



HAL
open science

Développement d'un spectro-imageur neutronique transportable et à haute sensibilité de détection

Aya Kanj

► **To cite this version:**

Aya Kanj. Développement d'un spectro-imageur neutronique transportable et à haute sensibilité de détection. Instrumentations et Détecteurs [physics.ins-det]. Université Paris-Saclay, 2023. Français. NNT : 2023UPASP173 . tel-04606607

HAL Id: tel-04606607

<https://theses.hal.science/tel-04606607v1>

Submitted on 10 Jun 2024

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.

Développement d'un spectro-imageur neutronique transportable et à haute sensibilité de détection

*Development of a transportable neutron spectro-imager with high
detection sensitivity*

Thèse de doctorat de l'université Paris-Saclay

École doctorale n° 576 Particules, hadrons, énergie et noyau :
instrumentation, image, cosmos et simulation (PHENIICS)
Spécialité de doctorat : Physique nucléaire
Graduate School : Physique. Référent : Faculté des sciences d'Orsay

Thèse préparée à l'**Institut LIST** (Université Paris-Saclay, CEA), sous la direction de
Frédéric CARREL, directeur de recherche au CEA DRT, le co-encadrement de
Clément LYNDE, ingénieur chercheur au CEA DES, et le co-encadrement de **Mehdi
BEN-MOSBAH**, ingénieur de recherche au CEA DES

Thèse soutenue à Paris-Saclay, le 04 décembre 2023, par

Aya KANJ

Composition du Jury

Membres du jury avec voix délibérative

Ziad EL BITAR Directeur de recherche, Université de Strasbourg	Président
Claire MICHELET Maîtresse de conférences HDR, Université de Bordeaux	Rapporteuse & Examinatrice
Jean-Claude ANGELIQUE Professeur ENSICAEN, Université de Caen Normandie	Rapporteur & Examineur
Amokrane ALLAOUA Chef de laboratoire, Institut de radioprotection et de sûreté nucléaire	Examineur

Titre : Développement d'un spectro-imageur neutronique transportable et à haute sensibilité de détection

Mots clés : Démantèlement, imagerie neutronique, spectrométrie neutronique, scintillateur plastique, déconvolution.

Résumé : Les travaux de thèse présentés dans ce mémoire visent à répondre aux enjeux rencontrés lors des opérations d'assainissement et de démantèlement (A&D) des sites nucléaires en fin de vie. L'objectif principal de la thèse consiste à développer un instrument compact et de haute sensibilité pour la caractérisation du champ neutronique. Le prototype de mesure servira à localiser les sources neutroniques en utilisant la méthode d'imagerie par encodage spatial, et à identifier les sources neutroniques à partir de la mesure de leur distribution en énergie en utilisant la méthode de déconvolution des spectres. Le prototype envisagé est formé d'un scintillateur plastique pixellisé, relié optiquement à une matrice de photomultiplicateurs en silicium (SiPM), et ces deux composants sont associés à un masque codé.

Afin d'atteindre l'objectif énoncé, trois axes ont été étudiés. Le premier axe concerne le test et la comparaison des trois codes de déconvolution MAXED, GRAVEL et MLEM sur des données simulées. Le deuxième axe a pour objectif de déterminer la fonction de réponse aux neutrons du scintillateur plastique monobloc et, à l'issue de cette mesure, la spectrométrie neutronique a été appliquée sur des données réelles mesurées à l'aide de ce scintillateur. Le troisième axe concerne la caractérisation du spectro-imageur neutronique formé d'un scintillateur pixellisé en évaluant sa performance en imagerie expérimentalement et en spectro-imagerie par simulation.

Title: Development of a transportable neutron spectro-imager with high detection sensitivity

Keywords: Decommissioning, neutron imaging, neutron spectrometry, plastic scintillator, deconvolution.

Abstract: The work presented in this thesis addresses the challenges encountered during the decommissioning and dismantling (D&D) of nuclear facilities at the end of the lifecycle. The main objective of this thesis is to develop a compact and highly sensitive instrument for neutron field characterization. The measurement prototype will be used to locate neutron sources using spatial encoding imaging and to identify neutron sources by measuring their energy spectra through spectrum deconvolution. The prototype consists of a pixelated plastic scintillator optically coupled to an array of silicon photomultipliers (SiPM), with both components associated with a MURA coded mask.

To achieve the stated objective, three axes of study were pursued. The first axis involves testing and comparing three deconvolution codes MAXED, GRAVEL, and MLEM using simulated data. The second aims to determine the neutron response function of the monobloc plastic scintillator and, following this, neutron spectrometry was applied to real data measured using this scintillator. The third area involves characterizing the neutron spectro-imager based on a pixelated plastic scintillator, by assessing its performance in imaging experimentally and in spectro-imaging by simulation.

Remerciements

Je tiens tout d'abord à remercier Lorène Allano et Moustapha Hafez chefs successifs du Département Instrumentation Numérique (DIN) pour m'avoir accueillie afin que je puisse effectuer ma thèse au sein de leur département. De même, je remercie Karim Boudergui, chef du Service Instrumentation et Métrologie des Rayonnements Ionisants (SIMRI) étant celui qui a accepté de me recevoir dans son laboratoire.

Je remercie les membres du jury, à savoir Ziad El Bitar, Claire Michelet, Jean-Claude Angélique et Amokrane Alloua, pour leur contribution à l'évaluation de ma thèse. Votre généreux investissement en temps, en effort et en expertise dans cette tâche est grandement apprécié.

Je remercie ensuite Frédérick Carrel, directeur de ma thèse, mais aussi adjoint du chef de service SIMRI et ancien chef du laboratoire LCAE (Laboratoire Capteurs et Architectures Electroniques). Je te remercie pour ton soutien, pour tes encouragements, et ton suivi attentif de ma thèse durant ces trois ans. L'effort et le temps que tu as mis pour suivre ma thèse au niveau technique et au niveau des corrections des rapports de thèse, des articles, des présentations, et finalement ce manuscrit sont grandement appréciés. Tes suggestions et avis concernant mes présentations orales ont eu un impact significatif ! Encore une fois, je te remercie du fond du cœur pour ton soutien tout au long de ces trois ans.

Je remercie ensuite l'encadrant de ma thèse Clément Lynde. Je te remercie pour le soutien que tu m'as apporté depuis le tout premier jour de ma thèse jusqu'à la rédaction du dernier mot de ce manuscrit. Ta disponibilité, ton dévouement et le temps que tu as consacré à nos discussions ont été d'une valeur inestimable pour moi. C'est grâce à toi que j'ai pu découvrir le domaine de l'instrumentation nucléaire. Grâce à ta générosité dans le partage des connaissances et des informations, j'ai pu développer mes compétences en montage expérimental, en acquisition et en analyse des données, en simulation MCNP, ainsi qu'en rédaction et en présentation des résultats. Je suis reconnaissante de t'avoir comme guide dans ce voyage académique.

Je remercie les co-encadrants de ma thèse Mehdi Ben Mosbah et Julien Venara. Merci pour votre contribution dans l'écriture de ce manuscrit, ainsi que les communications orales et écrites et de suivre de près ma thèse malgré votre éloignement géographique. Merci pour tous les conseils et les discussions scientifiques qui ont grandement contribué au succès de cette thèse.

Je remercie mes collègues au laboratoire Victor Buridon et Johann Plagnard pour leurs contributions dans la réalisation de ces travaux de thèse mais aussi pour les discussions scientifiques que nous avons pu avoir.

Je remercie l'équipe de l'installation Amande à l'IRSN du CEA Cadarache, en particulier Richard Babut, pour leur grande disponibilité et leurs efforts remarquables tout au long de la campagne de mesure.

Je remercie l'équipe à l'installation Cyncé de l'IPHC au Strasbourg notamment Michel Pellicoli et Marc Rousseau pour leur engagement exceptionnel dans les mesures effectuées devant le faisceau de protons.

Je remercie chaleureusement Sharvane Mauree ma collègue de bureau toujours souriante et aimable. Je me souviens encore de notre premier jour de thèse au CEA, où nous ne savions pas encore à quoi nous attendre ! Je te souhaite tout le meilleur pour la suite, ainsi qu'une vie heureuse en compagnie de Clément.

Je remercie tous mes collègues de travail, avec une mention spéciale pour le #teamdoctorant Sharvane, Andréa, Nouhaila, Ali, Victor, Yaroslav et Kamel, et également Quentin et Florian pour les précieux moments que nous avons partagés ensemble au CEA et à l'extérieur.

Enfin je remercie mes chers parents, mes chers frères et sœurs, merci d'être la principale source de mon bonheur, j'espère continuer à vous rendre fiers de moi. Un GRAND merci à mon fiancé Hicham qui m'a aimée, encouragée et toujours cru en moi.

Table des matières

Introduction générale	1
Chapitre I. Contexte des travaux et état de l'art sur la spectro-imagerie neutronique	5
I.1. Contexte	5
I.1.1. L'assainissement et démantèlement des sites nucléaires	5
I.1.2. L'instrumentation et la mesure en milieu nucléaire	7
I.2. La caractérisation du champ neutronique en milieu nucléaire	9
I.2.1. Les sources neutroniques dans un milieu nucléaire	9
I.2.2. L'interaction des neutrons avec la matière	13
I.2.3. Les détecteurs de neutrons	15
I.3. L'imagerie et la spectrométrie neutronique	17
I.3.1. La spectro-imagerie neutronique par diffusion élastique	18
I.3.2. L'imagerie neutronique par encodage spatial	31
I.3.3. La spectrométrie neutronique reposant sur la méthode de déconvolution des spectres	44
I.4. Synthèse du chapitre 1	59
I.5. Bibliographie du chapitre 1	61
Chapitre II. La spectrométrie neutronique appliquée sur des données simulées	71
II.1. Présentation de la méthode de spectrométrie neutronique par déconvolution	71
II.1.1. Présentation du problème inverse de la spectrométrie neutronique	71
II.1.2. Présentation du code MAXED	72
II.1.3. Présentation du code GRAVEL	74
II.1.4. Présentation du code MLEM	75
II.2. Simulation de la spectrométrie neutronique à l'aide d'un monobloc de scintillateur plastique	77
II.2.1. Présentation du détecteur formé de scintillateur plastique	77
II.2.2. Les interactions du neutron dans le scintillateur organique	78
II.2.3. Théorie du rendement lumineux des scintillateurs	81
II.2.4. Reconstruction par simulation des spectres en énergie des sources neutroniques ^{252}Cf et AmBe	83
II.3. Synthèse du chapitre 2	94
II.4. Bibliographie du chapitre 2	95
Chapitre III. La spectrométrie neutronique appliquée sur des données mesurées	97
III.1. Description du prototype expérimental	97
III.2. Etalonnage du scintillateur plastique à l'aide de sources gamma	101
III.2.1. Interaction des rayonnements gamma dans le scintillateur plastique	101
III.2.2. Présentation des spectres gamma mesurés	102
III.2.3. Simulation des spectres en énergie déposée pour des sources gamma avec MCNP6.2	105
III.2.4. Etude de la résolution en énergie du détecteur	106
III.3. Spectrométrie neutronique appliquée sur des données expérimentales	113
III.3.1. Détermination de la réponse lumineuse de l'énergie déposée par les protons dans le scintillateur	113
III.3.2. Application des codes de déconvolution sur des données mesurées	126

III.4. Synthèse du chapitre 3	133
III.5. Bibliographie du chapitre 3	134
Chapitre IV. Imagerie et spectrométrie neutronique à l'aide d'un prototype dédié	136
IV.1. Présentation de l'imageur neutronique existant	136
IV.2. Campagnes d'essais d'imagerie neutronique et d'imagerie gamma	138
IV.2.1. Mesure d'imagerie neutronique en conditions de laboratoire	138
IV.2.2. Mesure d'imagerie gamma en conditions de laboratoire	139
IV.2.3. Mesure d'imagerie neutronique à l'installation Amade	140
IV.3. Simulation du spectro-imageur	141
IV.3.1. Modèle du prototype de spectro-imageur	141
IV.3.2. Simulation de l'imagerie neutronique à l'aide du prototype de spectro-imageur	142
IV.3.3. Simulation de la spectrométrie neutronique à l'aide du prototype de spectro-imageur	144
IV.4. Etalonnage du scintillateur pixellisé	149
IV.4.1. Etalonnage du scintillateur pixellisé 12×12	149
IV.4.2. Etalonnage du scintillateur pixellisé 2 × 2	152
IV.5. Synthèse du chapitre 4	156
IV.6. Bibliographie du chapitre 4	157
Conclusion générale	158
Liste des abréviations	160
Annexe	161
Liste des figures	161
Liste des tableaux	178

Introduction générale

Le sujet de thèse présenté dans le cadre de ce mémoire s'intègre dans le programme FOCUSDEM, programme incitatif initié en 2019 par le Haut-Commissaire à l'Énergie Atomique, avec pour objectif principal l'émergence d'innovations de rupture dans le domaine de l'assainissement et du démantèlement (A&D) à l'horizon de dix ans. La détection et la caractérisation des matières radioactives constituent un enjeu principal pour les besoins de l'A&D des sites nucléaires. Ces étapes permettent d'intervenir pour faire une cartographie radiologique des sites présentant des zones irradiantes potentielles, le plus rapidement possible, à moindre coût et avec plus de sûreté [1].

L'instrumentation nucléaire et les méthodes de mesure associées, qui ont connu ces dernières années des développements considérables (miniaturisation des systèmes de détection, localisation en temps réel des sources radioactives, amélioration des capteurs et de l'architecture électronique...) peuvent répondre aux défis d'envergure relatifs aux différents domaines d'applications mentionnés ci-dessus [2]. Les matières radioactives sont détectées, localisées et identifiées, à partir des détecteurs à gaz, à scintillation ou à semi-conducteurs qui permettent de mesurer un ou plusieurs types de rayonnements émis (alpha, bêta, neutron, et gamma). Caractériser la présence des sources radioactives, en particulier dans les colis de déchets, dans les boîtes à gants et dans le combustible nucléaire, figure parmi les objectifs majeurs du processus d'A&D des sites nucléaires en fin de vie.

Les spectromètres gamma, les spectro-imageurs gamma, les systèmes de comptage neutronique passif font partie des systèmes de mesure nucléaire souvent utilisés sur les chantiers nucléaires. Pour la spectrométrie gamma *in situ*, il existe par exemple les sondes CdZnTe qui sont adaptées aux besoins du démantèlement [3]. Pour les mesures à bas niveau, les détecteurs à scintillateur LaBr₃ sont les plus adaptés dans les mesures de contrôle final, lorsque le niveau de radioactivité nécessite un rendement de détection plus élevé [3]. En revanche, le détecteur germanium de haute pureté (HPGe) reste le standard pour les mesures de spectrométrie gamma de haute résolution. Avec ce type de détecteur (détecteur HPGe 40% d'efficacité relative), de la matière radioactive émettrice de photons gamma tels que le ¹³⁷Cs et le ⁶⁰Co peuvent être identifiés en trois minutes de mesure, avec des limites de détection de l'ordre de 0,1 Bq.g⁻¹ [1]. En ce qui concerne les spectro-imageurs gamma, plusieurs systèmes sont commercialisés et utilisés par les acteurs de l'A&D, tel que iPIX [4], NuVISION [5] ou POLARIS-H [6]. Ces spectro-imageurs permettent de localiser à distance les matières radioactives. L'image finale obtenue est une superposition de l'image de la zone irradiante sur une image visible de la scène observée. Ils permettent également d'identifier en temps réel les sources radioactives tout en estimant le débit de dose au point de mesure. Les conditions d'applications de ces systèmes sont diverses : pour le suivi de l'efficacité des phases d'assainissement des installations nucléaires, dans le domaine de la caractérisation radiologique des déchets nucléaires ou encore lors du suivi de chantier pour mettre en œuvre la démarche ALARA (*As Low As Reasonably Achievable*). Cette démarche vise à minimiser la dose reçue par les intervenants lors de l'exploitation d'une installation nucléaire. La technique de spectro-imagerie gamma est utilisée également pour une caractérisation précise de la répartition du terme source dans des environnements nucléaires. Cette information est ensuite intégrée dans les modèles radiologiques afin de créer des scénarios de réalité virtuelle qui permettent de prédire la dose de radiation reçue par les intervenants. Néanmoins, en dépit de sa maturité industrielle, la spectro-imagerie gamma présente certaines limitations et ne permet pas d'assurer une cartographie complète d'un site en démantèlement. Dans certains cas, tel que l'investigation sur boîtes à gants plombées contenant des sources de type (α , n), ou tout objet contenant du plutonium et possédant

une protection atténuante, l'imagerie gamma ne permet pas de confirmer la présence et la localisation d'isotopes d'intérêt.

D'autre part, la caractérisation radiologique des colis de déchets radioactifs issus des activités nucléaires s'appuie sur des méthodes de mesure nucléaire destructives et non destructives. L'une de ces méthodes est le comptage neutronique passif, qui se base sur la détection des neutrons émis spontanément par les actinides présents. Ils proviennent principalement de deux origines : les fissions spontanées et les réactions (α, n) . La technique de comptage par coïncidence, qui est l'une des techniques de référence pour la mesure neutronique passive, permet de distinguer les neutrons issus des fissions spontanées des neutrons résultant des réactions (α, n) . Cependant, cette méthode ne permet pas d'identifier l'origine spécifique de l'émission des neutrons, c'est-à-dire de déterminer la composition isotopique d'une source émettant des neutrons par fission spontanée. Pour obtenir cette information, une mesure de spectrométrie gamma est ajoutée en complémentaire. Ces deux techniques sont souvent appliqués pour caractériser les colis des déchets contenant de plutonium. En revanche, en présence d'émetteurs parasites par fission spontanée comme le ^{244}Cm , dont l'émission peut totalement masquer celle du plutonium, la mesure neutronique active peut s'avérer être le seul recours pour mesurer la masse fissile.

Dans ce contexte, la technique de spectro-imagerie neutronique qui sert à localiser et à identifier les sources neutroniques peut constituer une mesure complémentaire, allant au-delà du simple décompte des neutrons. Elle est particulièrement utile dans des situations impliquant un blindage gamma, pendant la détection de la présence de plutonium dans les boîtes à gants contaminées ou les colis de déchets radioactifs, ou bien en présence d'un émetteur de haute intensité qui masque les émissions gamma. La spectro-imagerie neutronique permet aussi d'apporter de l'information supplémentaire pour confirmer ce qui est mesuré par la technique de spectro-imagerie gamma. Hormis ces applications liées à l'A&D, il est envisagé que la spectro-imagerie neutronique puisse trouver des applications prometteuses dans le domaine de la sécurité intérieure, avec pour objectifs la détection du transport illicite de matières radioactives et la prévention des risques terroristes liés aux composants nucléaires et radiologiques (NR) [7].

Tenant compte de l'intérêt de la spectro-imagerie neutronique, l'objectif de la thèse est de développer un instrument compact et de haute sensibilité pour localiser et caractériser la matière radioactive émettrice de neutrons. Ce prototype sera destiné à localiser à distance les sources neutroniques et devra être compatible avec des mesures de spectrométrie neutronique (déterminer le spectre en énergie du point chaud irradiant) pour permettre le calcul de débit de dose neutronique et l'identification des sources neutroniques.

Deux axes principaux sont abordés dans le cadre de ces travaux de thèse : l'imagerie neutronique en utilisant la technique de l'encodage spatial à travers un masque codé, et la spectrométrie neutronique en utilisant la méthode de déconvolution pour la résolution du problème inverse, permettant de déterminer le spectre en énergie des neutrons émis.

Dans le **premier chapitre**, un état de l'art sur la caractérisation du champ neutronique sur les sites nucléaires sera réalisé. Nous aborderons notamment la radioactivité des principales sources neutroniques, leur distribution en énergie, et leur présence dans les milieux radioactifs (réacteurs nucléaires, déchets radioactifs), ainsi que les différents types de réactions des neutrons avec la matière pour comprendre la méthode de détection des neutrons suivant les caractéristiques du détecteur. Le chapitre présentera également un état de l'art des différentes technologies de spectro-imagerie neutronique, notamment la spectro-imagerie par diffusion élastique, l'imagerie par encodage spatial et la spectrométrie par déconvolution des spectres.

Le **deuxième chapitre** visera à démontrer par simulation Monte Carlo la possibilité de réaliser des mesures de spectrométrie neutronique à l'aide d'un monobloc de scintillateur plastique, couplé à un code de déconvolution spécifique. L'étude s'intéressera aux spectres en énergie émis par des sources neutroniques de type fission spontanée telles que le ^{252}Cf et les sources émettant des neutrons par réaction (α, n) telles que l'AmBe. Pour ce faire, trois codes de déconvolution de référence, MAXED (*Maximum Entropy Deconvolution*), GRAVEL et MLEM (*Maximum Likelihood Expectation Maximization*), seront testés et comparés en les appliquant sur des données simulées.

Dans le **troisième chapitre**, nous décrivons le prototype expérimental composé d'un monobloc de scintillateur plastique couplé à une matrice de photomultiplicateurs en silicium (SiPM), suivi d'une méthodologie d'étalonnage avec des rayonnements gamma. Nous mesurerons également la réponse lumineuse des protons pour établir une relation entre l'énergie en équivalent électrons (MeVee) et l'énergie en équivalent protons (MeVep), en utilisant deux types de sources mono-énergétique de référence : un générateur de champs neutroniques mono-énergétiques et un faisceau de protons. Finalement, des mesures de spectrométrie neutronique à l'aide du prototype expérimental seront présentées.

Après avoir montré par simulation et de manière expérimentale la validité de la méthode de déconvolution des spectres neutroniques obtenus à l'aide d'un monobloc de scintillateur plastique, nous présentons dans le **quatrième chapitre** le prototype d'imageur neutronique existant. Ce dernier est formé d'un scintillateur plastique constitué de 12×12 pixels lié optiquement à une matrice de 12×12 SiPM, et d'un masque codé de type MURA. L'un des objectifs de cette thèse vise à intégrer des mesures de spectrométrie neutronique sur ce type d'imageur. Tout d'abord, des mesures d'imagerie neutronique en conditions de laboratoire et *in situ* seront montrées. Ensuite, des études par simulation Monte Carlo seront menées pour vérifier la capacité d'un scintillateur pixellisé à réaliser la spectrométrie neutronique en utilisant la méthode de déconvolution des spectres. Finalement, nous exposerons les essais préliminaires pour effectuer l'étalonnage par pixel du scintillateur plastique pixellisé.

Bibliographie de l'introduction générale

- [1] L'assainissement-démantèlement des installations nucléaires, monographie de la Direction de l'Énergie nucléaire, Commissariat à l'énergie atomique et aux énergies alternatives, (2017). https://www.cea.fr/multimedia/Documents/publications/monographie-nucleaire/CEA_Monographie13_Assainissement-demantelement-installations-nucleaires_2017_Fr.pdf.
- [2] L'instrumentation et la mesure en milieu nucléaire, monographie de la Direction de l'Énergie nucléaire, Commissariat à l'énergie atomique et aux énergies alternatives, 2018. https://www.cea.fr/multimedia/Documents/publications/monographie-nucleaire/CEA_Monographie8_Instrumentation-mesure-milieu-nucleaire_2018_Fr.pdf.
- [3] Instrumentation des processus de collecte des données radiologiques pour l'Assainissement, le Démantèlement et le Déclassement (A&D²) des installations nucléaires Instrumentation of the radiological data collection processes for, Dismantling and Decommissioning of nuclear facilities View project Philippe Girones TechnicaAtome, (2016). <https://doi.org/10.13140/RG.2.2.33620.60808>.
- [4] Mirion Technologies, Gamma imaging iPIX, 2019. <https://www.mirion.com/products/technologies/health-physics-radiation-safety-instruments/portable-radiation-measurement/gamma-imaging-systems/ipix-ultra-portable-gamma-ray-imaging-system>.
- [5] G. Montémont, P. Bohuslav, J. Dubosq, B. Feret, NuVISION: a Portable Multimode Gamma Camera based on HiSPECT Imaging Module, IEEE Nuclear Science Symposium and Medical Imaging Conference. (2017) 6–8.
- [6] C.G. Wahl, W.R. Kaye, W. Wang, F. Zhang, J.M. Jaworski, A. King, Y.A. Boucher, Z. He, The Polaris-H imaging spectrometer, Nucl Instrum Methods Phys Res A. 784 (2015) 377–381. <https://doi.org/10.1016/J.NIMA.2014.12.110>.
- [7] H. Al Hamrashdi, D. Cheneler, S.D. Monk, A fast and portable imager for neutron and gamma emitting radionuclides, Nucl Instrum Methods Phys Res A. 953 (2020) 163253. <https://doi.org/10.1016/J.NIMA.2019.163253>.

Chapitre I. Contexte des travaux et état de l'art sur la spectro-imagerie neutronique

I.1. Contexte

La production d'énergie nucléaire à partir de la fission de noyaux atomiques englobe diverses activités telles que la création, la construction, la gestion et la maintenance des centrales nucléaires, ainsi que la gestion des déchets radioactifs. Cette industrie est strictement réglementée en raison des risques associés à la radioactivité, et nécessite une expertise technique et scientifique pointue. À 60 ans d'âge, l'industrie nucléaire française entre dans une période où ses premières installations arrivent en fin de vie. À ce stade, l'assainissement et le démantèlement des sites nucléaires sont indispensables pour fermer proprement le cycle de vie d'une installation. En parallèle, la prolongation de la durée de vie des centrales nucléaires, en particulier, est de plus en plus envisagée en raison de ses avantages économiques incontestables. Dans ce sous-chapitre nous présentons les principales étapes et besoins de l'assainissement et démantèlement ainsi que le rôle essentiel de l'instrumentation nucléaire dans ce contexte.

I.1.1. L'assainissement et démantèlement des sites nucléaires

Le processus d'assainissement et de démantèlement (A&D), prescrit par un décret, démarre dès lors qu'une installation nucléaire est mise à l'arrêt définitif. Cette stratégie de démantèlement immédiat a été adoptée par la France, en accord avec les recommandations de l'AIEA (Agence internationale de l'énergie atomique). La mise à l'arrêt d'une installation nucléaire résulte soit d'une décision économique de l'exploitant, soit de l'application des réglementations nationales et internationales visant à garantir que le site réponde aux normes de santé et de sécurité et que tout risque environnemental soit écarté. Ces différentes opérations consistent à évacuer les matières et les déchets radioactifs, à retirer les équipements présents, et à assainir et à déconstruire les bâtiments d'une installation nucléaire. De nombreux sites sont concernés, incluant les réacteurs nucléaires, les installations de recherche et les installations de stockage des déchets radioactifs, qui sont en fin de vie ou en arrêt définitif. L'objectif de ce processus est de s'assurer que le site ne présente aucun risque pour les travailleurs ou le public, et de le rendre compatible avec une éventuelle réutilisation [1]. En France, l'industrie nucléaire possède une expérience solide dans le domaine de la décontamination et du démantèlement. En 2023, 35 installations nucléaires sont arrêtées et/ou en cours de démantèlement, comprenant des réacteurs de production d'électricité, des réacteurs de recherche, des laboratoires, des usines, et des installations de traitement de déchets [2]. En mars 2016 [3], la Direction de l'Énergie Nucléaire (DEN) du CEA, désormais Direction des Énergies (DES), était responsable sur les centres civils de l'assainissement et du démantèlement de 22 installations nucléaires sur un total de 43, soit près des deux tiers des installations françaises en cours de démantèlement. Le CEA consacre annuellement une somme qui s'élève jusqu'à 740 millions d'euros pour les activités A&D (fonds dédié à des fins civiles et de défense) sur un budget global de l'organisme d'environ 5 milliards d'euros [4]. Le CEA a actuellement les plus grands projets de démantèlement

d'installations nucléaires dans le monde, tels que les bâtiments du site de Fontenay-aux-Roses (INB 165 et 166), l'installation de traitement UP1 à Marcoule et le réacteur à neutrons rapides PHÉNIX (INB 71). De plus, le démantèlement et la réhabilitation du site CEA de Grenoble qui ne présente plus d'activités nucléaires depuis plusieurs années est un exemple d'opérations d'A&D et de déclassement réussies.

