRBIN GAS 1. &                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                            |  |
| 265 *                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                          |  |
| * Dose equivalent 152 sec GAZ                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                  |  |
| DOYSCORE 9. DoseEq1E8 DoseEq1E8 USRBIN                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                         |  |
| USRBIN 12. ENERGY 70. GAS DoseEq1E8                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                            |  |
| USRBIN GAS 1.                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                  |  |
| 270 *                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                          |  |

```
* Dose equivalent 285 sec GAZ
271
      DCYSCORE
                        10.
                                                   DoseEq1E9 DoseEq1E9
                                                                                    USRBIN
272
                                                          GAS
      USRBIN
                        12.
273
                                ENERGY
                                               71.
                                                                                    DoseEq1E9
274
      USRBIN
                        GAS
                                                           1.
                                                                                     &
^{275}
      * Dose equivalent 534 sec GAZ
276
      DCYSCORE
                        11.
                                                  DoseEq1E10DoseEq1E10
                                                                                    USRBIN
277
      USRBIN
                        12.
                                ENERGY
                                               72.
                                                          GAS
                                                                                    DoseEq1E10
278
      USRBIN
                        GAS
                                                           1.
279
                                                                                     &
280
      * Dose equivalent 1000 sec GAZ
^{281}
      DCYSCORE
                        12.
                                                  DoseEq1E11DoseEq1E11
                                                                                    USRBIN
282
      USRBIN
                        12.
                                ENERGY
                                               73.
                                                          GAS
                                                                                   DoseEq1E11
283
      USRBIN
                        GAS
                                                           1.
                                                                                     &
284
      RANDOMIZ
                                   12.
285
      START
                        1E4
286
      STOP
287
```