L'assainissement et le démantèlement d'un site nucléaire peuvent comporter les étapes suivantes :

- La caractérisation de l'état initial du site, qui comprend la collecte des données initiales, telles que les plans de l'installation, l'historique du site et les études radiologiques qui peuvent comprendre des campagnes de mesures nucléaires *in-situ*.
- La préparation des opérations qui comporte l'installation de dispositifs de sas (système d'air sain) de ventilation pour maintenir une barrière de confinement statique et dynamique, la mise en place de matériel de contrôle de radioprotection, ainsi que la préparation des tenues de protection et des outils adaptés.
- La réalisation d'opérations en milieu hostile : assainissement préalable, démontage, découpe, décapage, et décontamination des structures et du génie civil.
- Le conditionnement des déchets et le traitement des effluents des opérations A&D.
- La caractérisation des déchets ou des effluents : stockage et entreposage des déchets, et rejet des effluents.

Par ailleurs, le démantèlement normalement programmé diffère d'un démantèlement après un accident. En général, lors du démantèlement classique d'un réacteur, le cœur radioactif contenant la quasi-totalité de la radioactivité est retiré, et le terme source est ainsi limité à la cuve et à son environnement proche. En cas d'accident, une partie importante de l'inventaire radioactif du cœur peut être dispersée dans un volume plus important (comme le circuit primaire, l'enclaustrage de confinement et l'environnement). Le rejet externe des matières radioactives nécessite le développement de nouvelles techniques, telles que la décontamination des sols [5]. Nous ajoutons aussi la problématique du traitement du corium (cœur fondu du réacteur) qui est la partie non dispersée par l'accident et qui demeure en fond de radier. Dans tous les cas, des techniques de démantèlement spécifiques doivent être mises en place pour faire face à ces situations exceptionnelles. Nous pouvons citer trois accidents à fort impact public et médiatique, montrés sur la Figure I-1, qui étaient ceux qui se sont produits à Three Mile Island (TMI) aux États-Unis en 1979, à Tchernobyl en URSS en 1986, et à Fukushima au Japon en 2011 [1].



Figure I-1 À gauche : Site de Three Mile Island [1]. Au milieu : Centrale de Tchernobyl en 1986 juste après l'explosion du cœur [1]. À droite : la centrale électrique de Fukushima Dai-ichi avant et après le tsunami dévastateur au Japon en 2011 [6].

I.1.2. L'instrumentation et la mesure en milieu nucléaire

Pour comprendre l'état actuel d'une installation avant son démantèlement, il faut aller au-delà de la simple connaissance de son historique. Des mesures doivent être réalisées sur le site pour obtenir une caractérisation radiologique complète, en respectant des critères de performance (seuil de détection, précision, coût) et des contraintes de réalisation (milieux complexes, irradiants et peu accessibles). Les instruments déployés lors de cette phase cruciale de caractérisation sont par exemple, des imageurs gamma et alpha et des outils compatibles avec la spectrométrie gamma *in-situ* [7,8]. Dans le domaine de la spectro-imagerie gamma, plusieurs prototypes ont été développés par le CEA et certains d'entre eux ont été industrialisés : CARTOGAM [9], iPIX [10], NuVISION [11] et Spid-X [12]. La Figure I-2 montre une photographie de la caméra gamma GAMPIX développée par le CEA List dans le cadre d'une collaboration internationale, et qui a été commercialisée par Mirion Technologies sous le nom d'iPIX. On peut souligner que le domaine de la spectro-imagerie gamma fait l'objet d'une forte concurrence au niveau mondial (ASTROCAM 7000HS [13], POLARIS-H [14], GeGI [15] et N-Visage [16]). Ces systèmes permettent de réaliser des cartographies radiologiques pendant le démantèlement d'une installation nucléaire, en indiquant la localisation et l'intensité d'un point chaud ainsi que l'identification des radio-isotopes. Ils peuvent également être utilisés pour des applications en lien avec la sécurité intérieure tels que le soutien à l'exploitation des installations et le suivi de procédé. Néanmoins, en dépit de sa maturité industrielle, la spectro-imagerie gamma présente certaines limitations et ne permet pas d'assurer une cartographie complète d'un site en démantèlement. Dans certains cas, tels que la présence de blindage gamma, l'imagerie gamma ne permet pas de confirmer la présence de radioéléments d'intérêt, tels que le plutonium ou l'uranium. L'alternative offerte par un spectro-imageur neutronique constitue alors une option séduisante pour pallier certaines difficultés

liées à la détection des rayonnements gamma. De plus, la spectro-imagerie neutronique a des applications cruciales dans le domaine de la sûreté et de la radioprotection. Elle est essentielle pour gérer le risque lié à l'exposition externe aux neutrons en mesurant précisément la dose reçue. Pour effectuer cette mesure de dose, il est indispensable de déterminer les spectres neutroniques afin de calculer le coefficient de conversion entre la fluence neutronique et le débit d'équivalent de dose. En plus, la mesure neutronique joue un rôle essentiel dans le contrôle de la criticité par la limitation de la concentration en matières fissiles. En effet, dans les installations de retraitement, elle est utilisée pour la caractérisation des sources neutroniques anciennes, et leur reprise éventuelle. Elle permet aussi d'étudier le terme source dans les accélérateurs médicaux en cas d'activation neutronique. En outre, la spectro-imagerie neutronique est une mesure qui pourrait s'avérer nécessaire en amont des opérations de RCD (Reprise et Conditionnement des Déchets) afin d'améliorer la connaissance des déchets et, en particulier, de localiser avec plus de précision la source émettrice de neutrons. Bien que l'industrie nucléaire ne propose pas d'appareils pour l'imagerie neutronique, elle dispose de plusieurs spectromètres neutroniques industrialisés tels que le DIAMON [17] et le ROSPEC [18]. En partant de ce constat, l'objectif de la thèse est de développer un spectro-imageur neutronique compact et de haute sensibilité pour localiser et identifier les objets émetteurs de neutrons. Notre travail de recherche vise à rendre possible, sur le long terme, une cartographie plus complète de la contamination radiologique pour les opérations d'A&D, en atteignant les objectifs suivants : optimiser les scénarios d'intervention en réduisant les délais d'investigation et les coûts de chantier, respecter les principes ALARA en diminuant la durée d'exposition et l'augmentation des protections individuelles ou collectives, et augmenter l'efficacité du traitement des déchets radioactifs en caractérisant des colis de déchets plutonifères et uranifères.



Figure 1-2 À gauche : la caméra gamma iPIX-NID. À droite : exemple de mesure d'imagerie gamma pour le contrôle de contamination dans une boîte à gants [19].

I.2. La caractérisation du champ neutronique en milieu nucléaire

Les techniques de mesure neutronique passives ont été utilisées dans l'industrie depuis plusieurs décennies pour caractériser les colis de déchets et les matières nucléaires, notamment dans le domaine de l'A&D. Ces techniques incluent les méthodes de comptage total, le comptage des coïncidences neutroniques et le comptage de multiplicités neutroniques [20]. La méthode de comptage total est la mesure de tous les neutrons émis par le contaminant, quelle que soit leur origine telles que les fissions spontanées ou les réactions (α , n). Les méthodes de comptage de coïncidence neutroniques permettent de distinguer les neutrons selon leur origine, notamment ceux émis par des réactions (α , n) et ceux issus de fission. Cette discrimination repose sur le fait que les neutrons de fission sont émis au nombre de 2 à 3 en moyenne, contrairement aux neutrons des réactions (α , n) émis individuellement. En éliminant les neutrons non corrélés, cette technique réduit le bruit de fond dans les mesures passives et ne prend en compte que les produits de fission spontanée. Finalement la méthode de comptage par multiplicité qui est une extension de la méthode de comptage des coïncidences neutroniques permet de déterminer le taux de fissions spontanées, le taux de réactions (α , n) et le taux des fissions induites. D'autre part, les méthodes actives, telles que la technique d'analyse différentielle (DDT) [21], utilisent des neutrons externes pour induire de nombreuses réactions de fission, ce qui permet des mesures plus sensibles et plus précises que les méthodes passives. Dans ce chapitre nous présentons les principales sources neutroniques rencontrées dans ce contexte, ainsi que les interactions des neutrons avec la matière qui peuvent influencer le choix des détecteurs neutroniques utilisés.

I.2.1. Les sources neutroniques dans un milieu nucléaire

Les matières nucléaires émettrices de neutrons usuellement rencontrées dans les déchets nucléaires et le combustible usé sont le plutonium, le curium et l'uranium. Le débit d'émission neutronique des principaux isotopes sous différentes formes chimiques est rappelé dans le Tableau I-1. La quantification de ces sources se fonde sur l'émission spontanée de neutrons. Ces derniers sont produits, en fonction de la forme chimique de l'isotope, principalement par deux sources : les fissions spontanées et les réactions (α , n). Le débit d'émission neutronique par la réaction (α , n) est fortement sensible à la forme chimique du contaminant (métal-liquide, oxyde, fluorée...), pour lequel la production de neutrons peut varier d'un facteur 1000 avec la nature de l'élément léger (par exemple $1,34 \times 10^4$ neutrons/s pour le PuO_2 contre $2,2 \times 10^6$ neutrons/s pour le PuF_4). Cette approche présente un inconvénient majeur pour la mesure neutronique passive qui vise à détecter l'ensemble de neutrons émis sans distinction d'origine (comptage total neutronique) afin d'obtenir une information sur la quantité d'actinides présente dans un objet. Afin de pallier ce problème, il est nécessaire de distinguer la partie du signal provenant des fissions spontanées de celle provenant des réactions (α , n) en utilisant la méthode de comptage des coïncidences neutroniques. Le principe de discrimination repose sur le fait que les neutrons émis par une réaction de fission spontanée sont corrélés dans le temps (2 ou 3 neutrons sont émis simultanément), alors que les neutrons émis par la réaction (α , n) sont non corrélés. D'autre part, identifier les isotopes émetteurs en se basant sur l'énergie des neutrons émis représente un défi majeur, car contrairement aux mesures effectuées par spectrométrie gamma, tous les isotopes produisent des neutrons selon un spectre continu et sont presque similaires pour plusieurs actinides (comme le montre la Figure I-3). De plus, l'énergie moyenne des neutrons produits par fissions spontanées et réactions (α , n) sous forme chimique oxyde est proche de 2 MeV.

Tableau I-1 Débit d'émission neutronique des principaux isotopes sous différentes formes chimiques [22].

RN	Période (année)	E_n fissions spontanées (n/s/g)	E_n (α, n) oxyde (n/s/g)	E_n totale (n/s/g)
^{238}Pu	$8,77 \times 10^1$	$2,59 \times 10^3$	$1,34 \times 10^4$	$1,599 \times 10^4$
^{240}Pu	$6,56 \times 10^3$	$1,02 \times 10^3$	$1,41 \times 10^2$	$1,161 \times 10^3$
^{242}Pu	$3,76 \times 10^5$	$1,72 \times 10^3$	2,0	$1,722 \times 10^3$
^{241}Am	$4,336 \times 10^2$	1,2	$2,69 \times 10^3$	$2,691 \times 10^3$
^{242}Cm	$4,5 \times 10^{-1}$	$2,1 \times 10^7$	$3,8 \times 10^6$	$2,5 \times 10^7$
^{244}Cm	$1,81 \times 10^1$	$1,08 \times 10^7$	$7,78 \times 10^4$	$1,08 \times 10^7$
^{252}Cf	2,64	$2,34 \times 10^{12}$	$6,0 \times 10^5$	$2,34 \times 10^{12}$

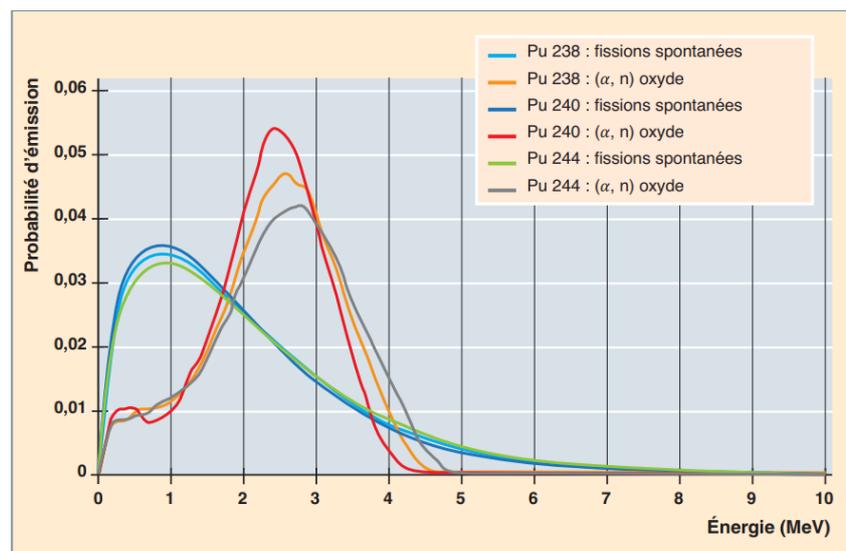


Figure I-3 Les spectres énergétiques de l'émission neutronique pour différents isotopes du plutonium, pour des réactions de fission spontanée et des réactions (α, n) sur la forme chimique oxyde. Ces résultats sont issus de calculs de modélisation [22].

Les fissions spontanées sont particulièrement intenses pour les isotopes pairs du plutonium et du curium. La présence de curium qui émet des neutrons de manière très intense, peut parfois poser un problème lorsque l'objectif est de quantifier le plutonium, car cette forte présence de neutrons émis par le curium peut masquer ceux émis par le plutonium. D'autre part, l'uranium est un émetteur neutronique peu intense mais il est possible de le caractériser par comptage neutronique total dans certaines conditions : fortes masses de l'ordre du kg ou forme chimique conduisant à une émission (α, n) significative, comme les fluorures d'uranium UO_2F_2 [23]. Pour caractériser l'uranium, il est possible de mesurer les neutrons retardés émis par la fission induite de l'uranium en l'exposant à un générateur de neutrons (Deutérium-Tritium) compact émettant des neutrons mono-énergétiques de 14,1 MeV [24].

Dans ce paragraphe (I.2.1), nous avons identifié deux principaux types de sources neutroniques utilisés dans les milieux nucléaires : les sources de neutrons par fission spontanée et induite, et les sources de neutrons par réaction (α, n). Dans le paragraphe suivant (I.2.1.1) nous nous concentrons sur une explication détaillée de chaque type de source neutronique mentionnée précédemment en ajoutant les caractéristiques des générateurs de neutrons mono-énergétiques.

I.2.1.1. Les sources de neutrons par fission spontanée et induite

La fission spontanée est une forme de désintégration radioactive caractéristique des isotopes très lourds (A du noyau > 100) qui se déroule sans apport d'énergie provenant d'une particule extérieure, et qui est accompagnée de l'émission simultanée de 2 à 4 neutrons. Le ^{252}Cf est l'un des radio-isotopes les plus couramment utilisés dans l'industrie nucléaire. Il émet plusieurs neutrons par fission spontanée avec une énergie moyenne de 2 MeV. La décroissance radioactive est dominée par la désintégration α et seulement 3,2% des désintégrations se font par fission spontanée avec émission de neutrons. La désintégration α et fission spontanée sont accompagnées d'une émission photonique prompte et retardée par désexcitation des fragments de fission. Cependant, son fort débit d'émission de neutrons ($2,34 \times 10^{12}$ neutrons. $\text{s}^{-1}.\text{g}^{-1}$) par fission spontanée permettent de l'utiliser comme une source de neutrons [25]. Les spectres en énergie des neutrons de fission du ^{239}Pu et ^{252}Cf sont présentés sur la Figure I-4. Ils suivent une forme de type spectre de Watt, ce spectre est décrit par l'équation (I-1) dont les paramètres a et b sont ajustés sur les spectres expérimentaux et c est une constante de normalisation. Les valeurs de a et b sont indiquées dans la référence [26].

$$f(x) = c e^{-\frac{x}{a}} \sinh(\sqrt{bx}) \quad (I-1)$$

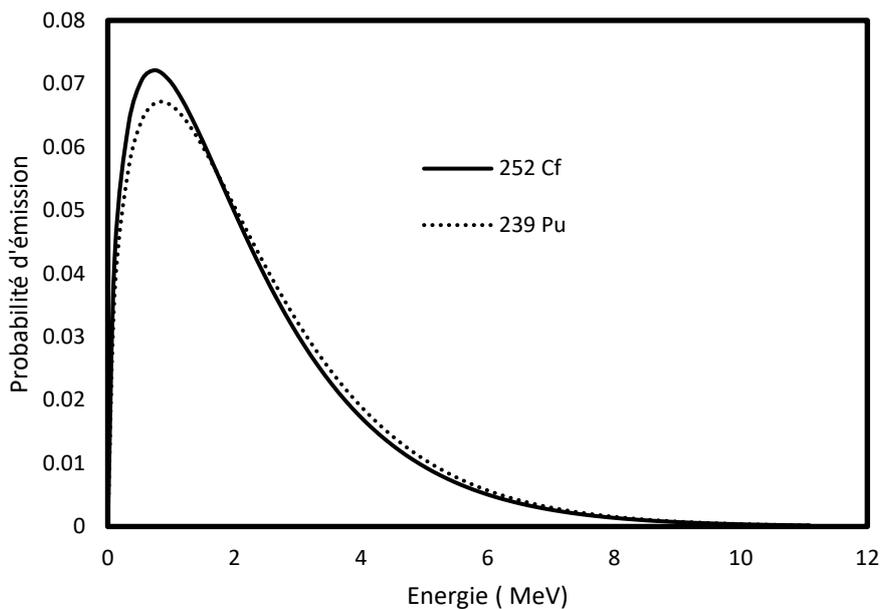
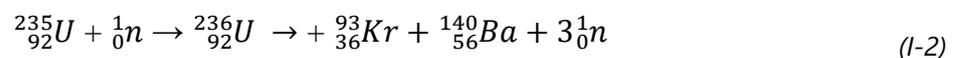


Figure I-4 Spectres en énergie des neutrons émis par fission induite du ^{239}Pu (ligne en pointillés) et par fission spontanée du ^{252}Cf (ligne pleine).

La fission induite a lieu lorsqu'un neutron est capturé par un noyau lourd fissile qui se divise en deux fragments plus légers. Cette réaction s'accompagne généralement par l'émission d'environ 3 neutrons et d'une énergie haute moyenne d'environ 194 MeV, qui est sous forme d'énergie cinétique des deux fragments émis [27]. La fission de l' ^{235}U naturel, de l' ^{233}U et du ^{239}Pu artificiels, est optimale à des énergies neutroniques incidentes thermiques, tandis que la fission de l' ^{238}U et du ^{232}Th nécessite des énergies neutroniques d'au moins 1 MeV. L'équation (I-2) montre la réaction de fission induite de l' ^{235}U [23,24].



I.2.1.2. Les sources de neutrons par réaction (α, n)

Les réactions (α, n) produisent uniquement un neutron rapide suite à l'interaction entre un émetteur α (^{241}Am , ^{239}Pu , ^{242}Cm , ^{244}Cm ...) avec un élément léger présent dans le milieu (comme Be, B, C, O, F, etc.). Ces réactions sont particulièrement intenses pour les actinides fortement émetteurs alpha tels que ^{238}Pu et ^{241}Am . Prenant l'exemple de la source AmBe : l'énergie de la particule α émise par l' ^{241}Am est voisine de 5 MeV [28], et la forme continue du spectre en énergie de l'AmBe, présentée sur la Figure I-5, est due au ralentissement de la particule α dans la source. Les neutrons produits ont des énergies pouvant atteindre 11 MeV avec une valeur moyenne d'environ 4,5 MeV (réaction (I-3)) [28]. L'AmBe est également une source gamma de haute énergie provenant de la désexcitation du ^{12}C décrite dans la réaction (I-4). Les émissions des neutrons et des photons gamma par la source AmBe sont décrites par les réactions suivantes :

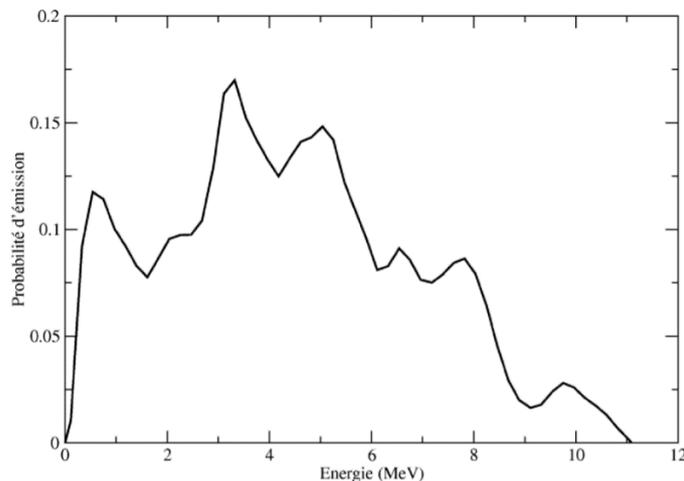
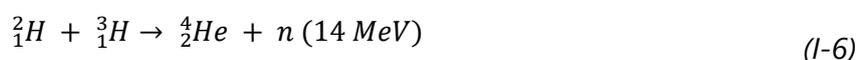


Figure I-5 Spectre en énergie de la source neutronique AmBe mesurée dans [29].

I.2.1.3. Les sources de neutrons produits par des générateurs de neutrons

Le fonctionnement d'un tel générateur repose sur des réactions nucléaires de fusion, fission, ou *stripping* [30]. Dans le domaine de la détection des matières radioactives, les accélérateurs de particules générateurs de neutrons, reposant sur la fusion de deux particules chargées, sont principalement utilisés. Les avantages de ce type de sources sont qu'elles émettent des neutrons mono-énergétiques et peuvent fonctionner en mode continu ou pulsé.

Les neutrons sont générés par l'accélération des ions deutérium (${}^2\text{H}$) qui, par impact sur une cible de deutérium ou de tritium, produisent des neutrons d'énergie 3 MeV et 14 MeV respectivement selon les réactions (I-5) et (I-6) :



Pour les deux réactions d-d et d-t citées précédemment, l'énergie du faisceau de deutons requise pour générer un rendement neutronique important se situe entre 100 et 400 keV [31]. En raison de cette énergie de faisceau relativement faible, des accélérateurs compacts ont pu être conçus et utilisés.

I.2.2. L'interaction des neutrons avec la matière

I.2.2.1. Diffusion élastique par un noyau A (n, n)

Pendant cette interaction, un neutron entre en collision avec un noyau cible et rebondit dans une direction différente, comme le montre la Figure I-6. Une partie de l'énergie cinétique du neutron est transférée au noyau. L'énergie de recul E_p de la cible est liée directement à l'énergie du neutron incident E_n par l'équation (I-7), avec A, le nombre de masse du noyau cible, et θ l'angle de diffusion du noyau de recul.

$$E_p = \frac{4A}{(1+A)^2} \cos^2(\theta) E_n \quad (I-7)$$

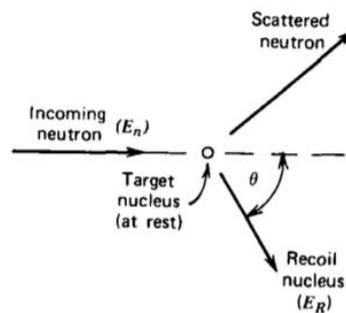


Figure I-6 Schéma de diffusion élastique des neutrons dans le système de coordonnées de laboratoire.

Cette méthode permet de détecter le neutron en observant le recul du noyau. Les noyaux légers, dont la masse est proche de celle du neutron, ont relativement une grande section efficace de diffusion élastique (~5 barns) avec des neutrons d'énergie entre 10 keV et 1000 keV [32]. Parmi ces noyaux, on trouve souvent l'interaction avec l'hydrogène, l'hélium et le deutérium. L'interaction avec l'hydrogène est la plus populaire. Les noyaux de recul qui résultent de la diffusion élastique des neutrons sur l'hydrogène sont appelés protons de recul, et les dispositifs basés sur cette interaction neutronique sont souvent appelés détecteurs à protons de recul. Les détecteurs à protons de recul les plus couramment utilisés sont basés sur des scintillateurs dont nous détaillerons le principe de fonctionnement ultérieurement dans le manuscrit.

I.2.2.2. Capture radiative (n, γ)

La capture radiative consiste à exposer une cible à un flux neutronique. Les neutrons sont capturés par le noyau de la cible, ce qui rend cette dernière radioactive et se traduit immédiatement par l'émission d'un rayonnement gamma. La mesure de la radioactivité induite et de son intensité permet de remonter à l'intensité du flux de neutrons émis par la source [33]. Les matériaux qui peuvent être utilisés pour les détecteurs à activation sont notamment l'indium, l'or, le rhodium, le fer, ou bien encore le niobium. L'utilisation d'échantillons absorbeurs multiples permet de caractériser le spectre

d'énergie neutronique. On peut également souligner que la détection des neutrons thermiques par les dosimètres d'accident de criticité est basée sur le principe d'activation.

1.2.2.3. Conversion neutron en particule chargée par réaction nucléaire (n, p) et (n, α)

Cette méthode de détection consiste à convertir les neutrons en particules chargées directement détectables tels que les électrons, protons, ou bien encore alphas. Il convient de noter que ces techniques de détection requièrent la modération préalable des neutrons avec le polyéthylène ou le graphite.

- La réaction (n, p) sur ${}^3\text{He}$

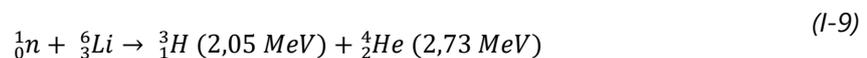
La capture neutronique par ${}^3\text{He}$, est une réaction exothermique avec une énergie de réaction $Q=764$ keV, dont la section efficace pour les neutrons thermiques ($\sigma_{\text{thermique}}=5330$ barns) et ($\sigma_{\text{rapide}}\approx 2$ barns) pour les neutrons rapides [16]. Cette réaction est décrite dans l'équation (I-8).



La grande section efficace thermique de ${}^3\text{He}$ et son excellente capacité à séparer les neutrons des gamma ont fait de ce gaz le convertisseur dominant pour la détection des neutrons thermiques. Néanmoins, le prix de l'hélium a connu au milieu des années 2000 une hausse importante en raison d'une pénurie mondiale, faisant suite aux événements du 11 septembre 2001. Des isotopes alternatifs à ${}^3\text{He}$ comme le lithium, le bore et le gadolinium, peuvent également être utilisés pour détecter les neutrons thermiques.

- La réaction (n, α+t) sur ${}^6\text{Li}$

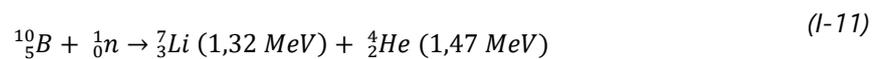
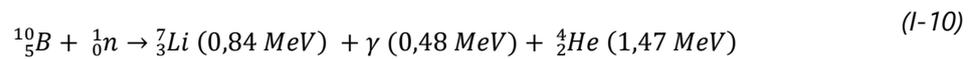
Dans le lithium naturel, le ${}^6\text{Li}$, isotope d'intérêt, n'est présent que dans un pourcentage limité (7,5%). Pour cette raison, quand un neutron interagit avec le lithium, la capture neutronique ne concerne généralement que les 7,5 % d'isotope ${}^6\text{Li}$ selon la réaction (I-9). Pour cette raison, des études sont menées, visant à enrichir le lithium en ${}^6\text{Li}$ pour maximiser le taux d'interaction [34].



La section efficace associée est $\sigma_{\text{thermique}}= 940$ barns et la valeur d'énergie libérée $Q=4,78$ MeV. Cette énergie est répartie entre les deux produits de désintégration (α et triton), ce qui leur permet d'être assez énergétiques, et donc d'être facilement détectés et comptés.

- La réaction (n, α) sur ^{10}B

Cette réaction est l'une des réactions les plus populaires pour détecter les neutrons thermiques. Elle se caractérise par une grande section efficace $\sigma_{\text{thermique}} = 3840$ barns, et une abondance isotopique importante du ^{10}B (19,8%). Environ 94% des réactions conduisent à un état excité du ^7Li et seulement 6% directement à l'état fondamental. L'énergie émise Q par ces réactions est de 2,79 MeV et est répartie respectivement selon les équations (I-10) et (I-11) [35].



I.2.3. Les détecteurs de neutrons

On distingue trois grandes familles de détecteurs neutroniques qui se différencient par la réaction nucléaire mise en jeu et leur mode d'application.

I.2.3.1. Détecteur à gaz

Le détecteur de neutron à gaz est formé principalement d'une enceinte remplie de gaz sensible aux neutrons tel que l'hélium-3 (^3He) ou le tri-fluorure de bore (BF_3). Dans l'enceinte sont présentes deux électrodes électriquement isolées entre lesquelles on applique une différence de potentiel. Quand un neutron thermique traverse le volume du gaz, il est capturé et converti en une particule chargée selon la réaction (n, p) dans le cas de ^3He . La particule chargée va ioniser le gaz en créant des paires électrons/ions qui sous l'effet du champ électrique, seront attirées par les électrodes comme l'illustre la Figure I-7 (à gauche). Selon le nombre d'ions collectés et la tension d'alimentation, les détecteurs à gaz fonctionnent sous différents modes rappelés sur la Figure I-7 (à droite) [36] : chambre d'ionisation, régime proportionnel ou régime Geiger-Müller. Pour la détection des neutrons thermiques, on utilise souvent un détecteur à gaz en mode compteur proportionnel qui, en le reliant à un analyseur multicanal, donne une information sur l'énergie cédée dans le gaz. Ces détecteurs doivent être placés dans des modérateurs constitués de paraffine ou de polyéthylène visant à ralentir les neutrons rapides incidents, afin d'optimiser l'efficacité de détection. De plus, il existe également des compteurs proportionnels destinés à la détection des neutrons rapides par diffusion élastique avec les noyaux d'hydrogène, notamment les compteurs remplis de gaz d'hydrogène ou de gaz hydrogéné (CH_4).

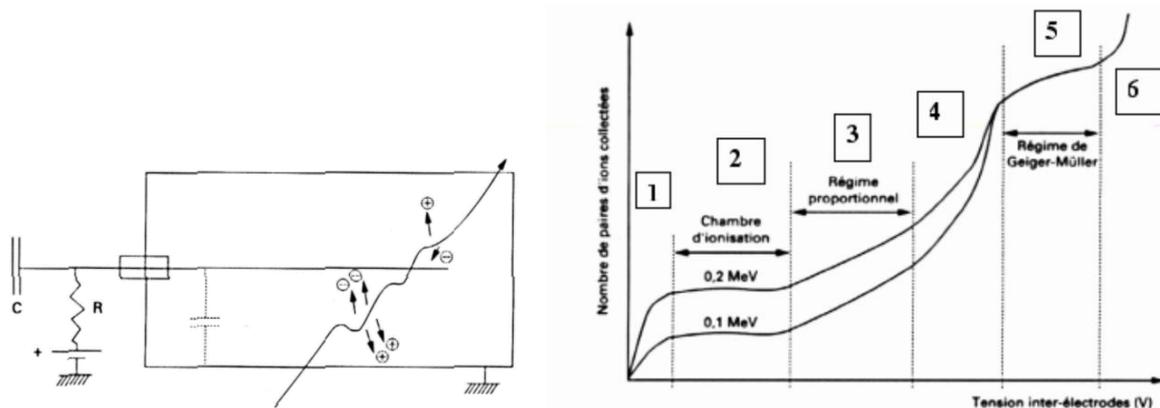


Figure 1-7 À gauche : Schéma de principe de fonctionnement des détecteurs à gaz [37]. À droite : les différents modes de fonctionnement des détecteurs à gaz [36] (b).

1.2.3.2. Détecteur à scintillation

Les scintillateurs sont des matériaux qui émettent de la lumière visible, suite au passage d'une particule chargée ou d'un photon. En d'autres termes, ils permettent de convertir l'énergie cinétique de la particule incidente en lumière détectable. Il existe deux grandes familles de scintillateurs : les scintillateurs organiques et inorganiques.

Les scintillateurs organiques sont constitués principalement d'hydrogène et de carbone. Les scintillateurs organiques, fortement hydrogénés, sont les plus appropriés pour la détection des neutrons rapides. Ces derniers interagissent avec l'atome d'hydrogène selon la diffusion élastique indiquée dans le paragraphe 1.2.2.1. Les protons de recul déposent leur énergie en excitant les molécules du scintillateur, qui par désexcitation émettent ensuite de la lumière visible. La lumière visible est ensuite transformée en signal électrique à l'aide d'un photomultiplicateur relié au scintillateur. Les scintillateurs plastiques possèdent une excellente résolution temporelle (quelques ns) [38]. La détection de la composante thermique est également possible en dopant les scintillateurs en ${}^6\text{Li}$ ou en ${}^{10}\text{B}$.

Les scintillateurs inorganiques sont des matériaux minéraux sous forme de cristaux, tels que l'iodure de sodium (NaI(Tl)), le germanate de bismuth (BGO) et le bromure de lanthane dopé au cérium ($\text{LaBr}_3(\text{Ce})$). Ils présentent généralement une masse volumique élevée par rapport à leurs homologues organiques (à titre d'exemple, $5,29 \text{ g.cm}^{-3}$ pour un $\text{LaBr}_3(\text{Ce})$ et $1,096 \text{ g.cm}^{-3}$ pour un scintillateur organique de type EJ-276), ce qui les rend plus efficace pour la détection des rayonnements gamma. Ils ont été principalement développés pour la détection et la caractérisation des rayonnements gamma, mais de nombreux cristaux inorganiques ont également été développés pour la détection des neutrons thermiques. Ceci est dû au fait que les cristaux contiennent un matériau avec une section efficace de neutrons élevée, tel que l'ion lithium (${}^6\text{Li}$) qui a été le plus largement adapté dans les cristaux inorganiques, comme le LiI(Eu) . Les scintillateurs inorganiques tels que $\text{Cs}_2\text{LiYCl}_6$ (CLYC) et $\text{Cs}_2\text{LiLaBr}_6$ (CLLB) sont particulièrement adaptés pour la détection des neutrons thermiques. D'autre part, lorsque ces cristaux sont dopés avec du Ce, ils présentent d'excellentes caractéristiques de séparation neutrons/gamma, ainsi qu'une très haute résolution énergétique (5% et 4,84% pour CLYC et CLLB, respectivement, à une énergie de 662 keV) [39,40].

I.2.3.3. Détecteur à semi-conducteur

Un semi-conducteur est un matériau, dont les propriétés de conductibilité électrique se situent entre un matériau conducteur et un matériau isolant. Ce qui les distingue est la présence d'une bande interdite entre la bande de valence et la bande de conduction (ex : silicium, germanium). Lorsque les particules ionisantes pénètrent dans le matériau semi-conducteur, elles transfèrent leur énergie aux électrons. Les électrons quittent la bande de valence à destination de la bande de conduction en laissant un trou derrière eux. Les paires électron-trou créées dans le semi-conducteur se déplacent sous l'influence d'un champ électrique appliqué. Les électrons chargés négativement se déplacent vers l'anode, tandis que les trous chargés positivement se déplacent vers la cathode. Ce déplacement des électrons et des trous vers les électrodes opposées du détecteur génère un signal électrique qui, après amplification, sera mesuré. Ce courant est proportionnel à l'énergie de la particule ionisante incidente, ce qui permet de mesurer l'énergie du rayonnement. Pour rendre les semi-conducteurs plus efficaces à la détection des neutrons, des études sont menées en introduisant des matériaux permettant de convertir les neutrons incidents en particules électriquement détectables [41], ou bien utiliser des semi-conducteurs qui incorporent des isotopes sensibles aux neutrons thermiques comme le LiInSe_2 [42].

I.3. L'imagerie et la spectrométrie neutronique

Pour caractériser les colis de déchets pour les opérations d'assainissement et démantèlement des sites nucléaires, il est intéressant de s'orienter vers des mesures neutroniques non destructives plus précises que le simple comptage neutronique et permettant à la fois de localiser les sources, d'identifier les radionucléides en présence en reconstruisant le spectre en énergie de neutrons émis par la source et enfin de calculer la dose reçue par les intervenants. Pour cela, il est nécessaire d'avoir des spectro-imageurs neutroniques industrialisés, similaires aux spectro-imageurs gamma. En effet, cela complète l'imagerie gamma en palliant ses limites telles que la présence de blindage en plomb ou la présence d'émetteurs gamma de haute intensité tels que le ^{60}Co et le ^{137}Cs . Plusieurs laboratoires dans le monde développent actuellement des prototypes pour atteindre cet objectif. Il existe plusieurs méthodes pour réaliser l'imagerie neutronique notamment l'imagerie par diffusion élastique, par encodage spatial et par encodage temporel. D'autre part, les imageurs qui utilisent la méthode par diffusion élastique peuvent également fournir directement le spectre en énergie des neutrons par méthode de temps de vol entre deux plans du détecteur. Il existe également une méthode indirecte pour réaliser la spectrométrie neutronique tels que la méthode de déconvolution en utilisant les sphères de Bonner, et les détecteurs par noyau de recul de type scintillateurs, diamants et gaz (tel que l'hélium-3). Dans ce paragraphe, nous allons nous concentrer tout d'abord sur la méthode de spectro-imagerie par diffusion élastique, en donnant des exemples de prototype en cours de développement, puis nous parlerons des imageurs neutroniques qui utilisent la méthode d'encodage spatial. Finalement, nous présenterons les différents spectromètres neutroniques par déconvolution du spectre notamment avec les sphères de Bonner, les scintillateurs plastiques et les diamants.

I.3.1. La spectro-imagerie neutronique par diffusion élastique

I.3.1.1. Présentation de la méthode de spectro-imagerie neutronique par diffusion élastique

La technique repose sur la diffusion élastique d'un neutron incident sur deux détecteurs dans deux plans différents, comme le montre la Figure I-8 [43].

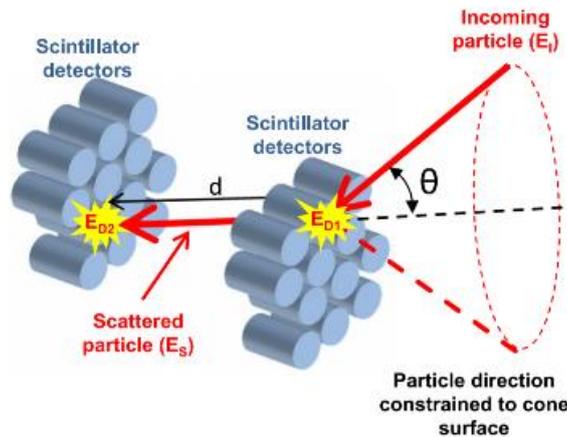


Figure I-8 Principe de l'imagerie neutronique par diffusion élastique [43].

L'énergie du neutron incident est calculée à partir de l'équation (I-12), qui est la somme de l'énergie déposée dans le premier plan E_{D1} en générant un proton de recul, et l'énergie du neutron diffusé E_S . L'énergie cinétique E_S du neutron de masse m , entre les deux détecteurs, est obtenue, suivant l'équation (I-13) en mesurant le temps de vol τ entre les deux interactions dans les deux plans séparés par une distance d . Le calcul de E_I pour chaque évènement permet de reconstruire le spectre en énergie de neutrons incidents. La direction d'un neutron incident est déterminée en appliquant la loi de conservation de l'énergie et de la quantité de mouvement, cela permet de relier l'énergie E_I du neutron incident et l'énergie du neutron diffusé E_S à l'angle de diffusion initial θ_n suivant l'équation (I-14) [43].

$$E_I = E_{D1} + E_S \quad (I-12)$$

$$E_S = \frac{1}{2} m \left(\frac{d}{\tau} \right)^2 \quad (I-13)$$

$$\theta_n = \sin^{-1} \sqrt{E_S / E_I} \quad (I-14)$$

Pour chaque évènement correspondant à une interaction avec un neutron, à partir de la direction du neutron diffusé et l'angle de diffusion θ associé, un cône de diffusion est construit. L'intersection de plusieurs cônes permet en le projetant sur un plan de déterminer la position de la source.

I.3.1.2. Exemple de spectro-imageurs neutroniques par diffusion élastique

Depuis 2005, plusieurs équipes dans le monde ont réalisé des imageurs neutroniques par diffusion élastique. Ces imageurs sont initialement formés de deux plans de scintillateurs organiques liquides. La discrimination neutron/gamma est réalisée en utilisant la méthode de mesure du temps de vol (*Time of Flight – TOF*) entre un scintillateur du premier plan et un autre situé en arrière-plan. La mesure en temps de vol a permis aussi de réduire le bruit de fond en ne sélectionnant que les évènements induits par un neutron dont l'énergie correspond à un spectre de source de fission plutôt qu'à un rayonnement cosmique. Le premier prototype a été développé en 2005 par une équipe au *Brookhaven National Laboratory* [44,45]. Le système est formé de deux plans de quatre scintillateurs liquides couplés à des photomultiplicateurs comme le montre la Figure I-9. L'angle de diffusion θ_n du neutron est calculé à partir des équations indiquées dans la section I.3.1.1. L'énergie du neutron diffusé est calculée à partir de la mesure du temps de vol entre les deux détecteurs. Pour estimer l'énergie de proton de recul induite dans le premier détecteur, un étalonnage empirique est appliqué pour trouver la relation entre l'énergie du proton de recul et l'énergie des électrons ionisés par ce proton. La Figure I-10 montre les résultats d'imagerie obtenue pour une source ^{252}Cf déplacée selon l'axe des abscisses. Ces images montrent que le système est sensible à la direction de la source. La distance, le temps de mesure et l'émission neutronique ne sont pas précisés.

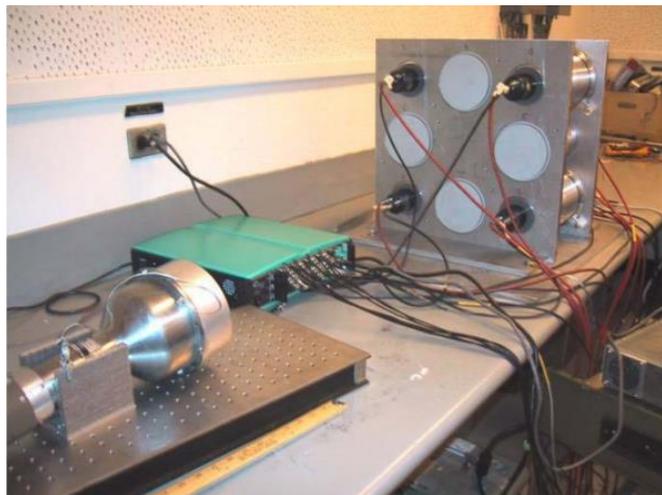


Figure I-9 Prototype d'imageur neutronique par diffusion élastique formé de deux plans de scintillateurs liquides [45].

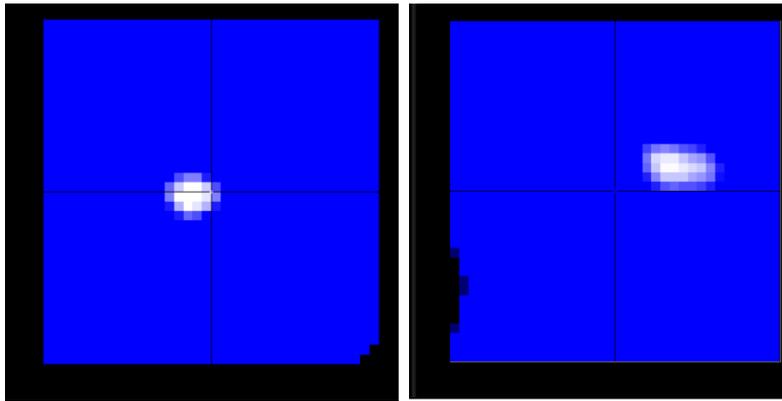


Figure I-10 À gauche : image neutronique d'une source ^{252}Cf placée à $(x=-12, z=36$ et $\phi-\theta=18^\circ)$. À droite : image neutronique d'une source ^{252}Cf placée à $(x=20, z=36$ et $\phi-\theta=29^\circ)$ [45].

De 2007 à 2011, plusieurs prototypes ont été réalisés par le *Sandia National Laboratory* [46–48], en utilisant deux plans de scintillateurs liquides. Ils ont montré que la sensibilité de détection augmente en optimisant la distance entre les deux plans et en augmentant le nombre de scintillateurs liquides dans chaque plan.

En 2012, l'Université du New Hampshire [49] a développé un système d'imagerie à trois plans présenté sur la Figure I-11. Il est formé de trois scintillateurs différents : scintillateur plastique (D1), stilbène (D2), et germanate de bismuth (BGO) (D3). L'imagerie neutronique est réalisée en mesurant le temps de vol (TOF) entre les deux plans D1 et D2. Le signal du stilbène dans D2 peut être utilisé pour discriminer les neutrons des rayonnements gamma. Le plan D3 est utilisé pour la détection des rayonnements gamma. La Figure I-12 montre les résultats de l'imagerie obtenue en utilisant d'une part, une source ^{252}Cf placée à deux positions différentes et d'autre part en utilisant deux sources ^{252}Cf séparées de 2 m et placées à 2 m du détecteur. Le temps de mesure et l'émission neutronique ne sont pas indiqués. La Figure I-13 montre le spectre en énergie du ^{252}Cf mesuré par la méthode de temps de vol entre D1 et D2.



Figure I-11 L'instrument NSPECT. Le plan D1 est à gauche [49].

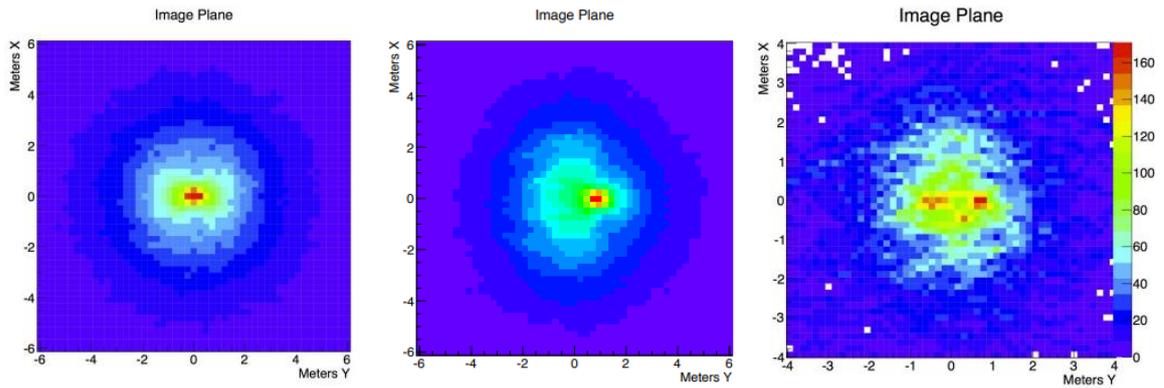


Figure I-12 À gauche : image neutronique d'une source ^{252}Cf placée à 2 m dans l'axe. Au milieu : image d'une source ^{252}Cf placée à 2 m dans l'axe et excentrée de 1 m. À droite : image de deux sources ^{252}Cf séparées de 2 m et placée à 2 m dans l'axe [49].

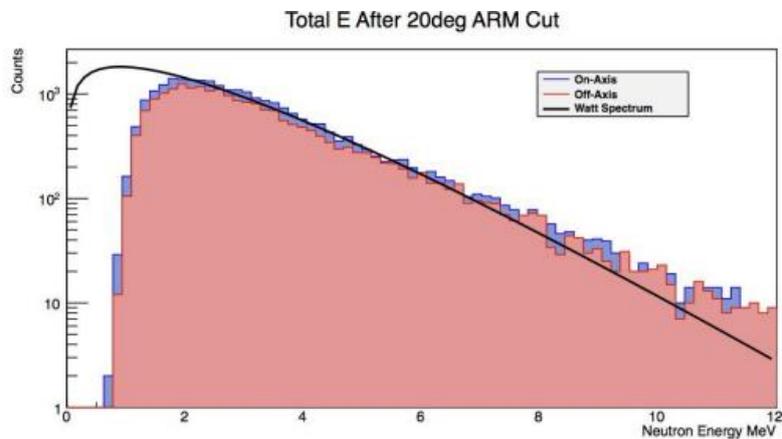


Figure I-13 Mesure du spectre en énergie d'une source ^{252}Cf placée à deux positions différentes [49].

De 2014 à 2016, le *Sandia National Laboratory* a réalisé un imageur mobile de neutrons (MINER) compact (90 cm de hauteur, 40 cm de largeur, 40 kg) [50]. Cet imageur est optimisé pour fournir une imagerie omnidirectionnelle (4π). Le système est composé de seize scintillateurs organiques liquides de type EJ-309 agencés dans plusieurs plans comme le montre la Figure I-14. Des mesures d'imagerie et de spectrométrie pour les deux sources ^{252}Cf et ^{60}Co sont montrées sur la Figure I-15. La Figure I-16 montre les spectres en énergie de neutrons incidents calculés en utilisant la méthode de diffusion élastique, pour quatre sources de deux types différents (fission spontanée : ^{252}Cf et le plutonium métallique, réaction (α, n) : AmBe et l'oxyde de plutonium). Les résultats de spectrométrie montrent l'efficacité du système pour discriminer les différentes sources, notamment la forme oxyde du plutonium.



Figure I-14 À gauche : photographie du système de détection MINER. À droite : photographie de l'intérieur du système de détection MINER [50].

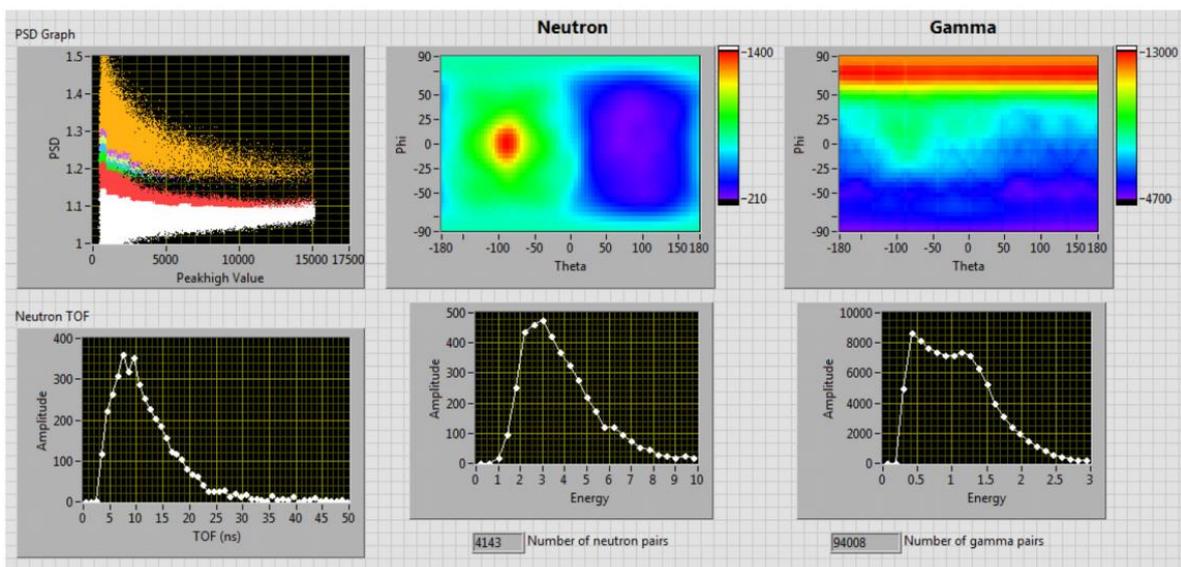


Figure I-15 Affichage fourni par le programme LabVIEW à la fin d'une mesure effectuée avec une source ^{252}Cf placée à $\theta = 90^\circ$ et $\phi = 0^\circ$ et une source gamma de ^{60}Co placée à $\theta = 90^\circ$ directement au-dessus de l'imageur [50].

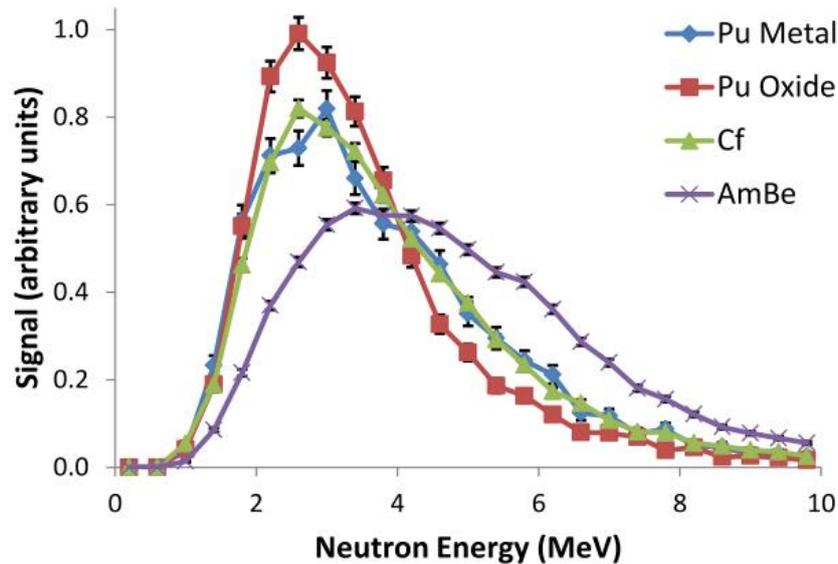


Figure I-16 Les spectres en énergie mesurés des quatre sources : plutonium métallique, oxyde de plutonium, ^{252}Cf et AmBe.

Les systèmes d'imagerie neutronique basés sur la reconstruction cinématique de la double diffusion offrent une bonne discrimination du signal par rapport au bruit de fond et une bonne capacité spectrale. Cependant, ces systèmes souffrent d'une faible sensibilité en raison des contraintes géométriques. Pour cela, des études sont menées afin d'utiliser une caméra neutron formée d'un seul bloc de scintillateur plastique dont chaque face est reliée à un photomultiplicateur.