## IV Micrologiciel du FPGA utilisé pour compter les impulsions du SPAD

```
module sipm
     (
2
    // ADC
3
                [ 14-1: 0] adc_a_i
                                             , //! < ADC data CHA
    input
                 [ 14-1: 0] adc_b_i
                                             , //! < ADC data CHB
     input
5
     input
                            adc_clk_i
                                             . //!< ADC clock
6
     input
                            adc_rstn_i
                                             , //!< ADC reset - active low
     input
                            trig_ext_i
                                             , //! < external trigger
8
     input
                            trig_asg_i
                                             , //!< ASG trigger
9
10
11
    // System bus
12
                                             . //! < bus clock
     input
                            sys_clk_i
13
     input
                            sys_rstn_i
                                             , //! < bus reset - active low
14
     input
                [ 32-1: 0] sys_addr_i
                                               //! < bus saddress
15
16
     input
                [ 32-1: 0] sys_wdata_i
                                             , //!< bus write data
                                               //! < bus write byte select
     input
                [ 4-1: 0] sys_sel_i
17
                                             , //! < bus write enable
18
     input
                            sys_wen_i
                                               //! < bus read enable
     input
                            sys_ren_i
19
                                             , //! < bus read data
20
    output
                 [ 32-1: 0] sys_rdata_o
                                               //! < bus error indicator
^{21}
     output
                            sys_err_o
                                                //! < bus acknowledge signal
     output
                            sys_ack_o
    );
```

```
24
    parameter buff_sizebit=16;//384;//524288;//65536;//2^16 Nombre de pulses stockes au maxmimum
    → dans le FPGA -> tenter d'augmenter cela pour plus de reactivite ????
26
    wire [ 32-1: 0] addr
    wire [ 32-1: 0] wdata
    wire
                   wen
    wire
                   ren
    reg [ 32-1: 0] rdata
32
    reg
                   err
    reg
                     adc_arm_do ; // demarrage de la mesure, a faire moi meme
    //reg
34
                     adc_rst_do ; // reset sofwtare en utilisant les contenus des registres
    //reg
    → PS. A faire moi meme
    // Y a t il vraiment besoin d'un reset software ? aucune buffer circulaire n'est pour
    37
    // REGISTRE DE CONFIGURATIONS, CERTAINS SONT OPTIONNELS POUR LE MOMENT
38
39
    reg debug_mode;
40
    reg soft_meas_reset; //Optionnel version 0.1 REMISE A ZERO DE LA MESURE AU NIVEAU DU

→ SOFTWARE

42
43
    44
45
46
47
    reg [14-1:0] fftdata [0:(2**buff_sizebit)-1];
48
    reg [14-1:0] odata;
49
    reg [14-1:0] idata; // ajout du 19 mai 2016
    // A voir si il est possible d'augmenter la taille du buffer smart detector
51
    reg [16-1:0] fft_read_addr;
52
    reg [16-1:0] fft_write_addr;
53
    reg fft_ready;
54
    reg fft_fill_buffer;
55
    reg fftwrite;
56
    reg fftread;
57
58
59
    /***************
60
    ******* SIPM CODE *************/
61
    //donnee de configuration
    reg pulse_orientation_a; //orientation_du_pulse_1 -> positive_0-> negative
    reg pulse_orientation_b; //orientation_du pulse 1 -> positive 0-> negative
65
    reg [10-1:0] meas_window; // Duree de la mesure en multiple de 2^17 pas de temps.
```

```
reg [14-1:0] discri_level_a; // niveau de dicri choisi -> 14 bit signes
     reg [14-1:0] discri_level_b; // niveau de dicri choisi -> 14 bit signes
     reg [8-1:0] dead_time_a; // temps pendant leuquel le systeme est inefficace apres une
      \hookrightarrow detection
     reg [8-1:0] dead_time_b; // temps pendant leuquel le systeme est inefficace apres une
      \hookrightarrow detection
71
72
     //donne de sorties
73
     reg [21-1:0] pulse_count_a; // Stockage du nombre d'impulsions detectees.
74
     reg [21-1:0] pulse_count_b; // Stockage du nombre d'impulsions detectees.
     reg [32-1:0] sample_cnt;//compteur d echantillon
76
77
78
     reg [14-1:0] max_sig_a; //max du signal
79
     reg [14-1:0] min_sig_a; //min du signal
80
81
     reg [14-1:0] max_sig_b; //max du signal
82
83
     reg [14-1:0] min_sig_b; //min du signal
     reg [8-1:0] dead_time_count_a; // temps pendant leuquel le systeme est inefficace apres une
85
     \hookrightarrow detection
     reg [8-1:0] dead_time_count_b; // temps pendant leuquel le systeme est inefficace apres une
     \hookrightarrow detection
     reg in_deadtime_a; //dans le temps mort
     reg in_deadtime_b; //idem
88
     reg [21-1:0] pulse_count_a_mem; // Stockage du nombre d'impulsions detectees en fin de
90
      \hookrightarrow calcul.
     reg [21-1:0] pulse_count_b_mem; // Stockage du nombre d'impulsions detectees en fin de
91
      \hookrightarrow calcul.
92
     reg [32-1:0] measure_counter_mem;// nombre de mesure effectuee depuis le demarrage
93
94
     reg data_transfer; // flag qui permet le transfert memoire des donnees
95
     always @(posedge adc_clk_i) begin // ce code est pipeline lors de chaque cycle d horloge,
      → plusieurs grandeurs sont calculees en parallele. Cela pose plusieurs problemes notamment
      → pour demarrer le calcul puisqu'il faut amorcer les pipelines et terminer le calcul
     // de maniere echelonnee
98
     if (adc_rstn_i == 1'b0 || soft_meas_reset== 1'b1) begin
100
101
102
     Initialisation of the measure. When the fpga start or is reseted, adc_rstn_1 is set to 0 and
      \hookrightarrow we have to set up the variables in order to start the measurement.
      */
104
```

```
105
106
     pulse_count_a<=21'h0;
107
     pulse_count_b<=21'h0;</pre>
     sample_cnt<=32 h0;
110
     max_sig_a <=- 14'd8000; //max du signal
111
     min_sig_a <= 14'd8000; // minimum a 16383
112
113
     max_sig_b <=-14'd8000; //max du signal
114
     min_sig_b <= 14'd8000; // minimum a 16383
115
116
                               <= 21'h0;
117
     pulse_count_a_mem
     pulse_count_b_mem
                               <= 21'h0;
118
     measure_counter_mem
                                          <= 32 h0;
119
120
     data_transfer<=1'b0;// modif 10/07/2015
121
122
     /* SMART DETECTOR *****/
123
     fft_write_addr<=16'b0;
124
     fft_ready<= 1'b0;</pre>
125
     idata<=14'b0;
126
     soft_meas_reset<=1'b0;
127
128
129
     else begin // MAIN CODE CODE FOR COMPUTING THE PULSE COUNT
130
131
     /***** SMART DETECTOR MODULE******
132
      *************
133
     //idata<=adc_a_i;
134
     if(fftwrite==1'b1) begin
135
     fftdata[fft_write_addr] <= $signed(adc_a_i);</pre>
136
     fft_write_addr<=fft_write_addr+16'b1;</pre>
137
     if(fft_write_addr == 16'hFFFE) begin
138
     fft_ready<= 1'b1;
139
     end
140
141
     end
     else begin
142
     fft_ready<= 1'b0;
143
144
     fft_write_addr <= 16'b0;</pre>
145
     /**************/
146
147
     if(sample\_cnt==\{\{32-27\{1'b0\}\}, meas\_window, 17'b0\}) \ begin// \ si \ on \ a \ compte \ le \ bon \ nombre \ d
148
      \hookrightarrow echantillon
     // ******* ON TERMINE UNE MESURE *******
149
150
```

```
if(in_deadtime_a==1'b0)begin
151
152
      //gestion de l'orientation des impulsions
153
      if(pulse_orientation_a==1'b0 && $signed(adc_a_i)>discri_level_a) begin
      pulse_count_a_mem<=pulse_count_a+21'h1;</pre>
      in_deadtime_a<=1'b1;</pre>
156
      dead_time_count_a<=8 'h0;</pre>
157
158
      else if(pulse_orientation_a==1'b1 && $signed(adc_a_i) < discri_level_a) begin
159
160
161
      pulse_count_a_mem<=pulse_count_a+21 h1;</pre>
      in_deadtime_a<=1'b1;</pre>
162
      dead_time_count_a<=8 'h0;</pre>
163
164
      end
165
      else begin
      pulse_count_a_mem<=pulse_count_a;</pre>
166
167
168
      end
169
      end
      else begin// l'impulsion a ete detecte. Le systeme n est pas reactif pendant un moment de
170
      → maniere a ne pas compter plusieurs fois l impulsion
171
      dead_time_count_a<=dead_time_count_a+8 h1;</pre>
172
      pulse_count_a_mem<=pulse_count_a;</pre>
173
174
      if(dead_time_count_a==dead_time_a)begin
175
176
      in_deadtime_a<=1'b0;</pre>
      end
177
178
      end
179
180
      // Pas d'impulsions detectee, on continue
181
      if(in_deadtime_b==1'b0)begin
182
183
      //gestion de l'orientation des impulsions
184
      if(pulse_orientation_b==1'b0 && $signed(adc_b_i)>discri_level_b) begin
185
      pulse_count_b_mem<=pulse_count_b+21 h1;</pre>
186
      in_deadtime_b<=1'b1;</pre>
187
      dead_time_count_b<=8'h0;
188
189
      else if(pulse_orientation_b==1'b1 && $signed(adc_b_i) < discri_level_b) begin
190
191
192
      pulse_count_b_mem<=pulse_count_b+21'h1;</pre>
      in_deadtime_b<=1'b1;</pre>
193
194
      dead_time_count_b<=8 'h0;</pre>
      end
195
      else begin
196
```

```
197
              pulse_count_b_mem<=pulse_count_b;</pre>
199
               end
200
201
               end
               else begin// l'impulsion a ete detecte. Le systeme n est pas reactif pendant un moment de
202
                → maniere a ne pas compter plusieurs fois l impulsion
203
204
               dead_time_count_b<=dead_time_count_b+8'h1;</pre>
               pulse_count_b_mem<=pulse_count_b;</pre>
205
206
               if(dead_time_count_b==dead_time_b)begin
207
               in_deadtime_b<=1'b0;</pre>
208
               end
209
210
211
               end
212
               measure_counter_mem<=measure_counter_mem+32 h1;</pre>
213
214
               sample_cnt<=32 h0;
215
               pulse_count_a<=21'h0;
216
              pulse_count_b<=21'h0;</pre>
217
218
219
               end
               else begin
220
               // ****** MESURE STANDARD ****************
221
222
               // Pas d'impulsions detectee, on continue
223
224
               if(in_deadtime_a == 1 b0)begin
225
               //gestion de l'orientation des impulsions
226
                if (pulse\_orientation\_a == 1 \ b0 \ \&\& \ \$signed(adc\_a\_i) > \$signed(discri\_level\_a)) \ begind the pulse orientation and the pulse of the pulse or the pulse of the pulse of
227
               pulse_count_a<=pulse_count_a+21'h1;</pre>
228
               in_deadtime_a<=1'b1;</pre>
229
               dead_time_count_a<=8'h0;</pre>
230
231
232
               else if(pulse_orientation_a==1'b1 && $signed(adc_a_i)<$signed(discri_level_a)) begin
233
               pulse_count_a<=pulse_count_a+21'h1;</pre>
234
235
               in_deadtime_a<=1'b1;</pre>
               dead_time_count_a<=8'h0;</pre>
236
237
238
239
^{240}
               else begin// l'impulsion a ete detecte. Le systeme n est pas reactif pendant un moment de
                → maniere a ne pas compter plusieurs fois l impulsion
241
```

```
242
      dead_time_count_a<=dead_time_count_a+8'h1;</pre>
243
244
      if(dead_time_count_a == dead_time_a)begin
      in_deadtime_a<=1'b0;</pre>
246
      end
^{247}
248
      end
249
      // Pas d'impulsions detectee, on continue
250
      if(in_deadtime_b==1'b0)begin
251
252
      //gestion de l'orientation des impulsions
253
      if(pulse_orientation_b==1'b0 && $signed(adc_b_i)>$signed(discri_level_b)) begin
254
      pulse_count_b<=pulse_count_b+21'h1;</pre>
255
      in_deadtime_b<=1'b1;</pre>
256
      dead_time_count_b<=8 'h0;</pre>
257
258
      else if(pulse_orientation_b==1'b1 && $signed(adc_b_i)<$signed(discri_level_b)) begin
259
260
      pulse_count_b<=pulse_count_b+21'h1;</pre>
261
      in_deadtime_b<=1'b1;</pre>
262
      dead_time_count_b<=8 'h0;</pre>
263
      end
264
      end
265
      else begin
266
      // l'impulsion a ete detecte. Le systeme n est pas reactif pendant un moment de maniere a ne
267
      → pas compter plusieurs fois l impulsion
268
      dead_time_count_b<=dead_time_count_b+8'h1;</pre>
269
270
      if(dead_time_count_b==dead_time_b)begin
271
      in_deadtime_b<=1'b0;</pre>
272
      end
273
      end
274
275
      // GESTION DU PAS DE TEMPS ET DU TRANSFERTS DES DONNEES VERS LE PS
276
277
      sample_cnt<=sample_cnt+32 h1; // ajout de 1</pre>
      end
278
      end
279
280
      end
      // end
281
282
283
      /* BLOC DE GESTION DU RESET SOFT
284
      * permet de remettre la mesure a zero apres des modifications de configuration i.e. des
      → changements de duree de mesure par exemple
      */
286
```

```
287
     always @(posedge adc_clk_i) begin
288
     if (adc_rstn_i == 1'b0) begin
289
     // soft_meas_reset<=1'b0;</pre>
     fftwrite<=1'b0;
291
     fftread<=1'b0;
292
     fft_fill_buffer<=1'b0;
293
     end
294
295
     else begin
     soft_meas_reset \le wen \&\& (addr[19:0]==20'h0) \&\& wdata[2] ; // SW ARM
296
     fft_fill_buffer \le wen \&\& (addr[19:0]==20'h38) \&\& wdata[1];
297
     if(fft_ready == 1'b1) begin
298
     fftwrite<=1'b0;
299
     fftread<=1'b1;
300
     end
301
     if(fft_fill_buffer == 1'b1) begin
302