En 2018, l'équipe du *Sandia National Laboratory* en partenariat avec l'Université de Caroline du Nord [51], a dimensionné par simulation Monte Carlo un modèle d'imager neutronique par diffusion élastique compact ($20\text{ cm} \times 20\text{ cm} \times 20\text{ cm}$) en utilisant 20×20 colonnes de scintillateurs plastiques. Egalement en 2018, *Sandia National Laboratory* en partenariat avec les Universités de Caroline du Nord et d'Oregon [52], a démontré par une modélisation Monte Carlo avec GEANT4 la faisabilité de ce concept de caméra à diffusion de neutrons en un seul volume « SVSC » (*Single-Volume neutron Scatter Camera*), comme le présente la Figure I-17. Le système simulé est formé d'un cube de scintillateur plastique de type EJ-232Q et de dimension 10 cm^3 (ces dimensions optimisent la double diffusion du neutron dans le scintillateur). Chacune des six faces du scintillateur est reliée à un photomultiplicateur de type MCP-PMT (*MicroChannel Plate PhotoMultiplier Tubes*). La méthode de « reconstruction directe » est employée dans ce travail. Dans cette méthode, les photons optiques sont détectés aux bords du volume actif, et les interactions neutroniques sont reconstruites en se basant sur les données de position et de temps des photons détectés par les photomultiplicateurs. Ils ont montré théoriquement les avantages d'utiliser un SVSC qui sont principalement la haute efficacité de détection, pour un espacement minimal des interactions de 2 cm le nombre d'événements potentiellement détectables est légèrement supérieur d'un ordre de grandeur dans le SVSC par rapport à un détecteur à deux plans, et la dimension relativement compacte. Cependant, ces études ont montré que la performance de reconstruction se dégrade à cause de trois facteurs principaux : la distance courte (moins de 1,5 cm) entre les deux premières interactions du neutron, la résolution temporelle et spatiale du photomultiplicateur, ainsi que l'atténuation optique. La Figure I-17 (au milieu) présente une image neutronique montrant un bon accord avec la vraie localisation de la source simulée représentée par la croix noire. La Figure I-17 (à droite) présente les résultats de la spectrométrie neutroniques obtenue, le spectre reconstruit (rouge) montre un excès d'événements

par rapport au vrai spectre, surtout à haute énergie. Selon les auteurs, pour les événements correctement reconstruits situés au centre du spectre, la valeur des énergies (E_n) est sous-estimée en raison de l'absence de la prise en compte de la correction de l'atténuation optique des photons dans le scintillateur. En plus, il existe un nombre important d'événements mal reconstruits présentant une valeur élevée d' E_n . 20 % des événements reconstruits dépassent l'énergie 20 MeV.

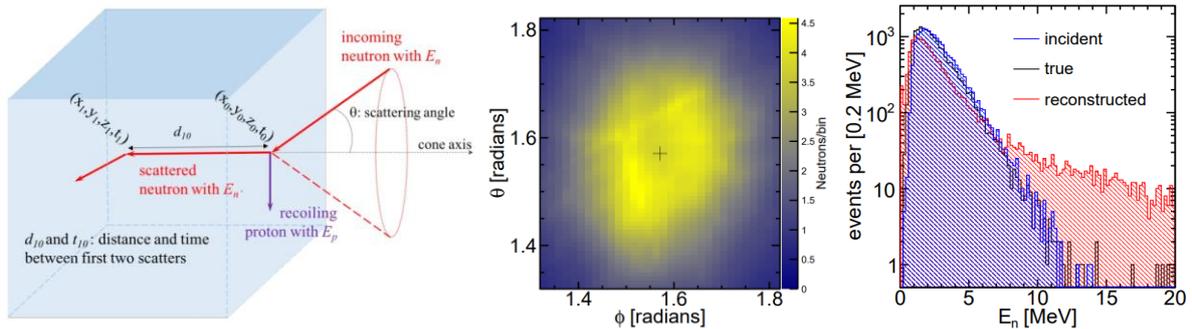


Figure I-17 À gauche : schéma montrant le principe d'interaction d'un événement neutronique dans le SVSC. Au milieu : image neutronique de la source ^{252}Cf , la croix noire représente la localisation de la source simulée. À droite : spectre en énergie du ^{252}Cf obtenu par les événements reconstruits (rouge) comparé à celui obtenu en utilisant les vrais paramètres de position et de temps des deux premières diffusions élastiques de protons (noir) et le spectre en énergie du neutron incidents (bleu) [52].

Une deuxième étude de simulation été menée en 2019 par l'entreprise Ultralytics LLC en collaboration avec plusieurs laboratoires aux États-Unis, en utilisant un scintillateur plastique dopé au bore, de forme cubique et de dimensions 13 cm^3 [53]. Chacune de ses six faces est reliée à 6 MCP (*Multi Channel Plate*) photomultiplicateurs, comme le présente la Figure I-18 (à gauche). Chaque MCP-PMT possède 64 canaux optiques, ce qui donne 256 canaux par face et 1536 canaux au total sur les 6 côtés du scintillateur. Les résultats de simulation montrent que la numérisation des impulsions obtenues par les 1536 canaux entourant le scintillateur devrait permettre la détermination spatio-temporelle des diffusions neutron-proton individuelles dans le volume du détecteur jusqu'à $\sim 100\text{ ps}$ et $\sim 5\text{ mm}$. La Figure I-18 (à droite) présente les résultats de localisation d'une source neutronique simulée. La différence d'angle entre le vrai vecteur directionnel et celui reconstruit est $(-5,7^\circ, 7,4^\circ)$.

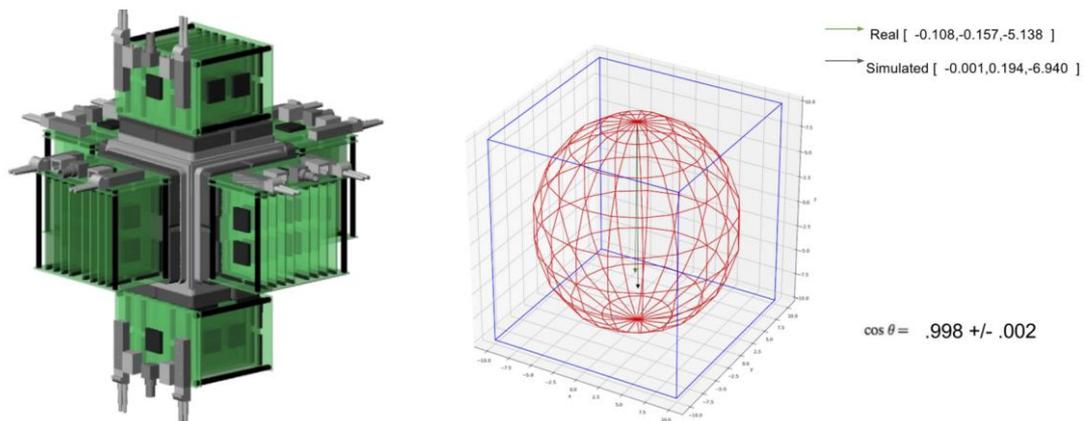


Figure I-18 À gauche : Schéma montrant le cube de scintillateur plastique entouré sur les 6 côtés par des MCP-PMT et l'électronique de numérisation. À droite : Le vecteur directionnel moyen simulé (noir) est comparé au vecteur directionnel moyen ajusté (vert) [53].

En 2019, l'Institute of High Energy Physics en Chine, a proposé une caméra neutronique compacte avec un champ de vue omnidirectionnel (4π) [54]. Le prototype est composé de seize colonnes de scintillateurs plastiques de type EJ299-33 dont chacune des deux extrémités est reliée à un MPPC (Multi-Pixel Photon Counter), comme l'illustre la Figure I-19. Chaque scintillateur a des dimensions de 6 mm × 6 mm × 50 mm et ils sont espacés de 10 mm l'un de l'autre. La Figure I-19 montre les mesures d'imagerie d'une source AmBe ($5,9 \times 10^5$ neutrons/s) placée à 1,1 m du détecteur. La source AmBe a été placée à quatre positions angulaires différentes ($\theta=180^\circ$, $\phi=90^\circ$), ($\theta=90^\circ$, $\phi=90^\circ$), ($\theta=270^\circ$, $\phi=60^\circ$), et ($\theta=180^\circ$, $\phi=135^\circ$), ce qui correspond au graphique d'imagerie de A, B, C, et D, respectivement. La mesure d'imagerie neutronique dure 100 minutes pour chaque position de la source AmBe. La résolution spatiale est inférieure à 6,5 mm. Il n'existe pas des données ou des résultats de mesures de spectrométrie neutronique.

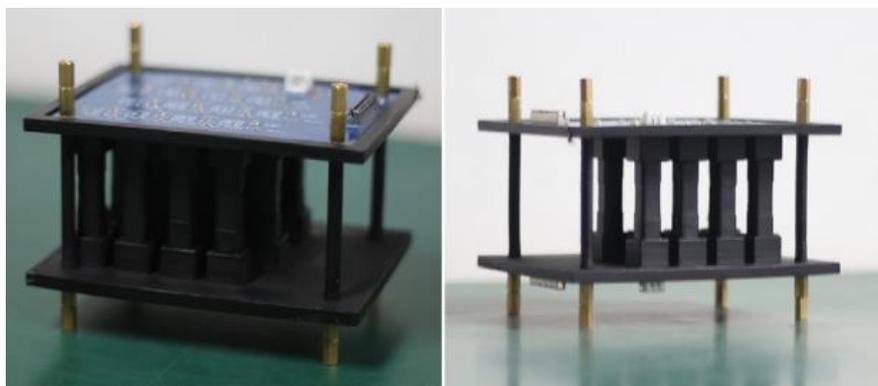


Figure I-19 Photographie de la caméra neutron [54].

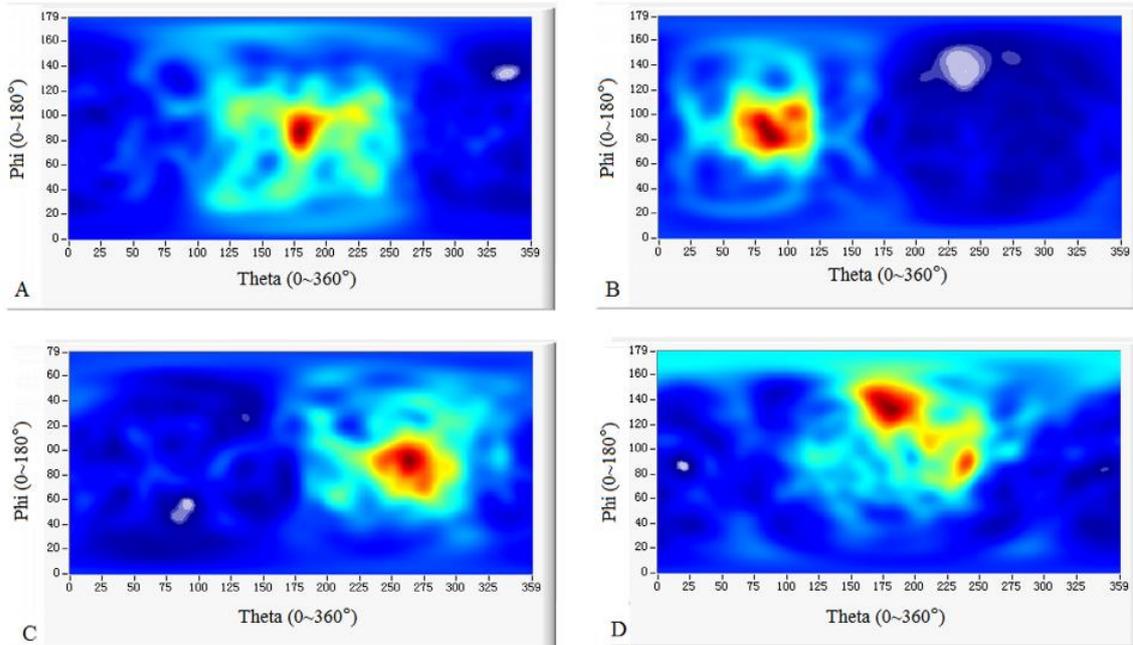


Figure I-20 Quatre images neutroniques d'une source AmBe ($5,9 \times 10^5$ neutrons/s) placée à 1,1 m et à quatre positions angulaires différentes.

En 2020, un imageur gamma/neutron compact ($5,74 \times 5,74 \times 7,11$ cm³), nommé H2DPI (*Handheld Dual Particle Imager*), était conçu par l'Université du Michigan en collaboration avec le *Los Alamos National Laboratory*, et l'Université d'Illinois [55]. Cet imageur, présenté sur la Figure I-21, est formé de huit scintillateurs organiques de type « stilbène » sous forme de barres dont les extrémités sont reliées optiquement à deux matrices de photomultiplicateurs en silicium (SiPM). Les résultats de mesure de ce système ont montré la capacité à réaliser des mesures de spectrométrie neutronique. Un spectre en énergie des neutrons superposé à un spectre de Watt normalisé, est affiché sur la Figure I-22. Il montre un bon accord au-delà de 3 MeV. L'insensibilité aux faibles énergies est due à un seuil en énergie appliqué qui est de 100 keV_{ee} (keV en équivalent électrons) ou bien 740 keV en équivalent protons.

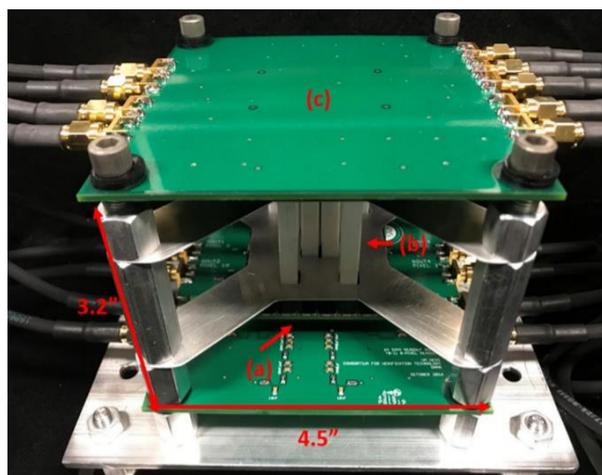


Figure I-21 Prototype de l'imageur gamma/neutron compact formé par (a) deux matrices de SiPM SensL C-Series (b) huit scintillateurs de stilbène, et (c) 2 planches de circuit imprimés [55].

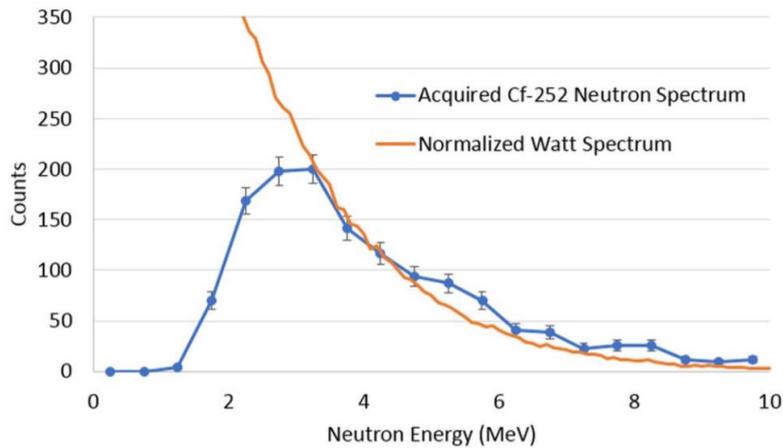


Figure I-22 Spectre en énergie de neutrons émis obtenu à partir d'une mesure de 30 minutes d'une source ^{252}Cf d'émission neutronique $1,2 \times 10^7$ neutrons/s à une distance de 58,4 cm [55].

Le système a donné aussi une image neutronique (Figure I-23) pour une source de fission ^{252}Cf en appliquant l'algorithme LM-MLEM (*List Mode – Maximum Likelihood Expectation Maximization*). Ce code itératif permet de converger vers la distribution angulaire la plus probable. Une résolution angulaire de $9,65 \pm 0,94^\circ$ est obtenue dans la direction azimutale et $22,59 \pm 5,81^\circ$ dans la direction de l'altitude. La Figure I-24 (à gauche) présente une image gamma de la source « boule BeRP » (plutonium de qualité militaire) de masse 4,5 kg et émettant $8,4 \times 10^5$ neutrons/s. Une autre image gamma, présentée sur la Figure I-24 (à droite), a été obtenue en 45 minutes d'une source de neptunium placée à 55 cm. Le faible débit d'émission neutronique de la sphère de neptunium (8700 neutrons/s) n'a pas permis de produire une image neutronique en 45 minutes. La Figure I-25 montre la capacité de l'imageur à localiser deux sources séparées de 50 cm et placées à 57 cm du détecteur. La raison pour laquelle l'image de la source de dioxyde de plutonium n'est pas aussi intense que l'image de la boule de plutonium de qualité militaire est que le dioxyde de plutonium produit environ la moitié du nombre de neutrons incidents sur le détecteur.

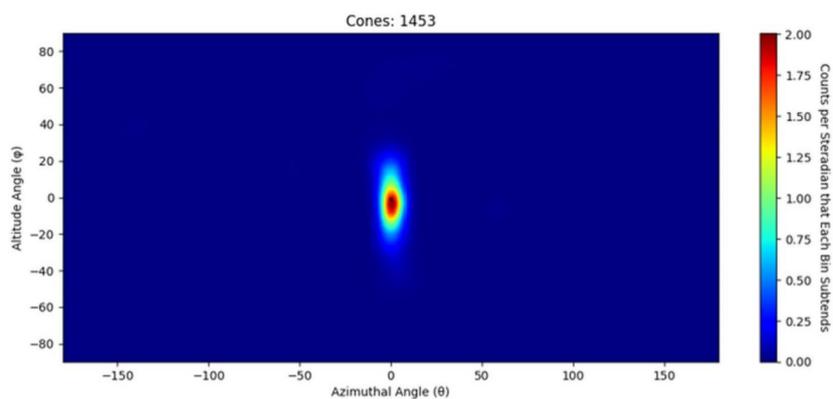


Figure I-23 Image neutron pour une source de ^{252}Cf de $1,2 \times 10^7$ neutrons/s mesurée en 30 minutes (1453 cônes avec 27 itérations de LM-MLEM appliquées à l'image) à 58,4 cm du détecteur.

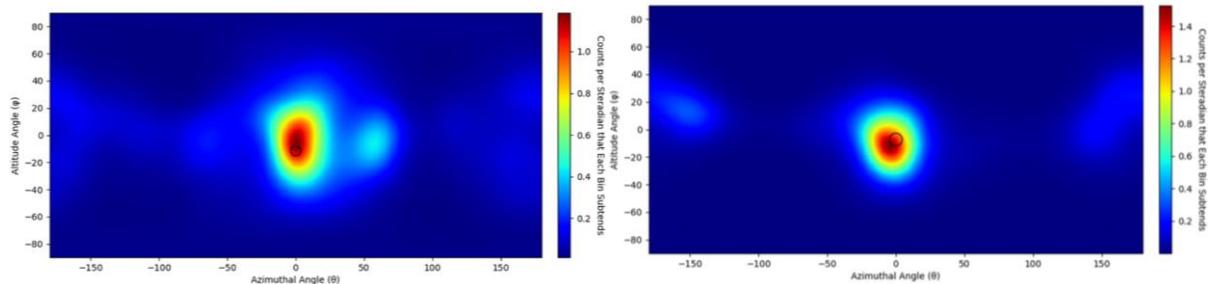


Figure I-24 À gauche : Image gamma de la boule BeRP (12352 cônes avec 41 itérations de LM-MLEM). À droite : Image gamma d'une sphère de neptunium mesurée en 45 minutes (7441 cônes avec 180 itérations de LM-MLEM) à une distance de 55 cm du centre du détecteur.

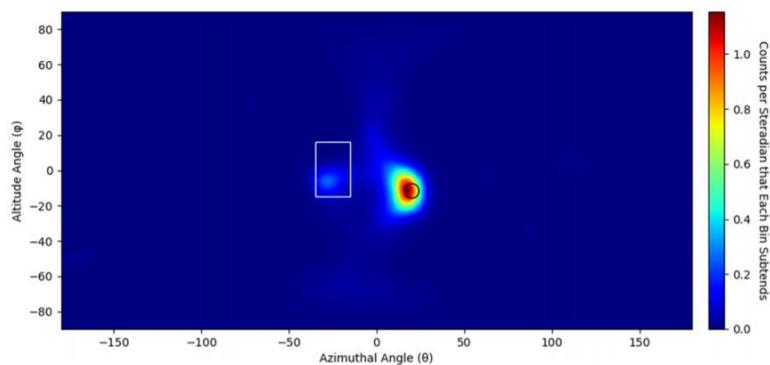


Figure I-25 Image neutronique d'une source de plutonium de qualité militaire (cercle noir) dont l'émission neutronique est $8,4 \times 10^5$ neutrons/s et une source de dioxyde de plutonium (rectangle blanc), mesurée en 15,3 heures. Les sources sont placées à une distance de 57 cm du détecteur et séparées par 50 cm (1283 cônes avec 31 itérations de LM-MLEM).

En 2021, l'Université de Floride a mis en application l'idée d'utiliser une caméra à diffusion de neutrons en un seul volume. Le prototype expérimental est présenté sur la Figure I-26. Il est formé d'un cube de scintillateur plastique EJ-230 et six PMT. La résolution angulaire pour l'image neutronique mesurée est $20 \pm 3^\circ$ (dans la direction azimutale) et $23 \pm 10^\circ$ (dans la direction de l'altitude) [56]. La Figure I-27 montre une image neutronique d'une source ^{252}Cf ($1,665 \times 10^6$ neutrons/s) mesurée (point rouge) en utilisant un vecteur d'estimation de la direction initiale de la source (point noir).

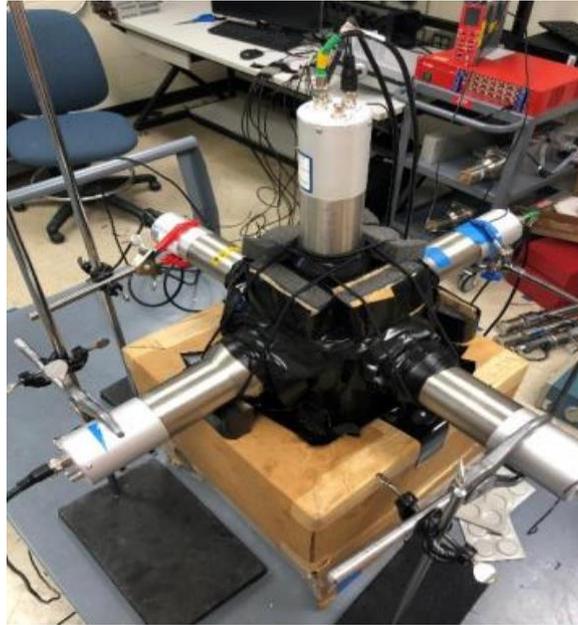


Figure I-26 Une photographie de la caméra neutron tridimensionnelle [56].

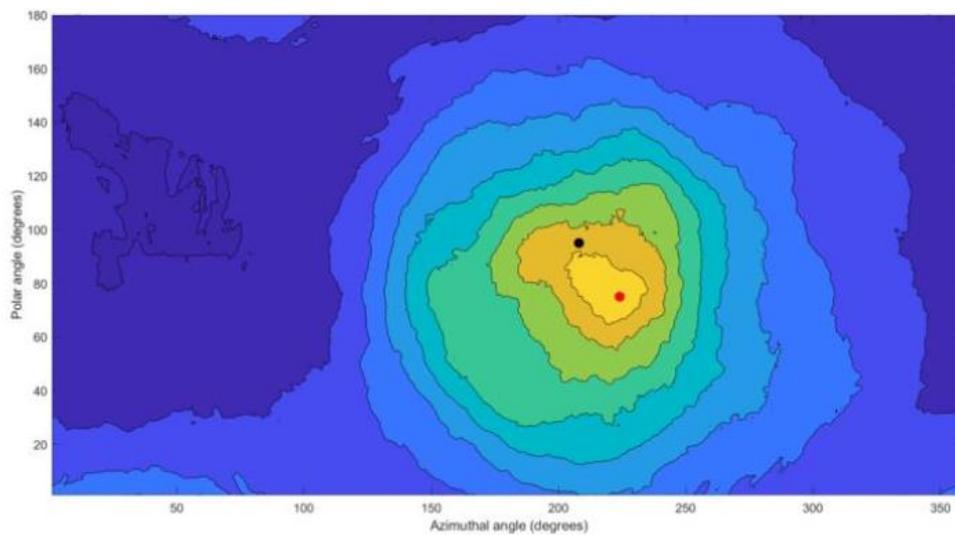


Figure I-27 Image neutronique d'une source ponctuelle (point rouge) située à $(224^\circ, 75^\circ)$ en utilisant un vecteur d'estimation initial (point noir) qui pointe vers $(208^\circ, 95^\circ)$. La durée de la mesure ainsi que la distance entre la source et le détecteur ne sont pas précisées [56].

Centre de recherche	Année	Durée d'acquisition	Champ de vue	Résolution spatiale	Encombrement hors-tout	Masse	Références associées
Brookhaven National Laboratory Ion Focus Technology	2005	–	–	–	$4,8 \times 10^3 \text{ cm}^3$ ($40 \times 40 \times 30 \text{ cm}^3$)	–	[44,45]
Université du New Hampshire Michigan Aerospace Corporation	2012	–	153°	10°	$8,6 \times 10^3$ ($120 \times 90 \times 80 \text{ cm}^3$)	–	[49]
Sandia National Laboratories	2016	–	360°	10°	$1,4 \times 10^5 \text{ cm}^3$ ($40 \times 40 \times 90 \text{ cm}^3$)	40 kg	[50]
Institute of High Energy Physics University of Chinese Academy of Sciences	2019	100 min	4π	15°	–	–	[54]
Université du Michigan Los Alamos National Laboratory Université d'Illinois	2020	30 min	–	$9,65 \pm 0,94^\circ$ (azimut) $22,59 \pm 5,81^\circ$ (altitude)	$234,26 \text{ cm}^3$ ($5,74 \times 5,74 \times 7,11 \text{ cm}^3$)	–	[55]

Tableau I-2 Récapitulatif des imageurs neutroniques par diffusion élastique développés en 2005 et de 2012 jusqu'au 2020. Les imageurs neutroniques modélisés par simulation MC ne sont pas inclus.

I.3.2. L'imagerie neutronique par encodage spatial

I.3.2.1. Encodage spatial à travers un sténopé

La technique de l'imagerie à travers un sténopé repose sur le passage de la lumière à travers un petit trou dans un écran opaque afin de reproduire une image inversée sur un plan de détection (Figure I-28). Le système CARTOGAM fabriqué au CEA est un exemple de caméra gamma à sténopé. Cette technique offre une bonne résolution angulaire mais une efficacité géométrique réduite.

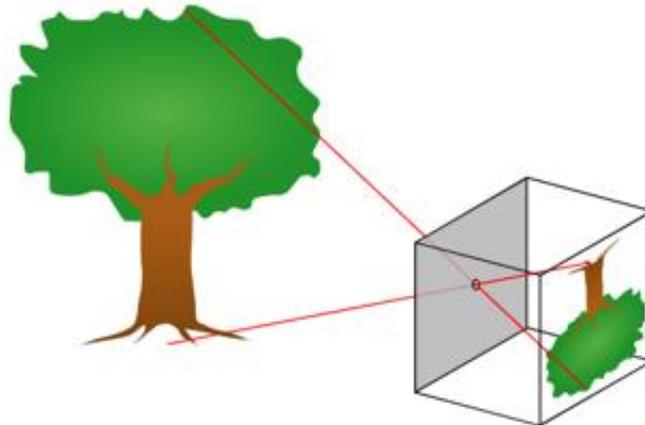


Figure I-28 Illustration du concept du sténopé [57].