     fftwrite<=1'b1;
303
     fftread<=1'b0;
304
305
     end
306
     end
307
     end
308
309
      // ----- Lecture des donnees depuis le PC vers le FPGA
310
311
     reg have_norm_const; // Optionnel version 0.1 PRESENCE DE LA CONSTANTE DE NORMALISATION
312
313
     reg soft_meas_reset; //Optionnel version 0.1 REMISE A ZERO DE LA MESURE AU NIVEAU DU
314

→ SOF TWARE

     reg comp_third_order; // optionnel version 0.1 -> choix de la grandeur a calculer.
315
     reg compute_fourth_order;
316
317
     always @(posedge adc_clk_i) begin
318
     if (adc_rstn_i == 1'b0) begin
319
320
     // A ajouter ici: mettre a leur valeur par defaut les donnees utilisee par la mesure
321
322
     11
323
     pulse_orientation_a<=1'h1; //orientation du pulse 1 -> positive 0-> negative
324
     pulse_orientation_b<=1'h1; //orientation du pulse 1 -> positive 0-> negative
325
326
     meas_window<=10'h1; // Duree de la mesure en multiple de 2^17 pas de temps.
327
328
     discri_level_a=14'h0; // niveau de dicri choisi -> 14 bit signes
329
330
     discri_level_b=14'h0; // niveau de dicri choisi -> 14 bit signes
     dead_time_a<=8'h1; // temps pendant leuquel le systeme est inefficace apres une detection
331
     dead_time_b<=8'h1; // temps pendant leuquel le systeme est inefficace apres une detection
```

```
333
      // 30/07/2015 MISE A ZERO DES CONSTANTE D ETALLONAGE
334
335
336
      // Remise a zero des registres de configuration
337
      /**** CODE SMART DETECTOR*****/
338
      fft_read_addr<=16'b0;
339
      odata<=14'b0;
340
341
      end
342
^{343}
      else begin
      if (wen) begin
344
      if (addr[19:0] == 20 'h0) begin // Recuperation des bits de configuration
345
      /* CONFIGURATION DE LA MESURE 1
346
      bits [9-0] -> duree de la mesure en multiple de 2^17
347
      bit [17-10] -> duree de la fenetre de temps mort de la voie a sur 8 bits
348
      bit [25-18]
                            -> duree de la fenetre de temps mort de la voie b sur 8 bits
349
      bit 26
                                -> Orientation des impulsions a
350
      bit 27
                                -> Orientation des impulsions b
351
      */
352
353
      meas_window<=wdata[10-1:0];</pre>
354
      dead_time_a<=wdata[18-1:10];</pre>
355
      dead_time_b<=wdata[26-1:18];</pre>
356
      pulse_orientation_a<=wdata[26];</pre>
357
      pulse_orientation_b<=wdata[27];</pre>
358
359
      soft_meas_reset<=wdata[28];
360
361
      end
362
      /* CONFIGURATION DE LA MESURE 2
363
      bits [13-0] discri voie A (en signe')
364
      bits [27-14] discri voie B (en signe')
365
366
      */
367
      if (addr[19:0] == 20 'h4) begin
368
      discri_level_a <= wdata[14-1:0];</pre>
369
      discri_level_b <= wdata[28-1:14];</pre>
370
371
372
373
       \text{if } (\texttt{addr}[19:0] == 20 \, ^{\text{h}}14) \, \texttt{odata} <= \texttt{fftdata}[\texttt{wdata}[15:0]]; \, /\!/ \, \, \textit{taking the read addr from C} \\
374
375
      // Les autres adresses ne sont pas en lecture
      end
      end
378
      //
```

```
380
     end
381
     // ----- Ecriture des donnees dans un buffer pour les envoyer en memoire.
383
384
     // ecriture des donnees en memoire. A voir sur le chan IRC pour comprendre les transferts
385

    → memoire red pitaya

386
     /* APPEL A CHAQUE CLOCK
387
     adc_arm_do <= wen 88 (addr[19:0] == 20'h0) 88 wdata[0]; // SW ARM LANCEMENT DE LA MEZSURE
388

    A VEC LE SCOPE

     adc_rst_do <= wen && (addr[19:0] == 20'h0) && wdata[1] ; // RESET DE LA MESURE
389
390
391
     // ENVOIS DES DONNEES DEPUIS LE FPGA VERS LE PC
392
     always @(*) begin
393
     err <= 1'b0 ;
394
     casez (addr[19:0])
395
396
     //Verification des parametres du systeme de mesure SIPM:
397
    20'h00000 : begin ack <= 1'b1; rdata <=
398

→ {{4{1'b0}}, pulse_orientation_b, pulse_orientation_a, dead_time_b, dead_time_a, meas_window};

     \hookrightarrow end
399
     // 30 07 2015 AJOUT TRANSFERT MEMOIRE -> nombre de points par mesure
400
     20'h00004 : begin ack <= 1'b1; rdata<= {{4{1'b0}}},discri_level_b,discri_level_a}; end
401
402
403
     // envoi du time stamp time_cnt
404
    20'h00008 : begin ack <= 1'b1;
                                         rdata <=
405
     ; end
     20'h0000C : begin ack <= 1'b1;
                                         rdata <=
406
     ; end
407
408
     /************************/
     20'h00010 : begin ack <= 1'b1; rdata <= {
409
                                                    ; end
     \rightarrow {32-1{1'b0}},fftread}
    20'h00018 : begin ack <= 1'b1;
410
     \rightarrow {16{1'b0}},odata};
                                                              end
411
     default : begin ack <= 1'b1;</pre>
                                       rdata <= 32'h0
                                                                                  ; end
412
     endcase
413
414
    // ---- Connexion avec le bus du PS
416
    // Expliciter le fonctionnement de cette connexion ?
417
    // bridge between ADC and sys clock
```

```
419
     bus_clk_bridge i_bridge
420
421
                                     ),
422
     .sys_clk_i
                    ( sys_clk_i
                 ( sys_rstn_i
423
     .sys_rstn_i
                                     ),
                  ( sys_addr_i
     .sys_addr_i
424
     .sys_wdata_i ( sys_wdata_i
425
                                     ),
                   ( sys_sel_i
     .sys_sel_i
                                     ),
426
427
     .sys_wen_i
                  ( sys_wen_i
                                     ),
     .sys_ren_i ( sys_ren_i
                                     ),
428
429
     .sys_rdata_o ( sys_rdata_o
                   ( sys_err_o
                                     ),
     .sys_err_o
430
     .sys_ack_o ( sys_ack_o
431
                                     ),
432
                  ( adc_clk_i
                                     ),
     .clk_i
433
                  ( adc_rstn_i
     .rstn_i
434
     .\,\mathtt{addr}_{-\mathtt{o}}
                  ( addr
435
                                     ),
                  ( wdata
                                     ),
     .wdata_o
436
                  ( wen
437
     .wen_o
                                     ),
                                     ),
                  ( ren
     .ren_o
438
                  ( rdata
     .rdata_i
                                     ),
439
     .err_i
                  ( err
                                     ),
440
     .ack_i
                  ( ack
441
     );
442
443
444
445
     endmodule
```

#### V Logiciel de pilotage de l'intégrateur IVC102

```
# The FFT/Audiogram class is taken from the SciPy 2015 Vispy talk opening example
    # see https://github.com/vispy/vispy/pull/928
    {\it \# https://flothesof.github.io/pyqt-microphone-fft-application.html}
    # sudo pigpiod <<--- at startup
5
    import pyaudio
6
    import wave
    import threading
    import atexit
9
    import numpy as np
    rateP = 48000
11
    chunksizeP = 4096
12
    formatP = pyaudio.paInt16
13
14
```

```
class MicrophoneRecorder(object):
15
    def __init__(self, rate=rateP, chunksize=chunksizeP, formatp=formatP):
    self.rate = rate
    self.chunksize = chunksize
    self.formatp = formatp
    self.pa = pyaudio.PyAudio()
    self.stream = self.pa.open(input_device_index=2,
    format=self.formatp,
23
    channels=1,
    rate=self.rate,
24
    input=True,
    frames_per_buffer=self.chunksize,
    stream_callback=self.new_frame)
27
    self.lock = threading.Lock()
28
    self.stop = False
29
    self.frames = []
    atexit.register(self.close)
    def new_frame(self, data, frame_count, time_info, status):
    data = np.fromstring(data, 'int16')
    with self.lock:
    self.frames.append(data)
35
    if self.stop:
36
    return None, pyaudio.paComplete
37
    return None, pyaudio.paContinue
38
39
    def get_frames(self):
40
41
    with self.lock:
    frames = self.frames
42
    self.frames = \Pi
43
    return frames
44
45
    def start(self):
46
    self.stream.start_stream()
47
48
    def close(self):
49
    with self.lock:
50
    self.stop = True
51
    self.stream.close()
52
    self.pa.terminate()
53
54
55
    from matplotlib.backends.backend_qt5agg import FigureCanvasQTAgg as FigureCanvas
56
     \#from\ matplotlib.backends.backend\_qt5agg\ import\ Navigation Toolbar 2QT\ as\ Navigation Toolbar
    import matplotlib.pyplot as plt
58
    plt.switch_backend('Qt5Agg')
60
```

```
class MplFigure(object):
     def __init__(self, parent):
     self.figure = plt.figure(facecolor='white')
     self.canvas = FigureCanvas(self.figure)
     #self.toolbar = NavigationToolbar(self.canvas, parent)
     #-----
     import numpy as np
     from numpy import asarray
     from numpy import savetxt
     from shutil import copyfile
71
     import matplotlib.pyplot as plt
    from PyQt5 import QtGui, QtCore, QtWidgets
     from PyQt5.uic import loadUiType
74
     from io import StringIO
75
     import subprocess
76
     Ui_MainWindow, QMainWindow = loadUiType('IVC_audio.ui')
     #import RPi.GPIO as GPIO # Import Raspberry Pi GPIO library
     import pigpio
79
80
     import time
     from time import sleep # Import the sleep function from the time module
     IVC_S2 = 13# WIRING PI SHOULD READ 23!!!!! pinout.xyz
     IVC_S1 = 6# WIRING PI SHOULD READ 22!!!!! pinout.xyz
83
     HV_e = 5# Physical 29, enable HV supply HIGH = ON
     HV_t = 18# Pin linked to GREEN LED to show SiPM is activated
85
     # Pin used for PULSE counting is number ++++++++++ 26 +++++++++++++
86
     import sys
87
88
     scale = [1E-6,1E-3,1E0] # time scales in the revolving menu
89
     offDelay = 10E-6 # Reset time on the IVC 102
90
     blinkOrderFlag = False
                                           # Is integration asked?
91
     highState = False
                                            # Is IVC integrating?
92
     stopFlag = False
93
94
     class GUI (QMainWindow, Ui MainWindow):
95
     def __init__(self, *args, **kwargs):
96
     super(GUI, self).__init__(*args, **kwargs)
97
     self.setupUi(self)
     #fig = Figure()
     #customize the UI
100
101
     self.initUI()
     # init class data
102
     self.initData()
103
104
     # connect slots
     self.connectSlots()
105
106
     # init MPL widget
     self.initMplWidget()
107
108
```

```
def initUI(self):
109
     self.pc = subprocess.Popen("exec " + "sudo ./freq_auto 26 -s1 -r5" ,
110

→ stdout=subprocess.PIPE, stderr=subprocess.PIPE, bufsize=1, universal_newlines=True

     → ,shell=True)
     sleep(1)
111
     #uic.loadVi("IVC_audio.ui", self)
112
     self.main_figure = MplFigure(self)
113
     self.mplvl.addWidget(self.main_figure.canvas)
114
     self.unitSelect.addItems(["microsec.", "millisec.", "sec."])
115
     self.unitSelect.setCurrentIndex(0)
116
     self.inpIntT.setText("25")
117
     self.btnExit.clicked.connect(self.ExitRoutine)
118
     self.btnStart.clicked.connect(self.StartInt)
119
     self.btnStop.clicked.connect(self.StopInt)
120
     self.btnHV_on.clicked.connect(self.StartHV)
121
     self.btnHV_off.clicked.connect(self.StopHV)
122
     self.btnRec.clicked.connect(self.Recorder)
123
     self.btnStopRec.clicked.connect(self.Saver)
124
     self.btn_Refresh.clicked.connect(self.RefreshRate)
125
     #self.home()
126
     #self.setGeometry(200, 200, 350, 300)
127
     #self.setWindowTitle('LiveFFT')
128
     self.show()
129
     # timer for callbacks, taken from:
130
     # http://ralsina.me/weblog/posts/BB974.html
131
     timer = QtCore.QTimer()
132
     timer.timeout.connect(self.handleNewData)
133
     timer.start(100)
134
     # keep reference to timer
135
     self.timer = timer
136
137
     def initData(self):
138
     global IVC_S1, IVC_S2, HV_e, HV_t
139
     #pd = subprocess.run("exec "+"sudo piqpiod" , stdout=subprocess.PIPE, shell=True) # Start
140
     → the PIGPIO Deamon, to be killed when freq.c is called
     self.GPIO = pigpio.pi()
141
142
     self.GPIO.set_mode(IVC_S1, pigpio.OUTPUT) # Set IVC_reset pin to be an output pin and set
     self.GPIO.set_mode(HV_e, pigpio.OUTPUT) # Inverting power supply chip enable pin
143
144
     self.GPIO.set_mode(IVC_S2, pigpio.ALTO) # Set IVC_reset pin to be an output pin and set
     self.GPIO.hardware_PWM(IVC_S2, 1,0)
145
     mic = MicrophoneRecorder()
146
     mic.start()
148
     # keeps reference to mic
     self.mic = mic
149