Pour les caméras neutroniques, une première expérience a été menée en 1981 pour montrer la possibilité de mesurer la variation de l'intensité des neutrons émis par un accélérateur linéaire d'électrons irradiant une cible de tungstène du NBS (*National Bureau of Standards*) [58]. La caméra est basée sur un compteur proportionnel sensible à la position, formé d'un mélange d' ^3He , de xénon et de CO_2 . Le sténopé est défini par une plaque de cadmium percée d'un trou de 2 mm, comme l'illustre la Figure I-29. La Figure I-30 montre les résultats de l'image d'une source neutronique, à basse énergie, et placée à 4 m du détecteur. La résolution du détecteur était de 1,6 mm.

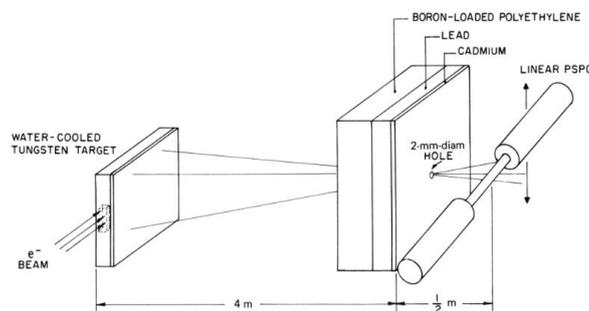


Figure I-29 Schéma de la configuration expérimentale de l'imagerie neutronique en utilisant un compteur proportionnel linéaire [58].

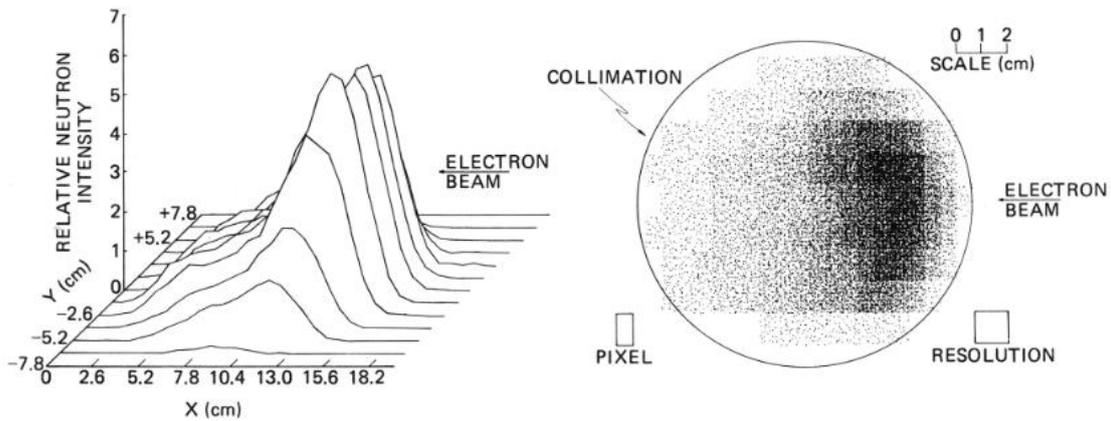


Figure I-30 Images neutroniques d'un accélérateur linéaire d'électrons irradiant une cible de tungstène en émettant des neutrons à basse énergie [58].

Une deuxième expérience a été menée par la même équipe en utilisant le même type de compteur proportionnel mais à deux dimensions, comme le montre la Figure I-31, pour mesurer la position des neutrons d'énergie de 14 MeV, émis par un accélérateur de deutérium irradiant une cible de titane. La résolution du détecteur était de 2,1 mm. Les résultats de la mesure sont montrés sur la Figure I-32. La localisation du cône de neutrons du système de particules associées est facilement identifiable.

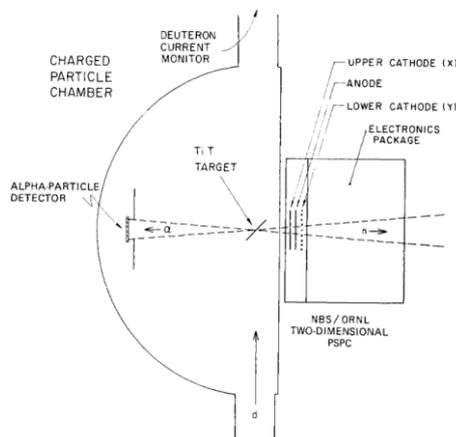


Figure I-31 Schéma de la configuration expérimentale de l'imagerie neutronique en utilisant un compteur proportionnel à deux dimensions [58].

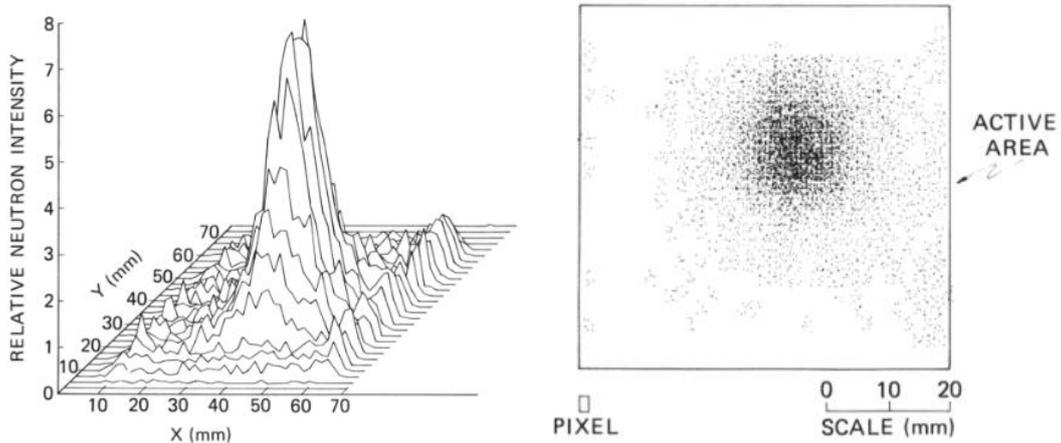


Figure I-32 Des images neutroniques d'un accélérateur linéaire de deutérium irradiant une cible de titane en émettent des neutrons de 14 MeV.

I.3.2.2. Encodage spatial à travers une ouverture pénombrale

Cette technique a le même principe que la caméra à sténopé. La principale différence est que la dimension du trou doit être plus grande que celle de la source, pour que le centre de l'image produite soit uniformément éclairé et entouré d'une pénombre partiellement éclairée, comme le montre la Figure I-33. Toutes les informations spatiales sur la source sont encodées dans cette pénombre. De manière générale, l'avantage d'utiliser une seule grande ouverture circulaire est qu'elle permet de déconvoluer plus précisément l'image produite. Cette technique est principalement appliquée dans les expériences de fusion par confinement inertiel. La Figure I-34 montre la première image neutronique, obtenue sur l'installation NOVA, pour un débit d'émission neutronique de 10^{13} neutrons par impulsion, dont la résolution spatiale est de $80 \mu\text{m}$ [59].

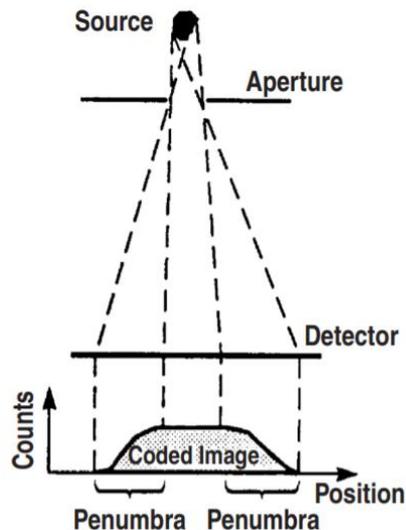


Figure I-33 Géométrie d'un imageur à ouverture pénombrale.

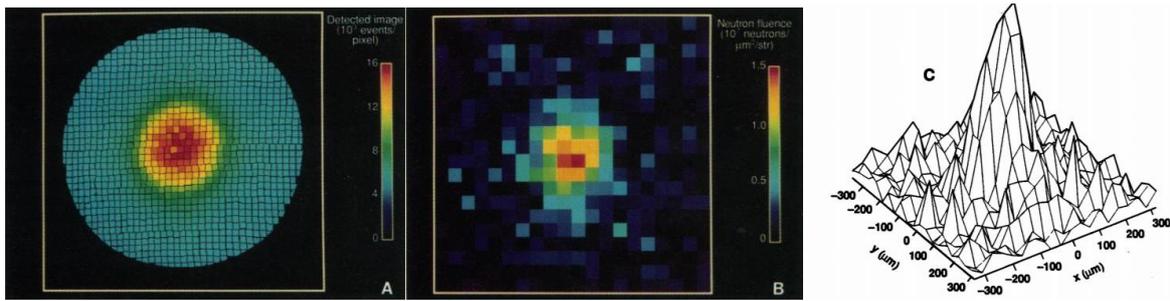


Figure I-34 Image codée de la cible (a), image déconvoluée de la cible (b, c) [59].

I.3.2.3. Technique de l'imagerie à masque codé

L'imagerie à masque codé est une forme alternative et populaire de collimation physique. Cette approche était à l'origine proposée pour les mesures astrophysiques [60]. Etant basée sur un masque codé ouvert autour de 50% avec un grand nombre de trous se trouvant dans un plan parallèle avec le détecteur, la technique offre une efficacité plus élevée par rapport aux techniques de collimation mentionnées précédemment. Par définition, un masque codé est un collimateur multi-trous placé entre la source et le détecteur. Ce système avec un réseau d'ouvertures, est constitué d'éléments opaques (appelés pleins ou encore *septa*) et d'éléments transparents (appelés trous). Il a pour fonction de sélectionner la direction des photons ou des neutrons émis avant qu'ils n'interagissent dans le détecteur. Un objet source placé dans le champ de vue projette une ombre du masque codé sur le plan de détection formé par le détecteur comme l'illustre la Figure I-35.

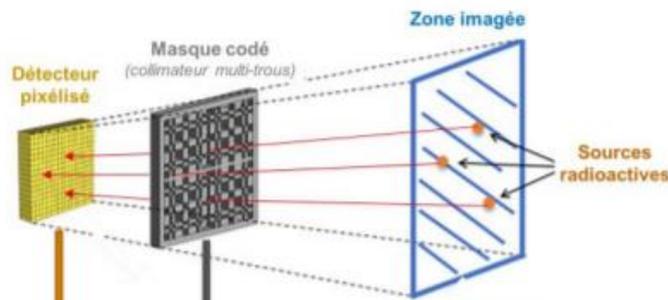


Figure I-35 Illustration de la localisation de sources radioactives par la technique d'imagerie à masque codé [61].

Dans le cas d'une unique source ponctuelle, l'ombre projetée reproduit le motif du masque codé. Alors que pour une combinaison de plusieurs sources radioactives présentes dans le champ de vue, l'ombre projetée est composée de la somme des ombres projetées par chacun des objets sources. En connaissant la structure du masque codé et la forme de l'ombre projetée sur le plan de détection, la direction de la source radioactive dans le champ de vue peut être calculée. La construction de l'image peut être effectuée par un algorithme analytique tel que le produit de déconvolution. Cette méthode consiste à multiplier la réponse brute du détecteur par une matrice représentative du motif du masque codé.

Les masques codés de type MURA (*Modified Uniformly Redundant Array*) et plus spécifiquement de motifs ASM (*Antisymmetric Square MURA*) sont les masques les plus utilisés pour l'imagerie gamma et neutron. Ils sont des masques dont leur motif est corrélé à lui-même, contrairement aux motifs

aléatoires, ce qui garantit l'absence de bruit de décodage. En plus, en utilisant l'antisymétrie des motifs ASM par une rotation de 90°, le bruit de fond peut être éliminé en appliquant la procédure masque/anti-masque. Cette procédure permet de combiner deux mesures une en position masque et l'autre en position anti-masque (rotation de 90°) ce qui permet de réduire le bruit de fond et d'optimiser le rapport signal sur comptage (RSC). La Figure I 36 montre une photographie de trois masque codé de type ASM et présentant trois rangs différents 7, 11 et 13 et formé de tungstène. Il convient de noter que la résolution angulaire augmente avec le rang du masque codé, mais la sensibilité diminue. Des études en imagerie gamma par encodage spatial à travers un masque codé, ont démontré que la résolution angulaire et le bruit de décodage sont liés à l'algorithme de reconstruction utilisé [62]. Par ailleurs, il a été constaté que l'énergie des neutrons et des photons gamma détectés n'affecte pas la résolution angulaire [63,64].

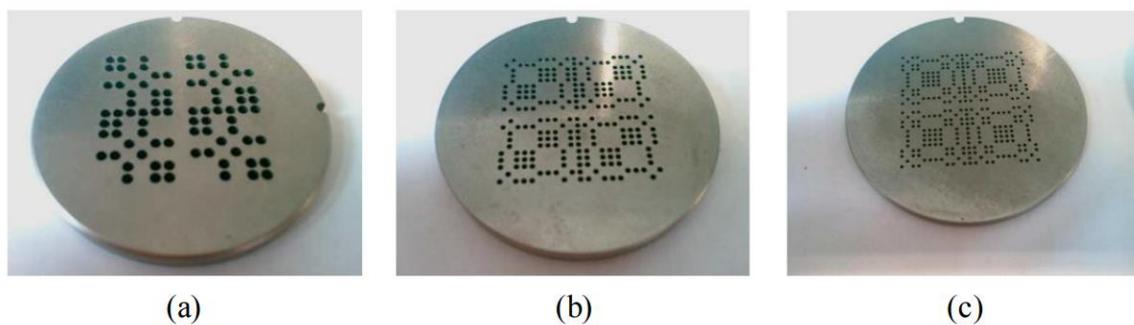


Figure I-36 Photographie des masques codés MURA. (a) Rang 7, (b) rang 11, (c) rang 13 [65].

I.3.2.4. Exemple d'imageurs neutroniques par encodage spatial avec un masque codé

En 1995, le premier prototype d'imageur par encodage spatial couplé à un masque codé était proposé par le *Brookhaven Laboratory*. Il est constitué d'une matrice de compteurs proportionnels à ^3He sensible à une dimension spatiale avec un masque codé URA (*Uniformly Redundant Array*) 5×7. La Figure I-37 montre le schéma présentant le prototype d'imageur par encodage spatial et le résultat de mesure obtenu en quelques minutes d'une source ^{252}Cf d'émission neutronique 10^6 neutrons/s [66]. Les comptages ont été représentés en niveau de gris, et le seuil noir a été fixé à 50 % de la valeur maximale. Le pixel le plus lumineux de chaque image indique la position de la source.

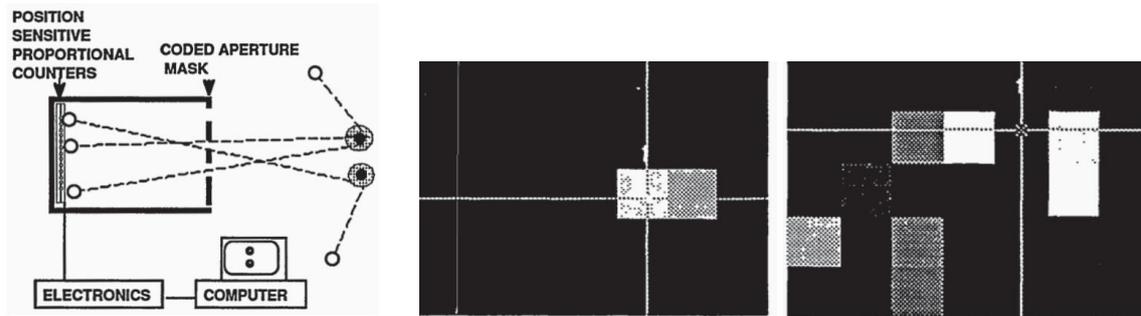


Figure I-37 À gauche : Schéma présentant le prototype d'imageur par encodage spatial. Au milieu : image neutronique d'une source ^{252}Cf placée dans un cylindre de polyéthylène. À droite : image neutronique d'une source ^{252}Cf placée entre deux blocs de polyéthylène, séparés par une distance de 40 cm [66].

En 2009, l'Oak Ridge National Laboratory a développé un imageur par encodage spatial [67]. Il est constitué d'une matrice de 5x5 modules de détection et il est couplé à un masque codé en polyéthylène de type MURA (*Modified Uniformly Redundant Array*) de rang 19. Chaque module, est pixellisé suivant une matrice (10x10) de cristaux de scintillateurs plastiques EJ200 de dimensions 1,07 cmx1,07 cmx5 cm, et couplé optiquement à quatre photomultiplicateurs de type PMT. Le guide de lumière présenté sur la Figure I-38 est utilisé entre la matrice de scintillateurs et les PMT afin de calculer la position de l'interaction dans le détecteur. La Figure I-39 montre deux configurations d'une image gamma-neutron des crayons combustibles de plutonium (MOX) qui émettent $3,33 \times 10^5$ neutrons/s et qui sont placés à 6 m du détecteur.

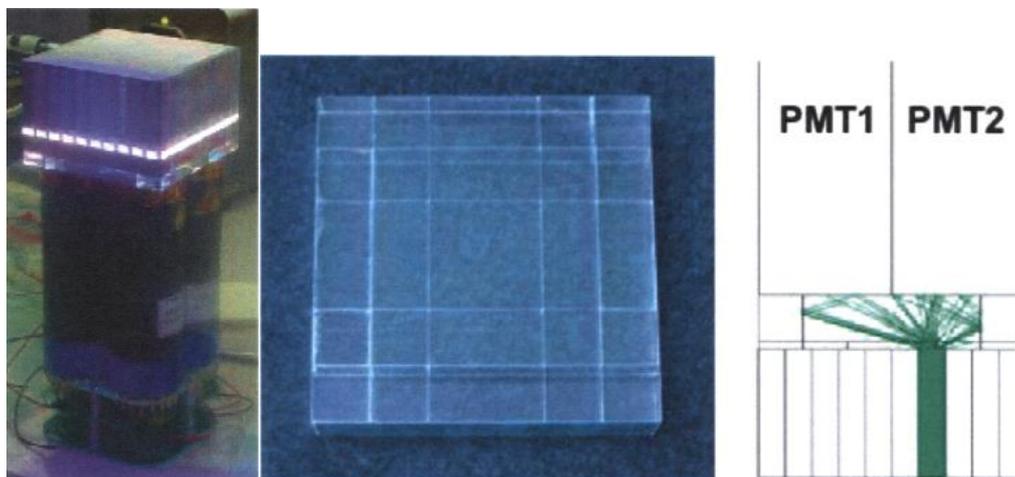


Figure I-38 À gauche : vue latérale d'un scintillateur en plastique pixellisé. Au milieu : le guide de lumière. À droite : schéma montrant comment le guide de lumière segmenté manipule la répartition de la lumière [68].

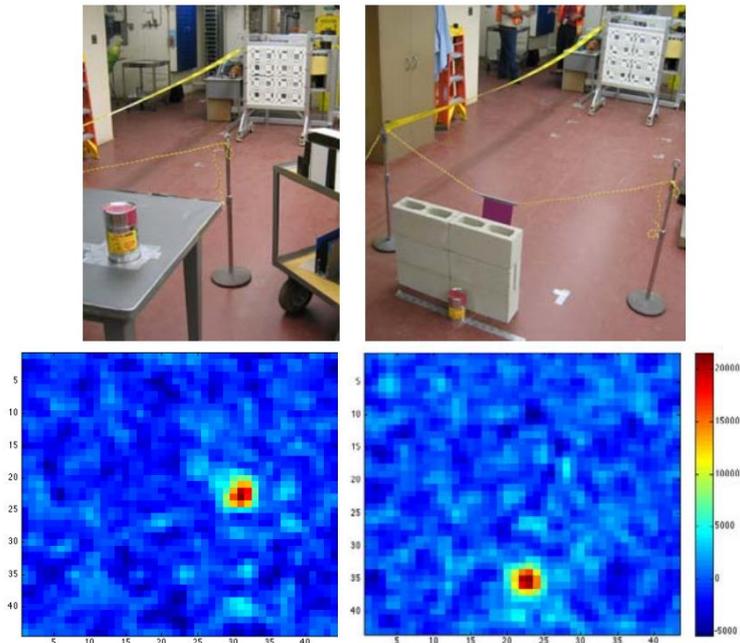


Figure I-39 À gauche : Image neutron-gamma mesurée en 40 min pour une source de plutonium émettant $3,33 \times 10^5$ neutrons/s placée sur la table. À droite : image gamma-neutron mesurée en 90 min pour la même source plutonium placée derrière le mur par terre [67].

En 2010, l'*Oak Ridge National Laboratory* a remplacé les scintillateurs plastiques non discriminants par des scintillateurs liquides capables de discriminer les neutrons des rayonnements gamma. Le système, présenté dans la Figure I-40 (à gauche), est formé d'une matrice de 16 modules de détection (4×4) [68]. Chaque module est pixellisé à l'aide d'une matrice de 10×10 scintillateurs liquides de dimensions 1 cm×1 cm×5 cm chacun, et relié à quatre PMT. Le masque codé utilisé est de type MURA et de rang 19. La Figure I-40 (à droite) montre une image neutronique pour une source de plutonium de masse 96 g et qui émet 10^5 neutrons/s. Le temps de mesure est 1 h pour chacune des deux configurations, masque et anti-masque.

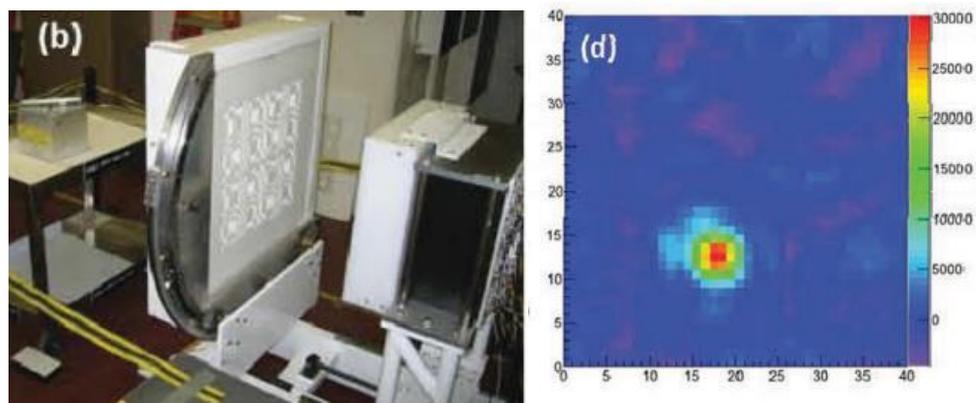


Figure I-40 À gauche : photographie de la configuration de mesure. À droite : image neutronique mesurée en 1 h pour 96 g de plutonium d'émission neutronique 10^5 neutrons/s (la distance de mesure n'est pas indiquée) [69].

En 2013, *Radiation Monitoring Device (RMD)* a développé une caméra gamma et neutron en se basant sur le système RadCam [70,71]. Ce dernier est une caméra gamma développée par RMD pour suivre la contamination radiologique et la distribution des rayonnements. Il est formé d'un volume de scintillateur fin de type CsI:Na et de dimension 5,08 cm x 5,08 cm. Afin d'ajouter les capacités

d'imagerie neutronique, le scintillateur CsI:Na est remplacé par le scintillateur CLYC ($\text{Cs}_2\text{LiYCl}_6:\text{Ce}$) qui offre une excellente discrimination entre les rayonnements gamma, les neutrons, et les neutrons thermiques. Le système CLYC RadCam-2 est présenté sur la Figure I-41 : il est constitué d'un masque codé MURA de rang 19 en tungstène et en cadmium et d'un scintillateur inorganique de type CLYC couplé à un photomultiplicateur sensible à la position (PSPMT). La Figure I-42 montre les résultats expérimentaux de la localisation des deux sources ^{252}Cf et AmBe placées à environ 30 cm du détecteur. La durée d'acquisition est de deux jours. Pour la source AmBe, on obtient des artefacts au niveau des images neutroniques qui peuvent être expliqués par le plus faible pouvoir d'atténuation du masque devant des neutrons plus énergétiques (~ 4 MeV pour l'AmBe contre ~ 2 MeV pour la ^{252}Cf).

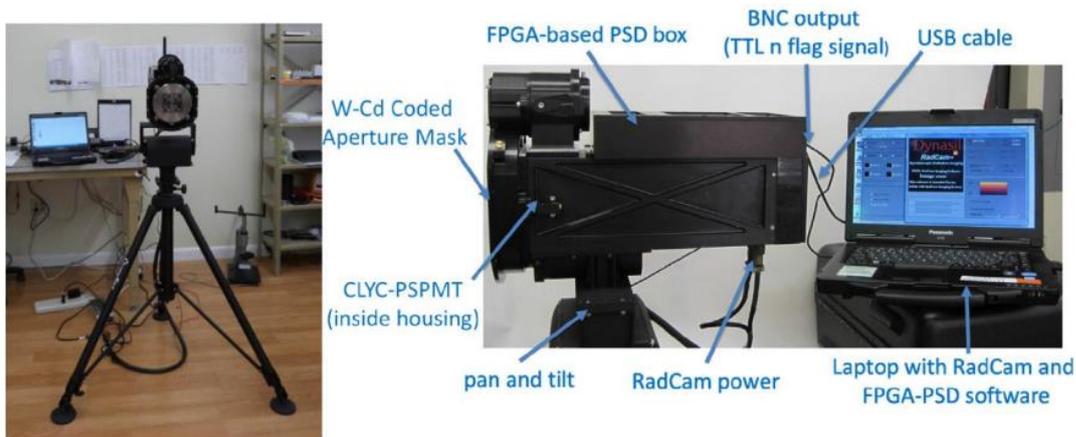


Figure I-41 Le système CLYC-Radcam-2 [71].

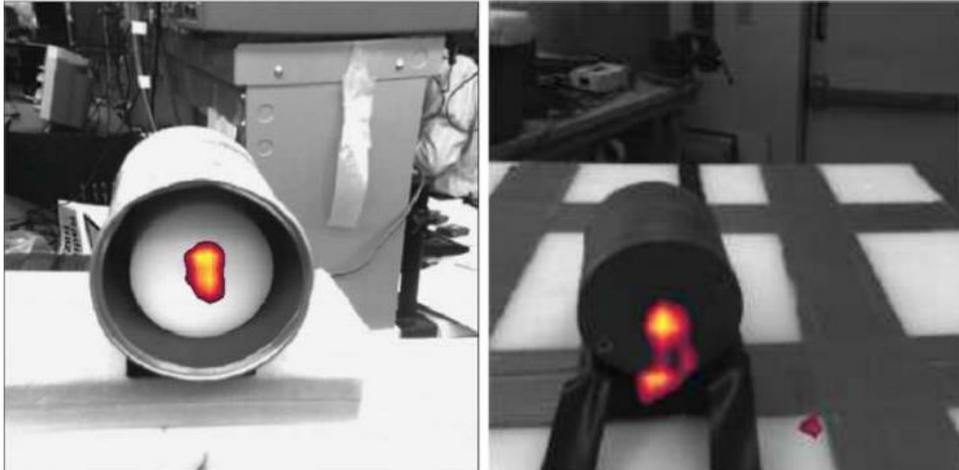


Figure I-42 À gauche : image neutronique d'une source ^{252}Cf ($1,7 \times 10^5$ neutrons/s) placée à 30 cm. À droite : image neutronique d'une source AmBe ($6,8 \times 10^5$ neutrons/s). Les sources ont été placées à environ 30 cm du détecteur et la durée d'acquisition est de deux jours [71].