     # computes the parameters that will be used during plotting
```

```
self.freq_vect = np.fft.rfftfreq(mic.chunksize,
151
     1./mic.rate)
152
     self.time_vect = np.arange(mic.chunksize, dtype=np.float32) / mic.rate * 1000
153
     self.GPIO.write(HV_e, 0) # Turn off SiPM power supply
     self.GPIO.write(HV_t, 0) # Turn off SiPM power supply
     self.GPIO.write(IVC_S2, 0)
156
     self.GPIO.write(IVC_S1, 1) #We use the IVC in the «easy» configuration, S1 must be HIGH
157
158
     def connectSlots(self):
159
160
     pass
161
     def initMplWidget(self):
162
     global chosenTime
163
     """creates initial matplotlib plots in the main window and keeps
164
     references for further use"""
165
      # top plot
166
     self.main_figure.figure.clf()
167
     self.ax_top = self.main_figure.figure.add_subplot(211)
168
     self.ax_top.set_ylim(-32768, 32768)
169
     \#self.ax\_top.set\_xlim(0, self.time\_vect.max())
170
     print(self.time_vect.max())
171
     print(chosenTime)
172
     self.ax_top.set_xlim(0, chosenTime*1000)
173
     self.ax_top.set_xlabel(u'time (ms)', fontsize=10)
174
175
      # line objects
176
177
     self.line_top, = self.ax_top.plot(self.time_vect,
     np.ones_like(self.time_vect))
178
179
180
     def handleNewData(self):
181
     global recordF
182
     objFile = open("lastval.dat", "r")
183
     fileContent = objFile.read();
184
     self.lcdPCM_3.display(fileContent)
185
     objFile.close()
186
      """ handles the asynchroneously collected sound chunks """
187
      # gets the latest frames
188
     #print(self.rc)
189
     frames = self.mic.get_frames()
190
     if len(frames) > 0:
191
     # keeps only the last frame
192
     current_frame = frames[-1]
193
      # plots the time signal
194
     self.line_top.set_data(self.time_vect, current_frame)
      # refreshes the plots
196
     self.main_figure.canvas.draw()
```

```
self.lcdPCM.display(np.amax(frames)+32768)
198
      #print(abs(np.amax(frames)))
199
     if recordF == True:
200
     frameS= b''.join(frames)
201
     self.wf.writeframes(frameS)
202
203
204
     return frames
     def RefreshRate(self):
205
      # Beware this only updates the scale, does not change integration time
206
     global chosenTime
207
     mag = self.unitSelect.currentIndex()
208
     chosenTime = float(self.inpIntT.text())*scale[mag]
209
     self.initMplWidget()
210
211
     def RefreshAPD(self):
212
213
      # Modify report time of frequency counter
214
      # callback
215
216
     def ExitRoutine(self):
217
     global IVC_S2, HV_e, HV_t
218
     self.GPIO.write(HV_e, 0)
                                 # Stop HV power for SiPM
219
     self.GPIO.write(HV_t, 0)  # Stop LED HV power for SiPM
220
     self.GPIO.write(IVC_S2, 0) # Stop intagration gate signal
221
     self.GPIO.stop()
222
     pd = subprocess.Popen("exec "+"sudo killall -2 freq_auto", stdout=subprocess.PIPE,
223
      → shell=True) # Stop the PIGPIO Deamon, to be killed when freq.c is called
     dst = self.inpFN_2.text()+ ".dat"
224
     copyfile("histAPD.dat", dst)
225
     self.Saver()
226
     print('Application closed properly')
227
     sys.exit()
228
229
     def StartInt(self):
230
     global chosenTime, offDelay, IVC_S1, IVC_S2
231
     print('Integration signal started')
232
     self.GPIO.write(IVC_S1, 1)
233
     self.label_3.setText("Status: integrating")
234
     mag = self.unitSelect.currentIndex()
235
     chosenTime = float(self.inpIntT.text())*scale[mag]
236
     blinkOrderFlag = True
237
     ##############
238
239
     freq = 1/(chosenTime + offDelay)
     period = 1/freq
240
241
     DC = chosenTime/period
     DC = 1e6-1e6/(period)*10e-6
242
     self.GPIO.hardware_PWM(IVC_S2, int(freq), int(DC))
```

```
#print(blinkOrderFlag)
244
     #UPT = str(int((chosenTime+offDelay)*1E6))+" "
245
     #DOT = str((offDelay)*1E6)+" "
246
     #print(UPT, DOT)
247
     #self.pc = subprocess.Popen("exec"+" sudo ./TEST 23 " + UPT + DOT, stdout=subprocess.PIPE,
      \hookrightarrow shell=True)
249
     def StopInt(self, channel):
250
     global IVC_S1, IVC_S2
251
     # channel is useless here, but returned by GPIO
252
     #subprocess.call(["sudo", "killall", "TEST"])
253
     self.GPIO.write(IVC_S1, 0)
254
     self.GPIO.write(IVC_S2, 0)
255
     print('Integration signal stopped')
256
     self.label_3.setText("Status: stopped")
257
     blinkOrderFlag = False
258
259
     def StartHV(self):
260
261
     global HV_e, HV_t
     self.GPIO.write(HV_e, 1) # LT1617 chip enalble pin is active on HIGH
262
     self.GPIO.write(HV_t, 1) # GREED LED ON
263
     self.label_HV.setText("HV: ON")
264
265
     def StopHV(self):
266
     global HV_e, HV_t
267
     self.GPIO.write(HV_e, 0) # LT1617 chip enalble pin is active on HIGH
268
     self.GPIO.write(HV_t, 0) # GREED LED OFF
269
     self.label_HV.setText("HV: OFF")
270
271
     def watchRoutine(self):
272
273
     #GPIO.add_event_detect(MONIT_GPIO, GPIO.FALLING,
274
     #callback=self.StopInt, bouncetime=100)
275
276
277
     def Recorder(self):
     global recordF
278
279
     global frameS
     recordF = True
280
     mic = self.mic
281
282
     fname = self.inpFN.text()+ ".wav"
     print (fname)
283
     self.wf = wave.open(fname, 'wb')
284
     self.wf.setnchannels(1)
285
     self.wf.setsampwidth(mic.pa.get_sample_size(formatP))
     self.wf.setframerate(rateP)
     print("* Recording...")
288
     self.label_Rec.setText("Recording data...")
```

```
290
      def Saver(self):
291
      global recordF, frameS
292
      recordF = False
      print("* Recording stopped")
^{294}
      self.label_Rec.setText("Recording stopped")
      self.wf.close()
^{297}
298
      import sys
      recordF = False
299
      chosenTime = 69e-6
300
      frameS = []
301
      app = QtWidgets.QApplication(sys.argv)
302
      window = GUI()
303
      sys.exit(app.exec_())
304
```