De 2012 jusqu'au 2017, plusieurs équipes dans le monde ont développé des imageurs neutrons à base de scintillateurs organiques liquides associés à un masque codé. Parmi ces imageurs :

- Le système développé en 2012 par l'*U.S. Naval Research Laboratory* [72], dont l'encombrement est (150 cm× 100 cm× 100 cm), le champ de vue est 53° et la résolution spatiale est 8°. Un deuxième est développé en 2017, plus volumineux que le système précédent (606 cm×243 cm×259 cm), mais il possède une haute sensibilité de mesure, une source ^{252}Cf étant mesurée en 0,3 s [73].
- Le système développé par le *Brookhaven National Laboratory* en 2014, dont l'encombrement est (40 cm×40 cm× 50 cm). Cet imageur est relativement compact par rapport aux autres imageurs cités ci-dessous. Le champ de vue, la résolution spatiale, et la sensibilité de mesure ne sont pas indiqués [74].
- Le système développé par le *Sandia National Laboratory* en 2015, dont l'encombrement est (55 cm×55 cm×100 cm). Le champ de vue et la résolution spatiale sont respectivement de 116° et de 2° à 7°. Une source ^{252}Cf est mesurée en 141 h [75].

En 2021, l'*Institute of High Energy Physics*, a développé un prototype d'imageur neutrons et gamma [76]. Le prototype est formé d'une matrice formée de 13×13 pixels de scintillateur plastique de type EJ-276 et de dimensions 10 mm×10 mm×50 mm. Chaque pixel du scintillateur est entouré par BaSo₄ pour réfléchir la lumière émise, ainsi que pour éviter le « *cross talk* » entre les différents pixels. Le scintillateur est couplé optiquement à une matrice pixellisée 13× 13 de SiPM (ou MPPC, *Multi-Pixel Photon Counter*) dont l'aire de chaque pixel est 6 mm×6 mm. Les images de la matrice de scintillateur et de SiPM utilisées sont montrées dans la Figure I-43. Le masque codé utilisé est en polyéthylène et d'épaisseur 5 cm. Il est de type MURA et de rang 11. La distance entre le masque et le détecteur scintillateur est 100 mm. La Figure I-44 montre, en utilisant l'algorithme de reconstruction MLEM (*Maximum Likelihood Expectation Maximization*), une image gamma pour une source ^{137}Cs (370 MBq) (à gauche) et une image neutronique pour une source AmBe ($5,9\times 10^5$ neutrons/s) (à droite). Les distances et les durées de mesure ne sont pas indiquées. En imagerie neutronique et en utilisant la source AmBe, les résolutions verticale et horizontale sont respectivement de 3,3° et 4,4°.

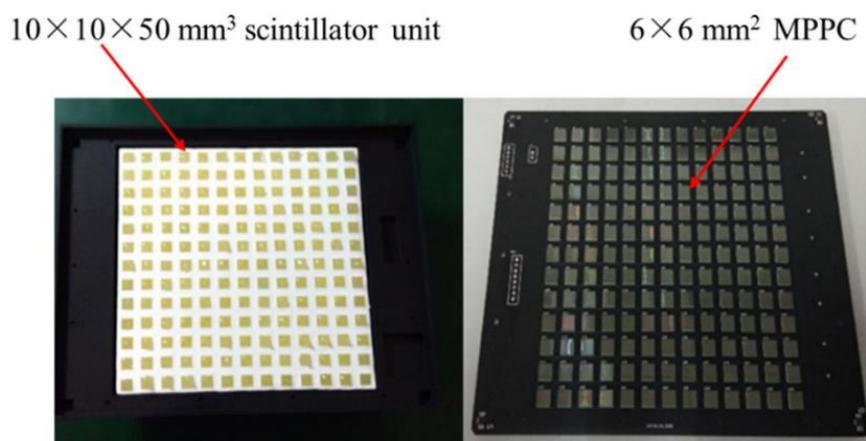


Figure I-43 À gauche : matrice pixellisée de scintillateurs plastiques de type EJ-276. À droite : 13×13 MPPC dont l'aire de chaque pixel est 6×6 mm².

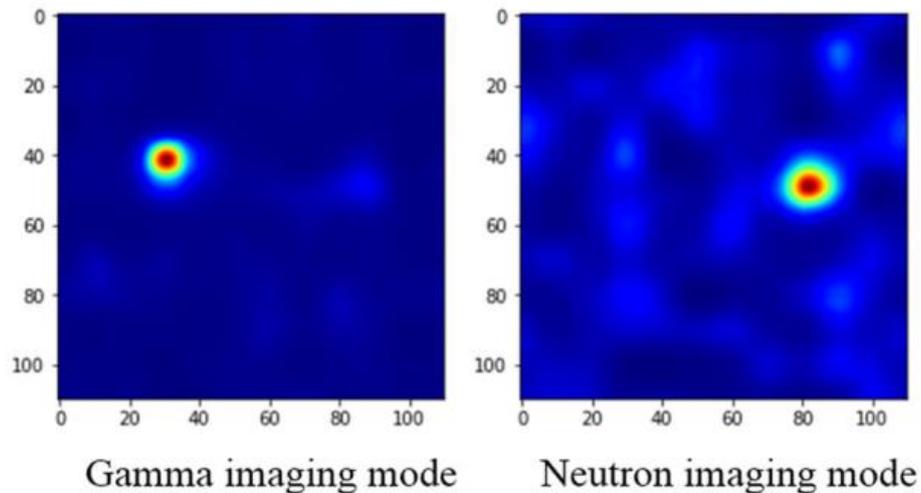


Figure I-44 À gauche : image gamma pour une source ^{137}Cs (370 MBq). À droite : image neutrons pour une source d'AmBe ($5,9 \times 10^5$ neutrons/s).

En 2021, le *Jeju National University* a développé un imageur de neutrons et de gamma formé d'un scintillateur en stilbène pixellisé en 12×12 pixels dont les dimensions de chaque pixel est $4 \times 4 \times 20 \text{ mm}^3$ [77]. Le scintillateur est relié optiquement à une matrice pixellisée de 12×12 SiPM et de même surface que la matrice de scintillateur comme le montre la Figure I-45. Le détecteur est associé à un masque codé en tungstène de type MURA et de rang 21. Le champ de vue de l'imageur est 50° et la résolution angulaire est $6,8^\circ$ (comme le montre la Figure I-45 (à droite)). La Figure I-45 (à gauche) montre une image neutronique de la source ^{252}Cf ($3,5 \times 10^5$ neutrons/s) et placée à 75 cm du détecteur, en présence de la source gamma ^{137}Cs . Cette image est mesurée en 4 min et le nombre d'événements de neutrons enregistrés est 2000.

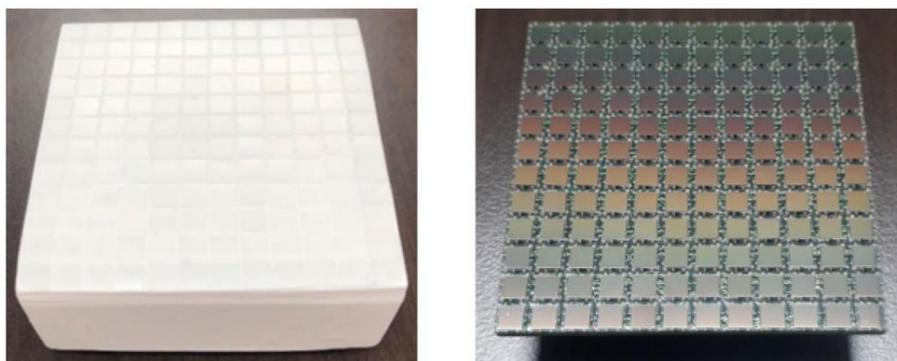


Figure I-45 À gauche : Le scintillateur en stilbène pixellisé en 12×12 , les dimensions de chaque pixel sont ($4 \times 4 \times 20 \text{ mm}^3$). À droite : une matrice de SiPM avec la même surface et nombre de pixels [77].

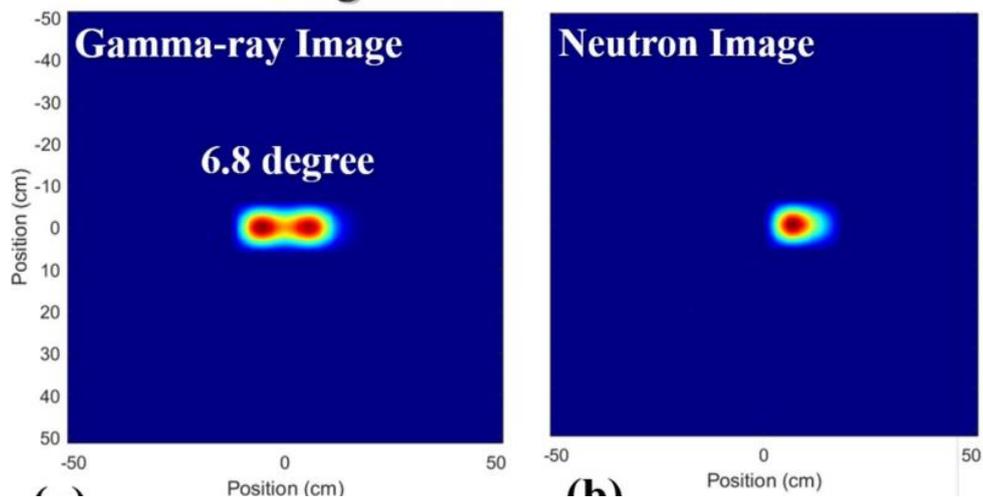


Figure I-46 À gauche : une image gamma pour tester la séparation angulaire entre les deux sources ^{137}Cs et ^{252}Cf séparées par un angle de $6,8^\circ$. À droite : une image neutronique, prise en présence de la source ^{137}Cs , pour la source ^{252}Cf qui émet $3,5 \times 10^5$ neutrons/s et placée à 75 cm du détecteur. Le temps de mesure pour reconstruire les événements provenant des neutrons est de 4 min [77].

En 2022, le Laboratoire Capteurs et Architectures Electroniques (LCAE, désormais LCIM) au CEA List a développé un imageur neutronique compact de dimensions extérieures 17 cm×14 cm×9 cm présenté sur la Figure I-47. L'imageur est formé d'un détecteur pixellisé suivant une matrice de 12×12 de scintillateurs organiques plastiques [78]. Chaque pixel mesure 3,6 mm ×3,6 mm×3,6 mm et est séparé des autres par une couche de Téflon (PTFE) d'une épaisseur de 0,6 mm. La matrice de scintillateurs est couplée optiquement à une matrice de SiPM ayant la même taille et le même nombre de pixels. Le détecteur est associé à un masque codé en polyéthylène de type MURA et de rang 7. La Figure I-48 montre à gauche une image gamma de la source ^{133}Ba (19 MBq) placée à 50 cm et mesurée en 4 minutes et à droite une image neutronique de la source ^{252}Cf émettant $6,5 \times 10^4$ neutrons/s placée à 50 cm et mesurée pendant ~7 h.



Figure I-47 Prototype expérimental de l'imageur neutronique [78].

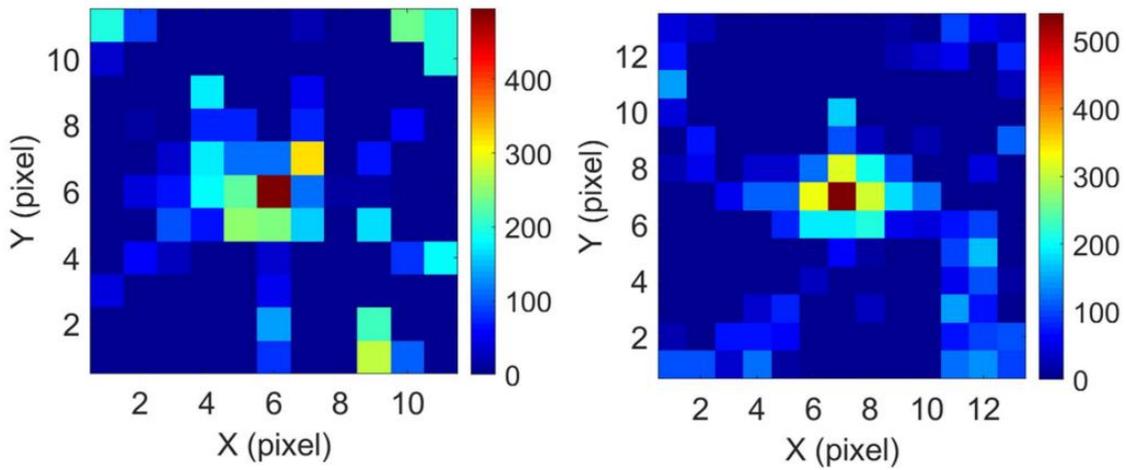


Figure I-48 À gauche : image gamma d'une source ^{133}Ba (19 MBq) placée à 50 cm et mesurée en 4 min. À droite : image neutronique d'une source ^{252}Cf ($6,5 \times 10^4$ neutrons/s) placée à 50 cm et mesurée en 440 min ($\sim 7,3$ h) [78].

Centre de recherche	Année	Durée d'acquisition	Champ de vue	Résolution spatiale	Encombrement hors-tout	Masse	Références associées
<i>Brookhaven National Laboratory</i>	1995	–	32°	8°	$8,0 \times 10^4 \text{ cm}^3$ ($40 \times 20 \times 100 \text{ cm}^3$)	–	[66]
<i>Oak Ridge National Laboratory</i>	2012	1 h (plutonium, 10^5 n/s)	29°	1,8°	$1,8 \times 10^6 \text{ cm}^3$ ($150 \times 120 \times 100 \text{ cm}^3$)	–	[69]
<i>Radiation Monitoring Device</i>	2013	91 h (^{252}Cf , $1,4 \times 10^5$ n/s)	18°	2,3° à 14°	$2,0 \times 10^4 \text{ cm}^3$ ($20 \times 20 \times 50 \text{ cm}^3$)	45 kg	[70,71]
<i>Institute of High Energy Physics</i>	2021	150 s (AmBe, $5,9 \times 10^5$ n/s)	40°	3,3° (verticale) 4,4° (horizontal)	$30 \times 30 \times 25 \text{ cm}^3$	15 kg	[76]
<i>Jeju National University</i>	2021	4 min (^{252}Cf , $3,5 \times 10^5$ n/s)	50°	6,8°	–	4,1 kg	[77]
CEA List	2022	7 h (^{252}Cf , $6,5 \times 10^4$ n/s)	68°	7°	$17 \times 14 \times 9 \text{ cm}^3$	800 g	[78]

Tableau I-3 Récapitulatif des performances des imageurs neutroniques par encodage spatial couvrant la période de 1995 à 2013, ainsi que les développements notables en 2021 et 2022.

I.3.3. La spectrométrie neutronique reposant sur la méthode de déconvolution des spectres

I.3.3.1. Les systèmes de spectrométrie par sphère de Bonner

En 1960, un premier dispositif de spectrométrie neutronique basé sur les sphères de Bonner était décrit par R. L. Bramblett, R. I. Ewing et T. W. Bonner [79]. Le système original est formé d'un cristal à scintillation (${}^6\text{LiI(Eu)}$), un détecteur de neutrons thermiques de forme cylindrique (4 mm de diamètre et 4 mm de hauteur). L'interaction des neutrons avec le scintillateur est basé sur la réaction principale ${}^6\text{Li}(n, \alpha){}^3\text{H}$ et la section efficace associée est $\sigma_{\text{thermique}} = 940$ barns. Ce détecteur est placé au centre de sphères modératrices, de différentes tailles, formées de polyéthylène (Figure I-49), pour thermaliser les neutrons incidents afin de pouvoir les détecter dans le scintillateur. Cela rend le système de mesure (cristal à scintillation + sphère modératrice) compatible avec la détection des neutrons rapides. L'utilisation de cinq sphères modératrices, de diamètres différents (6 à 30 cm), permet d'obtenir cinq détecteurs dont les efficacités sont différentes pour chaque énergie de neutron incident. Chaque détecteur est étalonné en mesurant le taux de comptage en fonction de l'énergie des neutrons incidents de 0,050 à 15,1 MeV, en utilisant des neutrons mono-énergétiques provenant des réactions de particules chargées (${}^7\text{Li}(p, n)\text{Be}^7$, ${}^3\text{H}(p, n)\text{He}^3$, ${}^2\text{H}(d, n)\text{He}^3$, et ${}^3\text{H}(d, n)\text{He}^4$). En complément, des neutrons thermiques provenant du réacteur *Rice U. Aerojet General Nucleonics AGN-211* [80] sont aussi mesurés afin de déterminer les courbes du taux de comptage dans la région d'énergie autour de 300 eV. La Figure I-49 (à droite) montre la fonction de réponse, qui décrit le taux de comptage en fonction de l'énergie des neutrons incidents pour chaque détecteur.

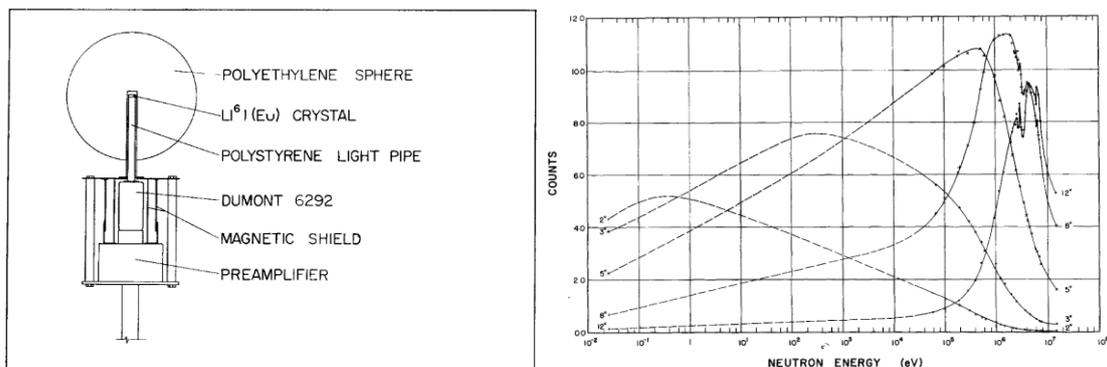


Figure I-49 À gauche : représentation schématique du compteur proportionnel. À droite : résultats de comptage en exposant chaque détecteur à des sources de neutrons mono-énergétiques.

La caractérisation des détecteurs de neutrons est généralement réalisée dans des environnements mixtes neutron/gamma. Pour cette raison, plusieurs études ont été menées dans les années suivantes, afin de remplacer le scintillateur ${}^6\text{LiI(Eu)}$ par un détecteur moins sensible aux rayonnements gamma, comme les compteurs proportionnels à tri-fluorure de bore (BF_3) [81]. Ce dernier est basé sur la réaction ${}^{10}\text{B}(n, \alpha){}^7\text{Li}$, qui se caractérise par une grande section efficace ($\sigma_{\text{thermique}} = 3800$ barns). Pour un taux d'exposition gamma de 0,12 Gy/h [82], la discrimination neutron/gamma est facilement réalisable dans les compteurs BF_3 en discriminant les impulsions de rayonnements gamma, qui sont considérablement plus petites que les impulsions des neutrons, résultant de la réaction ${}^{10}\text{B}(n, \alpha){}^7\text{Li}$.

Dans les années 70, un gaz plus sensible aux neutrons a commencé à être utilisé. Il s'agit de l'hélium-3 dont la réaction principale avec les neutrons est ${}^3\text{He}(n, p){}^3\text{H}$ avec une section efficace de 5330 barns. Plusieurs publications décrivent l'utilisation d'un compteur proportionnel à hélium-3 de type 0.5NH10 cylindrique (9 mm de diamètre, 10 mm de hauteur) et a une pression de 8 atm [83,84]. La sensibilité de ce système, qui dépend fortement de la géométrie du détecteur, est deux fois plus grande qu'un scintillateur de ${}^6\text{LiI}(\text{Eu})$, de dimensions 4 mm×4 mm [85]. En revanche, la basse amplification gazeuse du système, qui dépend de l'intensité du champ électrique qui règne à l'intérieur du compteur proportionnel, de la pression, des paramètres géométriques et du type de gaz de remplissage, rend difficile la discrimination du bruit. Dans les années 1980, plusieurs groupes ont étudié l'utilisation du compteur proportionnel à hélium-3 de type SP9. Ce compteur est sphérique et a une pression de gaz plus faible (2 atm), mais son diamètre est de 32 mm, ce qui donne une section efficace géométrique plus grande. Par ailleurs, un gaz lourd (krypton, pression à 1 atm) est ajouté au gaz de remplissage pour augmenter le pouvoir d'arrêt pour les particules chargées mises en jeu, ce qui permet de diminuer les effets de paroi. Cette technique de mesure permet d'obtenir une réponse en fluence cinq fois supérieure à celle du compteur proportionnel de type 0.5NH10. Plus de détails sur ces configurations peuvent être trouvés dans les références [86–88]. Dans la situation où une efficacité plus grande est souhaitée, comme la mesure du spectre neutronique des rayonnements cosmiques, les dimensions du détecteur ont été augmentées. Des compteurs proportionnels d' ${}^3\text{He}$ sphériques de diamètre 5,08 cm ont été utilisés pour ce type d'applications [89].

Dans les années 80, il a été vérifié par calcul Monte Carlo [90] la possibilité d'augmenter la réponse en fluence aux neutrons de hautes énergies en incorporant dans la sphère modératrice en polyéthylène des matériaux métalliques (ex. plomb, tungstène). Ce sont des matériaux qui convertissent les neutrons de hautes énergies (dizaines de MeV) en un certain nombre de neutrons secondaires de bien plus basses énergies par le biais de la réaction (n, xn') . Ces neutrons secondaires dont les énergies sont bien inférieures aux énergies des neutrons incidents, vont avoir de grandes chances d'interagir avec le détecteur central à l'énergie thermique après leur traversée du modérateur. A partir des années 90, plusieurs laboratoires internationaux [91–93] ont développé des systèmes de spectromètres neutron par sphère de Bonner étendue au domaine des hautes énergies, à savoir plusieurs GeV. En France, des travaux de thèse au sein de l'IRSN [94] ont visé à développer un système de sphère de Bonner modifié avec des coquilles métalliques. Par simulation Monte Carlo, ces travaux ont mené à la configuration et au dimensionnement d'un système de sphère de Bonner dont la matrice de réponse en fluence a été déterminée sur un large spectre en énergie, depuis les énergies thermiques jusqu'à plusieurs GeV.

D'autre part, dans le cas où le champ neutronique est caractérisé par un débit d'émission neutronique élevé, une structure temporelle pulsée, ou un bruit de fond gamma important, l'opération du détecteur basé sur une mesure active (acquisition des données au cours de la mesure) est affectée par l'effet de saturation et de temps mort. Les BSS (*Bonner Sphere Spectrometer*) passifs remplacent les BSS actifs dans ces environnements de rayonnements intenses. Ils sont souvent basés sur des paires de TLD (*ThermoLuminescent Dosimeter*) [95,96] ou des films d'activation en or par le biais de la réaction ${}^{197}\text{Au}(n, \gamma){}^{198}\text{Au}$ [97]. Pendant que les films d'activation en or sont moins sensibles aux rayonnements gamma que les TLD, mais ont par contre une faible sensibilité, principalement due à la longue demi-vie du produit d'activation, à savoir le ${}^{198}\text{Au}$ ($T_{1/2}=2,696$ jours). De longues expositions sont donc nécessaires pour augmenter l'activité induite. En outre, en considérant les mêmes conditions de mesure, l'incertitude des BSS basés sur les feuilles d'or, qui dépend de l'activité de la feuille d'or et de la quantité de "temps de comptage" disponible, est plus faible (2%) que les incertitudes des BSS basés sur le TLD (6%) [98]. En 2009, des études ont été menées afin de développer des BSS basés sur des feuilles de dysprosium, qui peuvent être considérées comme un substitut

avantageux aux feuilles d'or [99]. Les feuilles de dysprosium sont plus sensibles que les feuilles d'or, en raison de l'importante section efficace d'activation (2700 barns pour le ^{66}Dy contre 98,8 barns pour le ^{198}Au).

En France, l'IRSN (Institut de Radioprotection et de Sûreté Nucléaire) dispose de plusieurs systèmes de spectrométrie de type sphère de BONNER : « 0,5 NH », « passif », et « HERMEIS ». Chacun des dispositifs est formé d'un détecteur central spécifique, et chaque système mesure dans un domaine d'énergie et pour une application donnée :

- « 0,5 NH » : formé d'un compteur proportionnel à hélium-3 associé à 12 sphères en polyéthylène. Une coquille de cadmium est placée sur les sphères de petits diamètres (~5 cm de diamètre) pour fournir une information sur la composante thermique du spectre. Ce système est utilisé pour mesurer les distributions en énergie de la fluence neutronique aux postes de travail en milieu industriel et sur des installations médicales de radiothérapie. Le temps de mesure est d'environ une heure pour des débits d'équivalent de dose ambiante supérieurs à 100 $\mu\text{Sv/h}$ et de quelques heures pour $\sim 10 \mu\text{Sv/h}$ [100].
- Le « passif » : les détecteurs passifs utilisés sont des feuilles d'or. Il a été développé pour des mesures en champs complexes, mixtes neutrons/photons, de forts débits, tels qu'ils en existent à certains postes de travail de l'industrie nucléaire ou bien encore dans le domaine médical [97].
- « HERMEIS » : il est équipé d'un compteur gazeux à ^3He de très haute pression (10 atm) et de 10 sphères en polyéthylène, ainsi que 3 sphères comportant des coquilles de tungstène et de plomb pour les neutrons à haute énergie (>20 MeV). Il est adapté aux mesures de faible débit de fluence neutronique et l'une de ses principales applications concerne la détermination des spectres neutroniques induits par les rayons cosmiques [101].

L'IRSN dispose également d'un spectromètre neutron rotatif « ROSPEC », illustré sur la Figure I-50. Il est composé de six détecteurs, dont quatre sont des compteurs proportionnels aux protons de recul, et les deux autres sont des détecteurs sphériques à hélium-3 adaptés aux gammes d'énergie thermique et épithermique. Chacun de ces détecteurs est spécifiquement conçu pour couvrir une plage d'énergie particulière, ce qui permet au système de mesurer les neutrons sur une gamme étendue allant de l'épithermique à 5 MeV. La Figure I-51 représente les plages d'énergie auxquelles les différents compteurs du ROSPEC sont sensibles. En utilisant le ROSPEC, il est possible de mesurer des spectres en énergie de neutrons comprenant plusieurs dizaines d'intervalles d'énergie. Durant les travaux de thèse réalisés dans [102], deux méthodes de reconstruction des spectres ont été testées et comparées : le code de déconvolution pré-installé sur l'instrument dénommé SPEC4 et le code MAXED. En plus, plusieurs types de spectres de départ ont été testés dans MAXED : spectre plat, spectre donné par SPEC4, et un spectre plat modifié (en ajoutant des informations structurelles telles que spectre croissant ou décroissant, présence de résonance). La Figure I-52 et la Figure I-53 présentent les résultats de reconstruction du spectre en énergie du ^{252}Cf en utilisant les quatre compteurs hydrogénés (SP2-1, SP2-4, SP2-10 et SP6), et en utilisant les deux codes SPEC4 et MAXED. Ces travaux ont montré que MAXED est plus performant que SPEC4, si la matrice de réponse est optimisée et que les informations *a priori* (spectre de départ) dans le processus de déconvolution sont adaptées par l'utilisateur. D'autre part, ce dispositif permet de réaliser des mesures dans des champs neutroniques où les débits d'équivalent de dose ambiante sont de quelques dizaines à quelques centaines de $\mu\text{Sv/h}$.