#### VI Interface graphique du pilote de l'IVC102



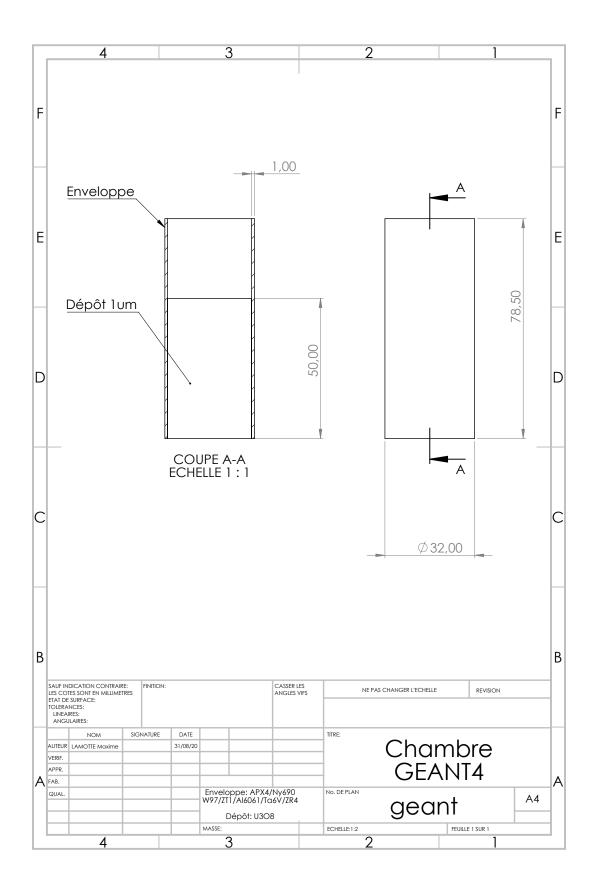
FIGURE C.3 – Vue du logiciel de pilotage de l'intégrateur IVC102, compilé sur ordinateur monocarte Raspberry Pi IV.

## Bibliographie

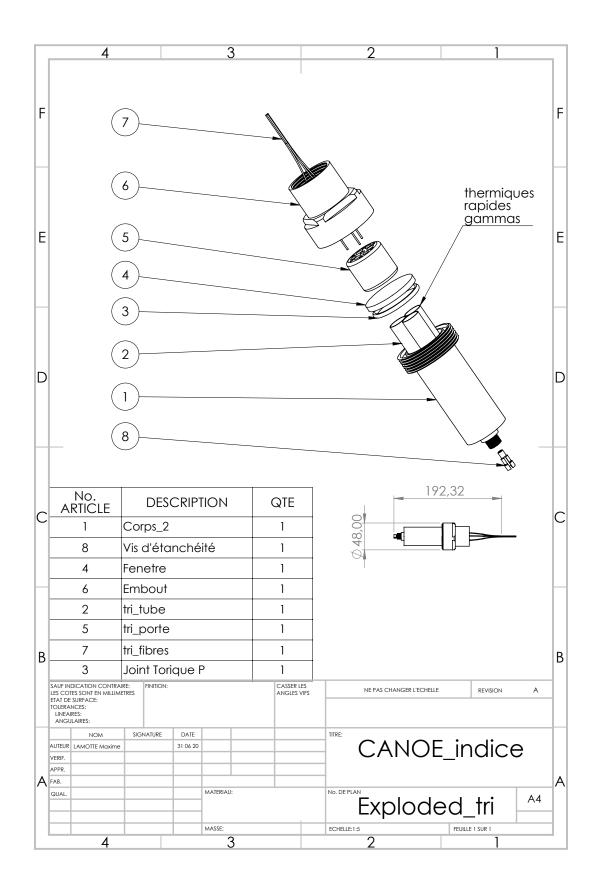
- [1] AUSY, Modélisation tripoli pour la caractérisation neutronique du réacteur Cabri dans la configuration BEP, Tech. Rep. NT DER/SPRC/LPN /16-1728 ind. 1, CEA Cadarache (2016).
- [2] AUSY, M. Maillot, Étude neutronique de référence du coeur Cabri dans la configuration boucle à eau pressurisée (BEP), Tech. Rep. NT DER/SPRC/LPN /16-1735 ind. A, CEA Cadarache (2016).
- [3] J. Lecerf, O. Clamens, Analyse physique des essais C1 et C7 en vue de la caractérisation neutronique du coeur de Cabri, Tech. Rep. SPESI/LP2E/NT/2019-002 ind. A, CEA Cadarache (2019).

# Supplément au chapitre 6

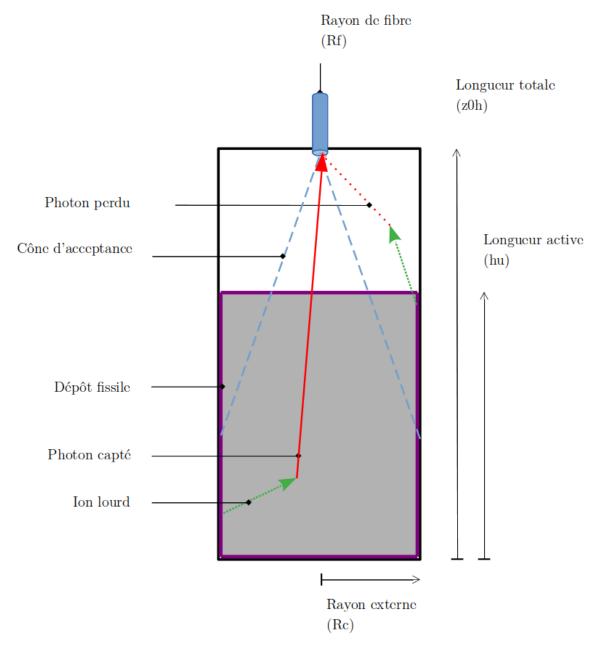
I Géométrie de la chambre simplifiée simulée sous GEANT4