Figure I-50 Vue d'ensemble du système ROSPEC [102].

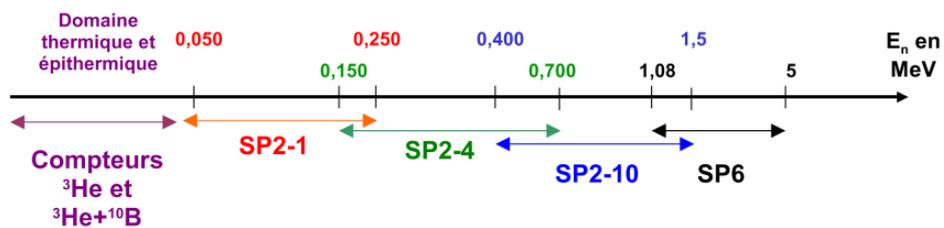


Figure I-51 Domaines d'énergie auxquels sont sensibles les différents compteurs du ROSPEC [102].

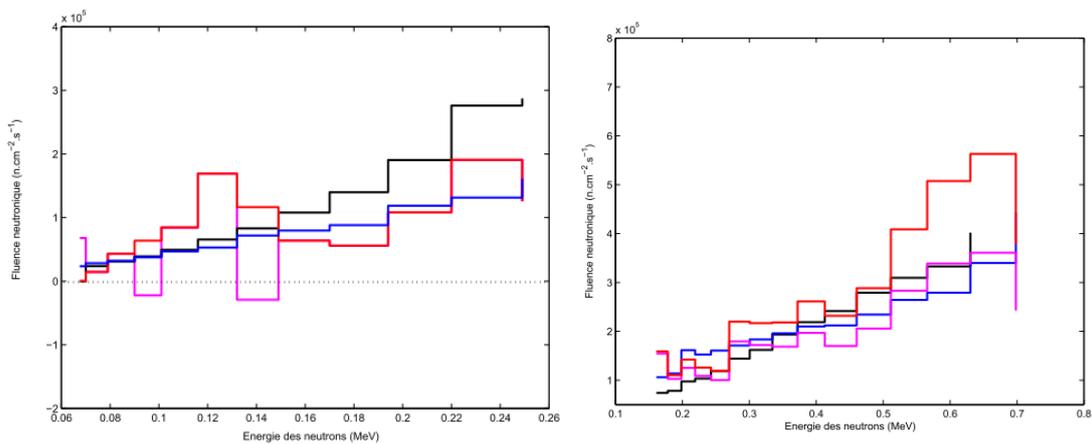


Figure I-52 À gauche : spectres du ^{252}Cf mesurés avec le compteur SP2-1. À droite : spectres du ^{252}Cf mesurés avec le compteur SP2-4. Les spectres en magenta sont les spectres déconvolusés avec SPECA4, en bleu sont les spectres déconvolusés avec MAXED (spectre de départ est un spectre plat), en rouge spectres déconvolusés avec MAXED (spectre de départ = SPECA4) et en noir le spectre de référence ISO.

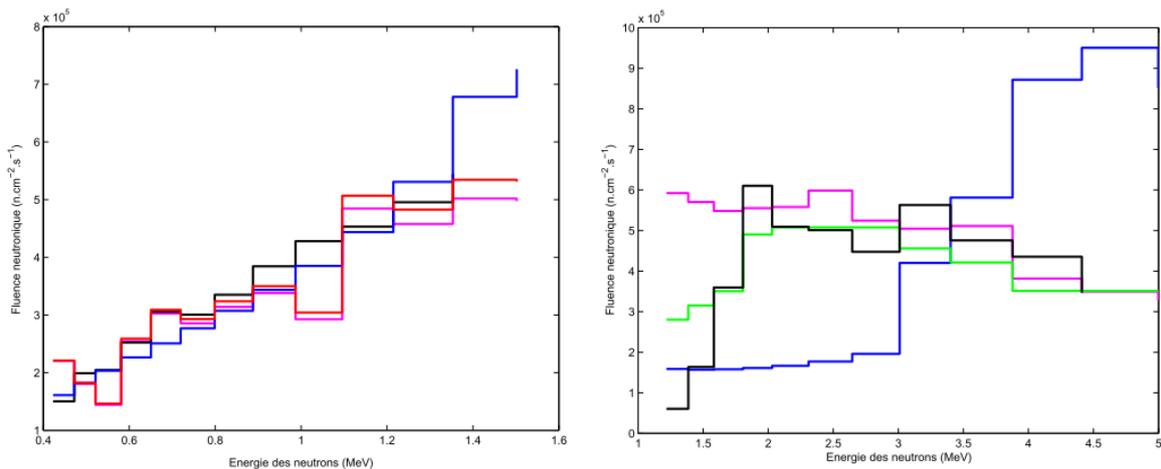


Figure I-53 À gauche : spectres du ^{252}Cf mesurés avec le compteur SP2-10. À droite : spectres du ^{252}Cf mesurés avec le compteur SP6. Les spectres en magenta sont les spectres déconvolués avec SPEC4, en bleu sont les spectres déconvolués avec MAXED (spectre de départ est un spectre plat), en rouge spectres déconvolués avec MAXED (spectre de départ = SPEC4), en vert spectre déconvolué avec MAXED (spectre de départ est un spectre plat modifié) et en noir le spectre de référence ISO.

I.3.3.2. Les systèmes de spectrométrie par scintillateur organique

Les scintillateurs organiques liquides ont été largement utilisés pour la détection et la spectrométrie des sources neutroniques. Au début des années 1960 [103], le scintillateur liquide NE- 213 a été utilisé comme spectromètre à neutrons rapides (1 à 20 MeV). Ce détecteur neutron, de surface active 5 cm×5 cm, est couplé à un photomultiplicateur 56 AVP et utilise la PSD (*Pulse Shape Discrimination*) pour la discrimination neutron/gamma. La fonction de réponse utilisée a été établie lors de travaux précédents pour un détecteur similaire [104]. Elle est formée de 21 fonctions de réponse, correspondant à des neutrons incidents dont les énergies sont comprises entre 0,202 et 21,8 MeV (Figure I-54). Le spectre en hauteur d'impulsion des protons de recul est déconvolué en utilisant le code FORIST qui applique la méthode des moindres carrés. En plus, la résolution en énergie du spectre solution est optimisée en appliquant sur ce spectre une méthode de lissage itérative [105]. La Figure I-55 montre les spectres en énergie de neutrons incidents calculés pour une source PuBe, une source deutérium-tritium (d-t) et une source de ^{252}Cf . Les spectres PuBe et ^{252}Cf obtenus ne sont pas comparés directement avec un spectre de référence, mais il est mentionné qu'ils sont en bon accord avec des mesures précédentes [106,107]. Le spectre de la source neutronique mono-énergétique d-t présente un pic d'énergie autour de 14,1 MeV correspondant à l'énergie des neutrons produits par la réaction de fusion d-t. Les fluctuations à basse énergie sont dues à des fluctuations statistiques de la fonction de réponse et du spectre en hauteur d'impulsion mesuré.

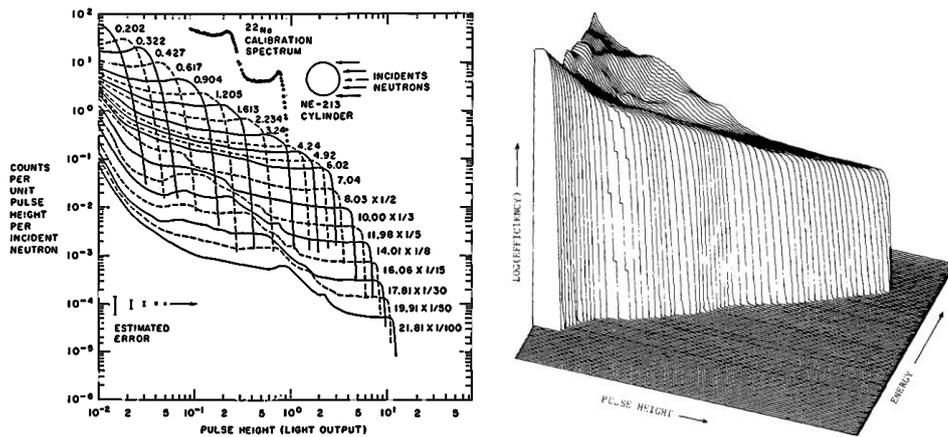


Figure I-54 À gauche : fonction de réponse basée sur les mesures de Verbinski [104] pour un scintillateur organique liquide de 4,60×4,65 cm, obtenue à l'aide de simulations, d'interpolations et d'extrapolations. À droite : représentation isométrique de la matrice de réponse de neutrons de l'Illinois [103].

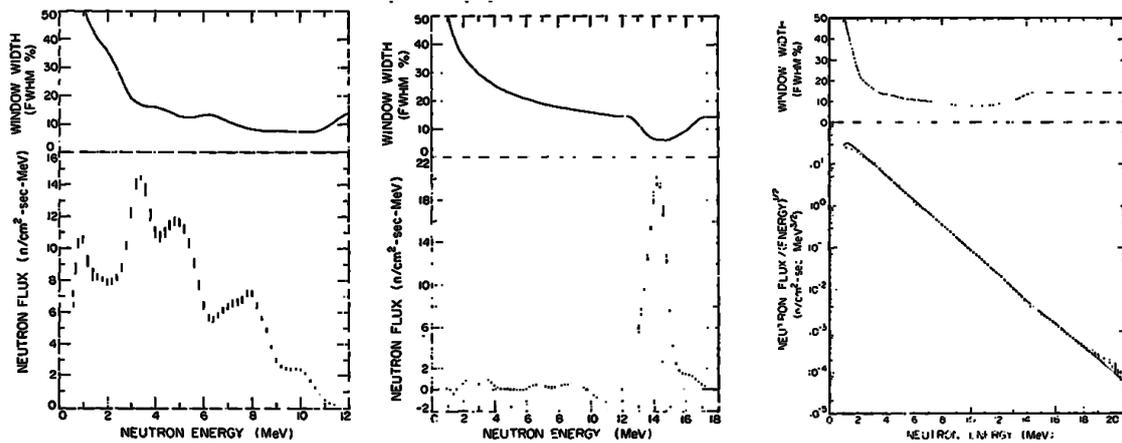


Figure I-55 De gauche à droite : spectres en énergie des neutrons incidents déconvolués des sources PuBe, d-t et ²⁵²Cf [103]. Les courbes en haut des trois figures, intitulées FWHM correspondent à la largeur à mi-hauteur de la gaussienne utilisée par FORIST pour lisser le spectre déconvolué.

En 2005, une équipe à Oak Ridge National Laboratory [99] a étudié la déconvolution sur des données issues d'un scintillateur liquide cylindrique de type BC501. Il a une épaisseur de 7,7 cm et un diamètre de 15,2 cm. En ayant recours au code de déconvolution FORIST, la déconvolution est réalisée en utilisant plusieurs types de fonction de réponse. La première, c'est la matrice d'Illinois intégrée dans le code : elle est formée de 81 énergies de neutron incident (de 0,2 MeV à 22 MeV), et pour chaque énergie de neutron incident, le spectre en hauteur d'impulsion est formé de 113 intervalles et s'étale entre 0,006 MeVee et 14 MeVee. Les spectres en énergie de neutrons incidents calculés ne sont pas en accord avec les vrais spectres en énergie de neutron émis. En particulier, lors de la déconvolution des spectres de neutrons mono-énergétiques, les énergies de neutrons obtenues avec cette matrice sont approximativement supérieures ou inférieures d'1 MeV aux énergies réelles. Cet effet est probablement dû au fait que la matrice de l'Illinois est basée sur un détecteur différent du BC501. Une des approches pour la détermination de la fonction de réponse est la simulation Monte Carlo, via l'utilisation du code MCNP-PoliMi [100] qui fournit un enregistrement détaillé de chaque interaction se produisant dans le détecteur (particule, type d'interaction, énergie, position et temps). La Figure I-56 montre les spectres en hauteur d'impulsion normalisés, extraits de la fonction de réponse simulée pour différentes valeurs d'énergies des neutrons incidents. Les spectres en hauteur d'impulsion ont

été classés selon une structure irrégulière analogue à celle de la matrice de l'Illinois, afin d'utiliser le code FORIST sans le modifier.

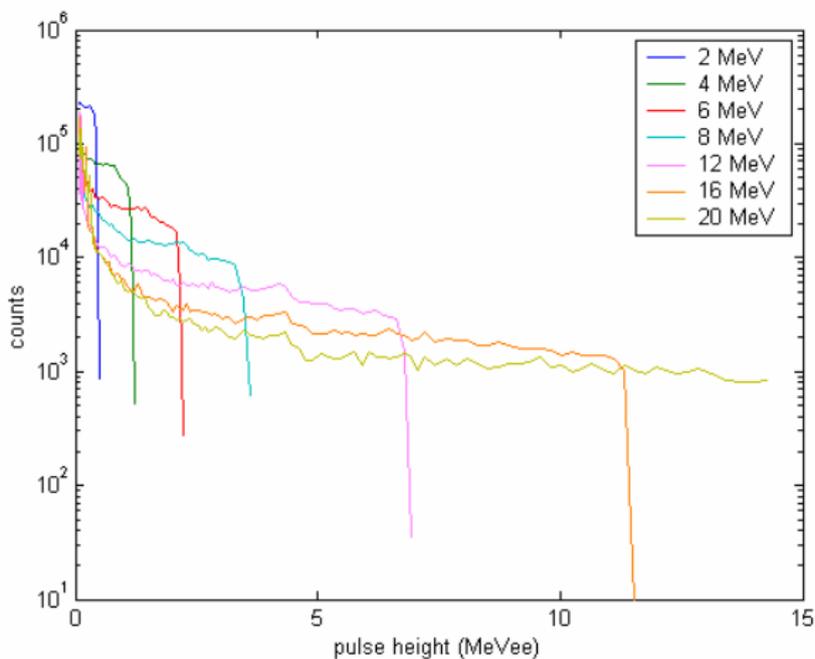


Figure I-56 Spectres en hauteur d'impulsion extraits de la fonction de réponse simulée. Chaque spectre de la fonction de réponse correspond à une énergie incidente différente.

La Figure I-57 illustre les spectres en énergie reconstruits avec FORIST pour des sources neutroniques simulées de ^{252}Cf , d'AmBe, d'une source émettant des neutrons de 14 MeV, et d'une source émettant, en même temps, des neutrons de 4 MeV et de 14 MeV. Nous remarquons que ces spectres sont en bon accord avec les spectres de référence. La déconvolution d'une source ^{252}Cf mesurée donne un accord raisonnable aux énergies supérieures à 1 MeV (Figure I-58).

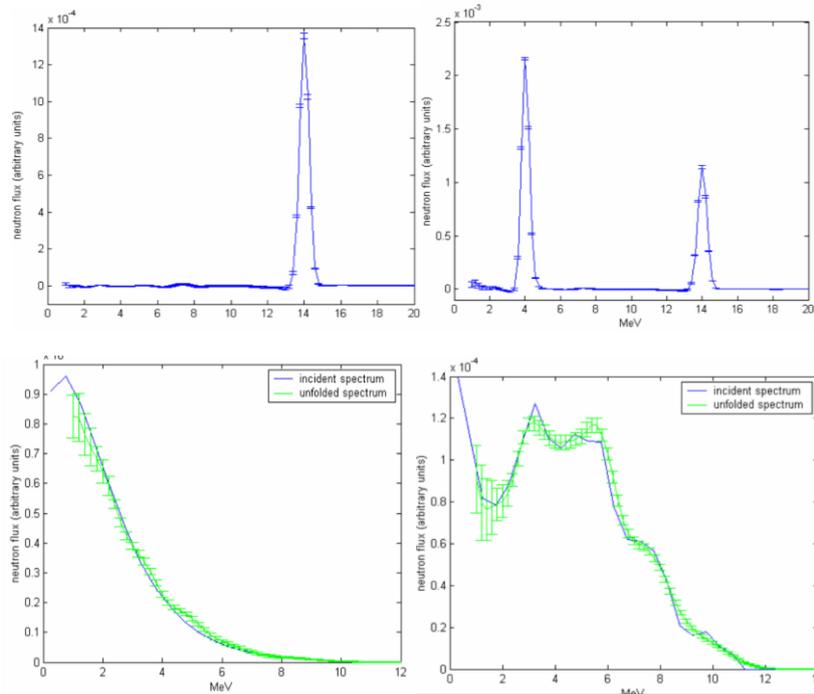


Figure I-57 Les spectres en énergies calculés par le code FORIST pour des sources de neutrons simulées (neutrons mono-énergétiques de 14 MeV, neutrons d'énergie 14 MeV et 4 MeV, ^{252}Cf , et AmBe).

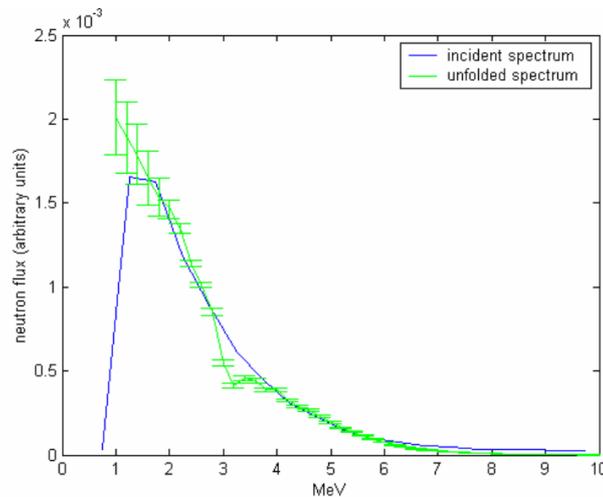


Figure I-58 Déconvolution pour une source de ^{252}Cf à partir de données expérimentales.

En 2012, des études sont menées pour faire une analyse comparative entre deux codes de déconvolution MLEM et OSL (*One Step-Late*) [108]. Ces deux codes correspondent à l'application de méthodes bayésiennes. L'objectif de l'approche MLEM est la maximisation de la fonction de vraisemblance alors que dans OSL, c'est la densité de probabilité *a posteriori* qui est maximisée. Le détecteur utilisé est un scintillateur organique cylindrique de type NE-213. La fonction de réponse est simulée en utilisant MCNP-PoliMi, le spectre en énergie des protons de recul simulé est exprimé en MeVee et formé de 256 intervalles, et les énergies de neutrons s'étalent jusqu'à 15 MeV avec un pas de 0,1 MeV. Ce code prend en considération les diffusions élastiques et inélastiques des neutrons avec l'hydrogène et le carbone. Le rendement lumineux des particules secondaires produites par les réactions neutroniques à l'intérieur du scintillateur est calculé en utilisant les paramètres déterminés expérimentalement, reliant l'énergie déposée et le rendement lumineux du scintillateur. Le post-

traitement final de MCNP-PoliMi est effectué en tenant compte de l'effet cumulatif des diffusions multiples sur le rendement lumineux final. Les spectres déconvolués obtenus dans cette étude sont présentés sur la Figure I-59 et la Figure I-60. Ces résultats montrent que la méthode OSL fournit des résultats plus fidèles aux spectres de référence, en comparaison avec la méthode MLEM, en particulier pour les spectres d'énergie des neutrons continus. Pour la déconvolution des sources mono-énergétiques, la méthode MLEM fournit des pics mieux résolus en énergie et un meilleur accord avec les intensités de référence. La régularisation incorporée dans la méthode OSL pour réduire les oscillations des spectres contribue à l'élargissement des pics pour ces configurations.

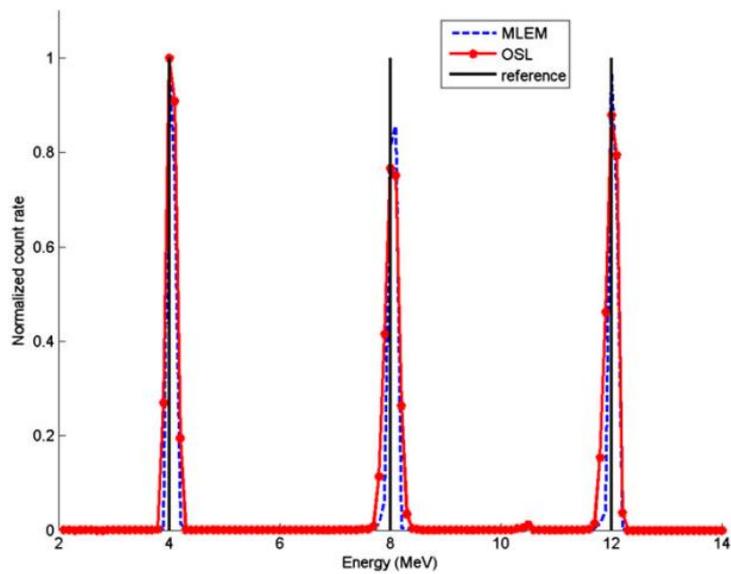


Figure I-59 Résultats de déconvolution de trois faisceaux de neutrons mono-énergétiques simulés.

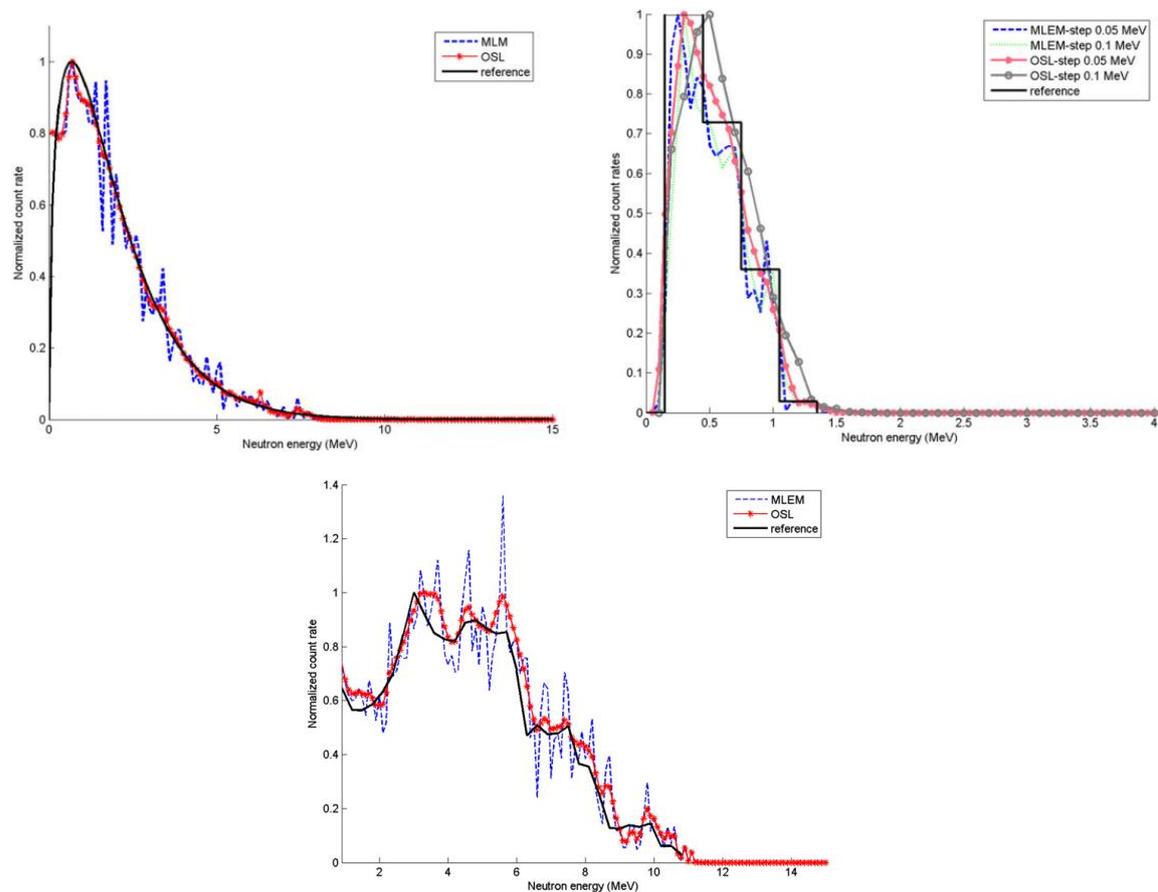


Figure I-60 À gauche : déconvolution de la source ^{252}Cf simulée. Au milieu : déconvolution de la source Am-Li simulée. À droite : déconvolution de la source AmBe simulée. Le nombre d'itérations utilisé pour les trois sources de neutrons est 1000.

En 2013 [109], le code GRAVEL est appliqué à la déconvolution des données issues des mesures réalisées avec le scintillateur liquide BC501 cylindrique. La fonction de réponse est simulée en utilisant le code NRESP7 [110]. Ce code calcule les fonctions de réponse pour les scintillateurs NE-213 (identique au BC501) en simulant l'ensemble des réactions du neutron dans le scintillateur. La matrice de réponse est formée de 261 réponses de 1 MeV à 18 MeV. Un programme écrit dans l'environnement MATLAB [111] basé sur la méthode GRAVEL a été développé, pour la déconvolution du spectre neutronique mesuré de la source Am-Be, et le spectre neutronique mono-énergétique mesuré du générateur d-t. Les spectres de protons de recul de ces deux sources sont obtenus expérimentalement et dans un environnement minimisant le bruit de fond provenant des neutrons diffusés. La Figure I-61 montre les spectres déconvolués par GRAVEL en les comparant avec un spectre de référence ISO et un spectre déconvolué par la méthode ANNs (*Artificial Neural Network*) utilisée dans des travaux précédents [112,113]. Ce dernier est un modèle d'entraînement qui contient une base de données sous forme de spectres des sources neutrons de différents types. Les spectres déconvolués par GRAVEL sont en bon accord avec les spectres de référence. Sur la Figure I-61, on remarque que pour la source AmBe, le spectre calculé par GRAVEL présente un meilleur accord avec le spectre de référence que celui calculé par la méthode ANNs.

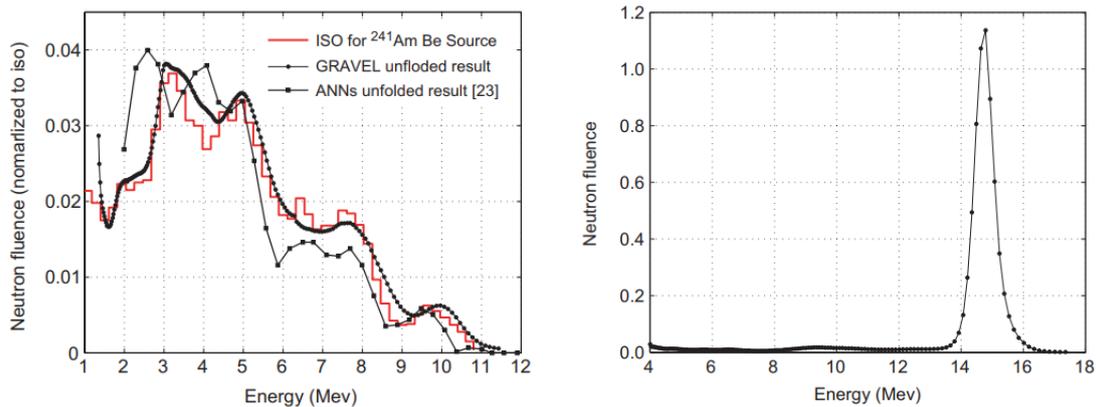


Figure I-61 Déconvolution en utilisant le code GRAVEL de la source neutron AmBe mesurée (à gauche) et de la source neutron mono-énergétique (d-t) mesurée (à droite).