### II Plans d'une version de CANOE à indice de spectre



## III Schéma de la géométrie étudiée pour l'optimisation de la collecte de photons



 ${\tt Figure~D.1-Paramètres~et~variables~utilis\'es~dans~le~code~de~calcul~de~la~proportion~de~photons~canalis\'es~dans~la~fibre~optique.}$ 

# IV Résultats du code d'étude de l'optimisation du dépôt d'énergie dans le gaz

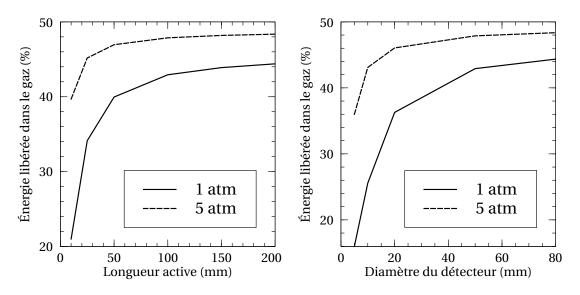


FIGURE D.2 – Proportions d'énergie transmise au gaz tampon d'une chambre à fission non polarisée en fonction de sa géométrie. Gauche : Proportion transmise en fonction de la longueur de la partie active (hu) et de la pression de remplissage (P), diamètre (Rc) fixé à 40 mm. Droite : Proportion transmise en fonction du diamètre du détecteur et de la pression du remplissage, longueur active (hu) fixée à 100 mm. Le gaz tampon est de l'argon, et la distance entre le haut de la surface active et le fibre optique (z0h-hu) est de 100 mm.

## V Résultats du code d'étude de l'optimisation de la collecte de photons

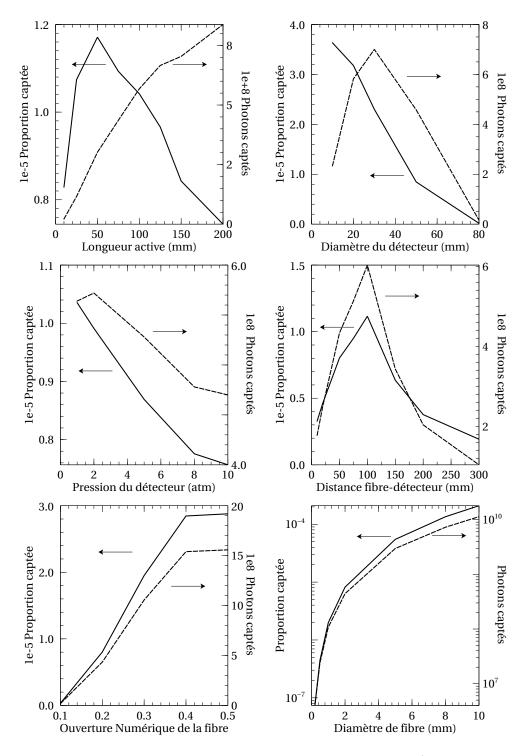


FIGURE D.3 – Proportions et nombre de photons générés dans le gaz / acceptés par la fibre optique en variant divers paramètre d'un détecteur cylindrique. 1 : fonction de la longueur de matériau de conversions. 2 : fonction du diamètre de l'enveloppe. 3 : fonction de la pression de remplissage. 4 : fonction de la distance entre la fibre et le haut de la matière active. 5 : fonction de l'ouverture numérique de la fibre. 6 : fonction du diamètre de la fibre.

#### VI Schémas des mécanismes de transfert d'énergie

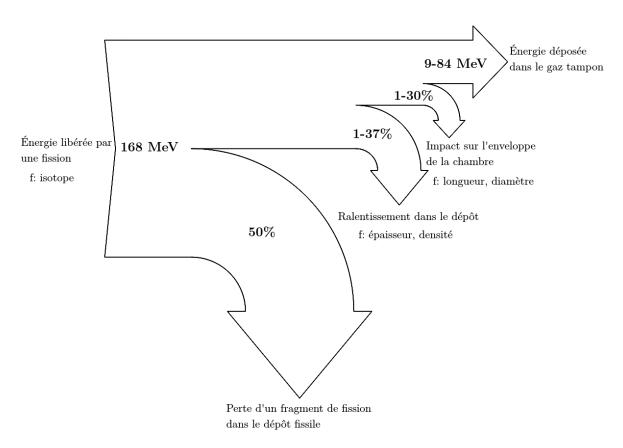


FIGURE D.4 – Diagrammes de Sankey représentant les mécanismes de transfert d'énergie des fragments de fission au gaz. Les valeurs sont données par fission. f : points d'optimisations, analysés en VII. Les pourcentages se portent sur le flux résultant

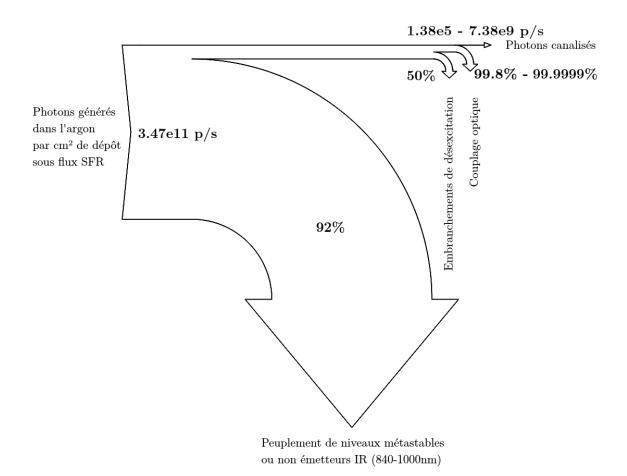


FIGURE D.5 – Diagramme de Sankey représentant la distribution et la perte des photons jusqu'au détecteur. Les valeurs sont données par cm² de surface active épaisse de 1  $\mu$ m d'uranium dans une géométrie décrite en III avec Rc = 25 mm, hu = 100 mm. Les points d'améliorations de la collecte sont analysés en V. Les valeurs sont données pour une surface de collection de 2 et 25 mm de diamètre, respectivement. Les pourcentages se portent sur le flux résultant.