En 2019 [114], une analyse comparative a été réalisée entre les codes de déconvolution Tik- L-curve [115], PIDAL [116], GRAVEL et une nouvelle méthode basée sur un modèle hiérarchique bayésien MCMC (*Monte Carlo Markov Chain*). Ces modèles sont appliqués sur les données d'un scintillateur organique de type EJ-309 de 7,62 cm de diamètre et de 7,62 cm de longueur. La fonction de réponse est simulée en utilisant le code Monte Carlo MCNP-PoliMi qui, en intégrant des paramètres spécifiques dans le modèle de Birks [117], a permis de générer la réponse lumineuse spécifique du détecteur. La Figure I-62 présente la déconvolution des données simulées des sources ^{252}Cf et AmBe en utilisant les quatre codes Tik- L-curve, Pidal-O, GRAVEL et MCMC. L'angle spectral SAM « *spectral angle mapper* » entre le spectre reconstruit et le spectre de référence a été utilisé pour quantifier la performance de chacun des quatre codes. Le Tableau I-4 résume les valeurs de SAM pour chacun des quatre codes et pour les sources ^{252}Cf et AmBe. GRAVEL n'a pas réussi à converger, pour les deux sources, pour des nombres d'évènements inférieurs à 5×10^4 , ce qui est indiqué par « N/A ». Avec des paramètres de régularisation bien réglés (information *a priori*), MCMC, PIDAL et Tik ont démontré une robustesse compétitive face à des comptages faibles. En revanche, MCMC a la capacité d'ajuster automatiquement le paramètre de régularisation, ce qui le distingue des autres approches.

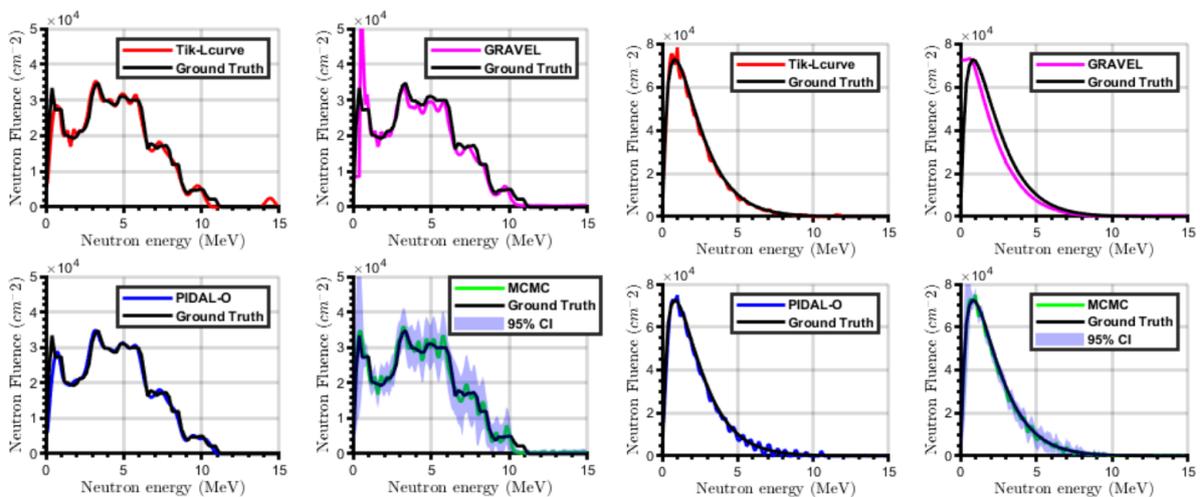


Figure I-62 Les quatre courbes de gauche : exemples de spectres déconvolués en utilisant la source AmBe. Les quatre courbes de droite : exemples de spectres déconvolués en utilisant la source ^{252}Cf .

Neutron Source	Counts	Tik	GRAVEL	PIDAL-O	MCMC
$^{241}\text{AmBe}$	5×10^6	8.99 (1.96)	14.71 (2.99)	7.47 (0.77)	7.99 (0.29)
	5×10^5	9.87 (0.46)	15.81 (1.90)	8.93 (0.86)	9.89 (0.40)
	5×10^4	11.84 (0.49)	N/A	10.96 (1.24)	12.79 (0.65)
	5×10^3	15.25 (0.62)	N/A	14.64 (1.54)	17.06 (1.11)
	5×10^2	19.40 (3.75)	N/A	17.18 (1.41)	22.04 (2.61)
^{252}Cf	5×10^6	4.69 (0.45)	14.59 (1.02)	4.54 (0.60)	4.28 (1.12)
	5×10^5	5.05 (0.84)	15.51 (1.60)	5.78 (0.75)	4.62 (1.06)
	5×10^4	7.06 (1.11)	N/A	7.20 (1.02)	6.33 (1.68)
	5×10^3	12.25 (1.14)	N/A	10.35 (2.03)	10.01 (2.26)
	5×10^2	16.97 (2.51)	N/A	14.57 (3.22)	22.73 (1.96)

Tableau I-4 La performance de déconvolution (valeur de SAM moyenne) en fonction du nombre des événements. Les valeurs entre parenthèses représentent les écarts types associés aux valeurs de SAM.

En 2019, MIDAS [118] est le premier prototype développé, étalonné et utilisé pour mesurer les spectres d'une source de ^{252}Cf . C'est un détecteur miniature développé dans le but d'évaluer les paramètres du champ de radiation à proximité d'un astronaute. Le scintillateur double discriminant utilisé est de type EJ299 de dimensions 7 mm \times 7 mm \times 7 mm et sa face inférieure est reliée à un photomultiplicateur en silicium (SiPM) pour recueillir le signal lumineux. La limite de masse du dispositif est fixée à 50 g et les dimensions sont inférieures à 5 cm \times 5 cm \times 1 cm. Le schéma présentant l'architecture du prototype est montré sur la Figure I-63. La fonction de réponse du scintillateur EJ299-33 utilisé, a été mesurée expérimentalement, en ayant recours au cyclotron du *Laboratori Nazionali del Sud* en Italie. Une relation est obtenue entre l'énergie déposée par les protons et la quantité de lumière générée en MeV_{ee} [119]. La Figure I-64 montre le spectre reconstruit d'une source ^{252}Cf en utilisant une fonction de réponse simulée. Le spectre reconstruit a une proportion d'événements plus élevée aux énergies inférieures à 1,5 MeV par rapport aux résultats de la simulation : une des raisons est le parasitage de la composante neutrons par des rayonnements gamma dus aux erreurs de discrimination neutron/gamma à basse énergie. Par ailleurs, nous pouvons remarquer que les mesures, et par conséquent la reconstruction du spectre, ont été réalisées dans un domaine d'énergie restreint entre [0,9 MeV; 5,7 MeV], et non sur l'ensemble de la gamme d'énergie d'émission des neutrons d'une source ^{252}Cf : [0 MeV; 10 MeV].

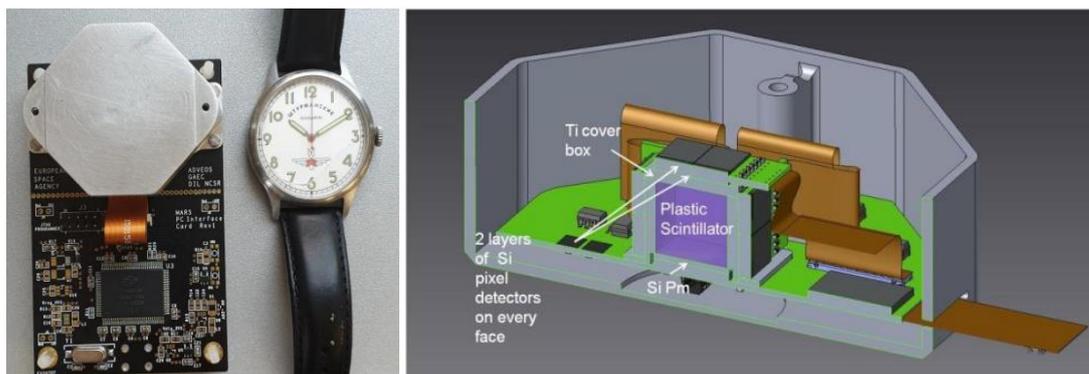


Figure I-63 À gauche : schéma du prototype MIDAS. À droite : schéma présentant l'architecture et les différents composants du détecteur MIDAS.

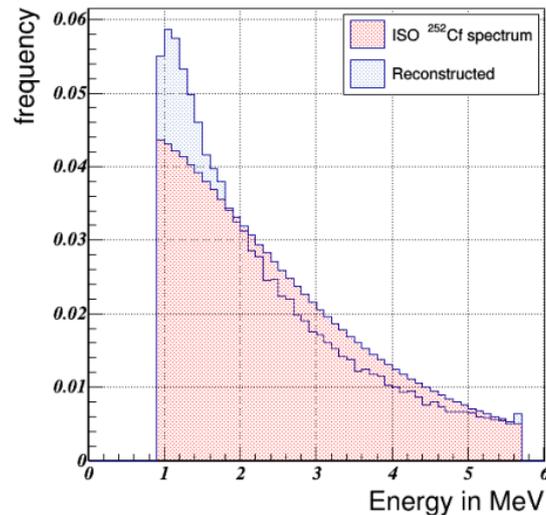


Figure I-64 Reconstruction du spectre ^{252}Cf mesuré.

I.3.3.3. Les systèmes de spectrométrie par semi-conducteur de type diamant

La spectrométrie neutronique avec des détecteurs en diamant est basée sur la collecte des paires électron-trou produites par les particules chargées générées suite à l'interaction des neutrons avec le noyau de carbone-12. Les neutrons interagissent avec le ^{12}C suivant plusieurs réactions principales : $^{12}\text{C}(n,\alpha)^9\text{Be}$ ($Q=-5,70$ MeV), $^{12}\text{C}(n,n')3\alpha$ ($Q=7,23$ MeV) et la réaction de diffusion élastique $^{12}\text{C}(n,n')^{12}\text{C}$. La première réaction citée est la plus adaptée à une mesure spectrométrique : dans ce cas l'énergie déposée est égale à l'énergie du neutron incident E_n moins l'énergie Q de la réaction.

En 2011 [120], des études ont été menées pour mesurer la fonction de réponse dans une gamme d'énergie allant de $E_n=5$ MeV à $E_n=20,5$ MeV (Figure I-65) d'un diamant monocristallin (SCD : *Single Crystal Diamond*). La Figure I-65 (à gauche) montre la courbe d'étalonnage qui relie l'énergie déposée et qui correspond aux centroïdes des pics dus à la réaction du $^{12}\text{C}(n,\alpha)^9\text{Be}$, à la valeur de l'énergie cinétique totale des particules chargées induits par cette réaction et qui correspond à (E_n-Q) . La courbe d'étalonnage $f(E_n, Q)$ expérimentale est comparée aux données d'étalonnage $N(E_n)$ estimées par le code MC TARGET. Ce dernier simule la distribution en énergie des neutrons incidents et le convolue en utilisant la matrice de réponse pour obtenir l'énergie déposée par les particules chargées $N(E_d)$. Ces résultats permettent de mettre en évidence une bonne linéarité de la réponse du détecteur en fonction de l'énergie des neutrons et une bonne résolution en énergie intrinsèque d'environ 56 keV de largeur maximale à mi-hauteur (FWHM : *Full Width at Half Maximum*).

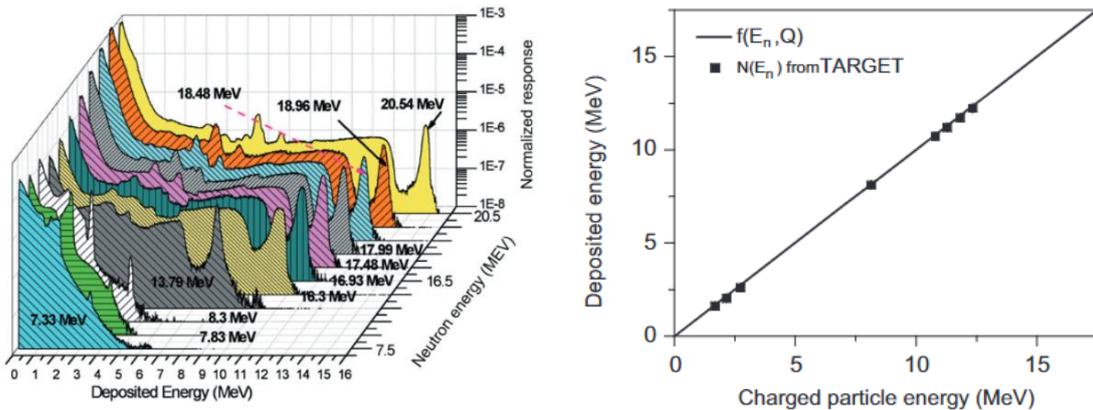


Figure I-65 À gauche : Fonction de réponse du détecteur mesuré. À droite : courbe d'étalonnage en énergie estimée par rapport à l'énergie obtenue du détecteur SCD, déduit d'un ajustement du pic du $^{12}\text{C}(n, \alpha)^9\text{Be}[120]$.

En 2014 [121], un spectromètre de neutrons à base de diamant monocristallin (SDD : *Single crystal Diamond Detectors*) pixellisé a été conçu et fabriqué pour le diagnostic neutronique dans les dispositifs de fusion à haute puissance. Le spectromètre de neutrons est présenté sur la Figure I-66. La réponse du prototype basé sur le SDD aux neutrons de 14 MeV a été mesurée avec le générateur de neutrons de Frascati par l'observation du pic de 8,3 MeV (Figure I-67) de la réaction $^{12}\text{C}(n, \alpha)^9\text{Be}$ se produisant entre les neutrons et les noyaux ^{12}C dans le détecteur. La résolution en énergie mesurée ($FWHM/E$) est de valeur 2,5% ce qui répond aux exigences des applications de spectrométrie neutronique dans les réactions de fusion d-t.

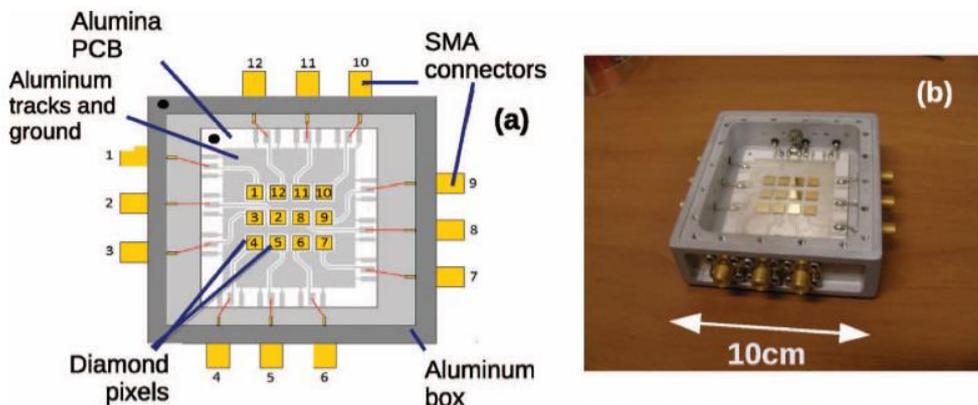


Figure I-66 Schéma (a) et image (b) d'un spectromètre neutronique basé sur une matrice en diamant de 12 pixels.

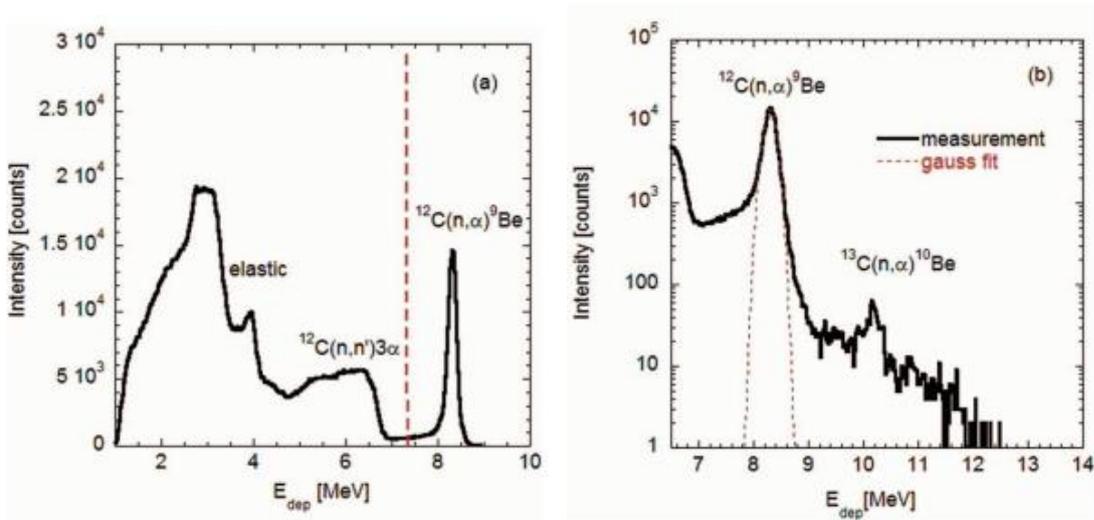


Figure I-67 Spectre en énergie déposée des neutrons mono-énergétiques de 14 MeV (a). La ligne verticale en pointillés est le seuil d'énergie appliqué pour ne compter que les événements du pic (n, α) . Le même spectre pour $7 \text{ MeV} < E_{\text{dep}} < 14 \text{ MeV}$ est présenté en échelle logarithmique avec un ajustement gaussien au pic (n, α) (b) [121].

En 2021, une caméra neutrons à base de diamant (DNSC : *Diamond Based Neutron Scatter Camera*) a été modélisée par simulation MCNP et validée expérimentalement [122]. Ce prototype de mesure est composé de deux plans de détecteur de type diamant de volume $(0,45 \text{ cm} \times 0,45 \text{ cm} \times 0,05 \text{ cm})$. Le montage expérimental de la caméra est présenté sur la Figure I-68 (à gauche). La Figure I-68 (à droite) montre le spectre en énergie reconstruit à l'aide des mesure de TOF entre les deux plans du détecteur pour la source neutronique PuBe. Le système proposé démontre tous les pics caractéristiques de la source de neutrons PuBe. Plus précisément, les mesures correspondaient aux pics de 8 MeV et 10,5 MeV de la source.

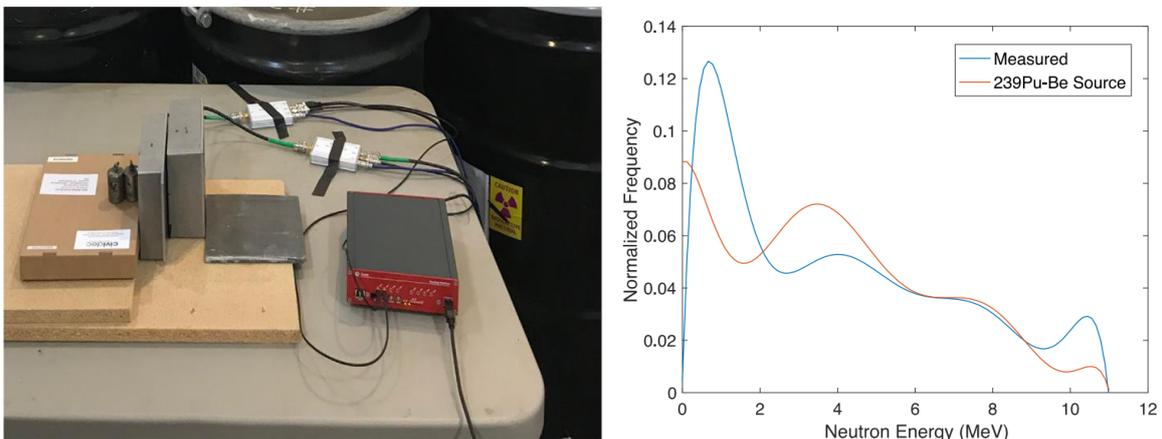


Figure I-68 Montage expérimental de la caméra neutrons à base de diamant (à gauche), spectre de neutrons reconstruit comparé au spectre de référence de la source PuBe (à droite).

Les détecteurs de neutrons à base de diamant peuvent jouer un rôle important en tant que détecteurs compacts de neutrons destinés à être utilisés dans les systèmes de caméra dans les expériences de réaction de fusion à haute puissance (de type Tore Supra [123] et ITER [124]) ou pour le suivi de cœur de réacteur [125–127].

I.4. Synthèse du chapitre 1

Ce chapitre aborde le contexte de l'assainissement et du démantèlement des sites nucléaires en fin de vie, en précisant les principales étapes ainsi que la forte expérience de l'industrie nucléaire française dans ce domaine. Nous avons parlé de la nécessité d'utiliser de nouveaux instruments de mesure qui garantissent une mesure précise de la localisation, et la quantification des matières nucléaires présentes dans les zones contaminées, tels que les spectro-imageurs neutroniques. Les principales sources neutroniques rencontrées dans un environnement nucléaire ont été rappelées, ainsi que les instruments et les méthodes de détection des neutrons.

Le chapitre présente également un état de l'art sur les différentes technologies de spectro-imagerie neutronique, notamment la spectro-imagerie par diffusion élastique, l'imagerie par encodage spatial et la spectrométrie par déconvolution des spectres.

Concernant l'imagerie neutronique, la méthode d'imagerie par encodage spatial a deux limites : à mesure que l'énergie de la particule incidente augmente, le masque codé devient transparent, ce qui diminue la sensibilité de la mesure ; et la caméra a un champ de vue limité, généralement compris entre 30 et 70 degrés. Cependant, les imageurs utilisant des masques codés ont une résolution spatiale de 2°. Les imageurs utilisant la diffusion élastique ont des champs de vue importants, allant de 90° à 360°, mais ont une résolution spatiale qui n'est généralement pas meilleure que 10°. Pour la spectrométrie par double diffusion sur les deux plans de détection, la reconstruction du spectre en énergie de neutrons émis est contrainte généralement par un seuil bas en énergie de 1 MeV.

Les sphères de Bonner, les spectromètres à scintillation et les détecteurs de neutrons à base de diamant sont également discutés comme méthodes pour la spectrométrie neutronique dans des conditions spécifiques. Chacune de ces techniques présente des avantages et des limites par rapport à la résolution en énergie, la sensibilité de détection, le temps d'acquisition et la réponse aux rayonnements gamma.

Les sphères de Bonner ont une fonction de réponse isotrope, une utilisation simple mais des durées d'acquisition longues (quelques heures). Elles se caractérisent par une bonne discrimination neutron/gamma et une haute efficacité intrinsèque de détection des neutrons thermiques. Le désavantage est qu'ils ont une faible résolution en énergie (~1 MeV) due au nombre limité d'épaisseurs des sphères modératrices. En revanche, il existe des cas où une description détaillée de la distribution en énergie n'est pas nécessaire, principalement dans les applications dosimétriques. Les techniques basées sur l'utilisation de modérateurs (sphère de Bonner) assurent une bonne fiabilité couvrant une vaste gamme d'énergie allant de l'épithermique jusqu'à plusieurs GeV.

Les détecteurs à base de diamant peuvent fonctionner dans des environnements difficiles (par exemple, à une température supérieure à 150 °C), ils sont peu sensibles aux rayonnements gamma et ils sont capables de distinguer les neutrons des rayonnements gamma. Ce détecteur est un excellent candidat pour faire des mesures de spectrométrie à haute résolution des neutrons de 14 MeV émis par la réaction de fusion d-t (FWHM =120 keV), des neutrons de 2,5 MeV émis par réaction de fusion d-d (FWHM =80-90 keV) [128], et des neutrons produits par les réacteurs nucléaires.

Les spectromètres à scintillation ont une bonne sensibilité de détection pour les neutrons rapides ($\sigma=5$ barns), une bonne résolution en énergie (136 keV à 1 MeV). Les spectromètres à scintillation sont faciles à manipuler et ils se caractérisent pour la plupart par une réponse isotrope. En revanche, ils sont limités par des facteurs tels que leur sensibilité aux rayonnements gamma, et la réponse non linéaire de la hauteur d'impulsion aux différentes énergies de neutrons incidents.

Les travaux de thèse consistent à développer et à améliorer l'imageur neutronique portable créé au LCIM et présenté dans la section I.3.2.4. Dans la suite de ces travaux, nous allons chercher à intégrer la spectrométrie neutronique dans l'imageur, en utilisant la méthode de déconvolution des spectres appliquée sur un scintillateur plastique pixellisé comme cœur du prototype de spectro-imageur neutronique. L'objectif est de réaliser l'imagerie et la spectrométrie neutronique avec un même prototype, en combinant, pour la première fois, la technique d'encodage spatial pour l'imagerie et de déconvolution des spectres pour la spectrométrie. Le chapitre suivant présentera par simulation la faisabilité de la spectrométrie neutronique par déconvolution appliquée, comme première étape, à un monobloc de scintillateur plastique plutôt qu'un scintillateur plastique pixellisé, dans le but de simplifier la configuration du détecteur.

I.5. Bibliographie du chapitre 1

- [1] L'assainissement-démantèlement des installations nucléaires, monographie de la Direction de l'Énergie nucléaire, Commissariat à l'énergie atomique et aux énergies alternatives, (2017). https://www.cea.fr/multimedia/Documents/publications/monographie-nucleaire/CEA_Monographie13_Assainissement-demantelement-installations-nucleaires_2017_Fr.pdf.
- [2] Autorité de Sûreté Nucléaire ASN, Le démantèlement des installations nucléaires, (2023). <https://www.asn.fr/l-asn-informe/dossiers-pedagogiques/le-demantelement-des-installations-nucleaires>.
- [3] L. PIKETTY, Le démantèlement des installations nucléaires du CEA, Encyclopédie de l'énergie. (2016). <https://www.encyclopedie-energie.org/le-demantelement-des-installations-nucleaires-du-cea/>.
- [4] CEA, Rapport financier, 2021. www.cea.fr.
- [5] Commissariat à l'énergie atomique et aux énergies alternatives, Fukushima : un procédé français de dépollution décontamination des terres expérimenté au Japon, (2018). <https://www.cea.fr/presse/Pages/actualites-communiques/energies/Fukushima-procede-fran%C3%A7ais-depollution-decontamination-terres-japon.aspx#:~:text=Une%20campagne%20d'essais%20r%C3%A9els%20au%20Japon&text=Il%20consiste%20%C3%A0%20faire%20mousser,ensuite%20des%20bulles%20d'air>.
- [6] J. Conca, After Five Years, What Is The Cost Of Fukushima?, Forbes. (2016).
- [7] J. Venara, M. Ben Mosbah, C. Mahé, M. Masson, J.L. Paul, Radiological characterization methods specifically applied to the preparation of the dismantling of phenix fast reactor, in: Proceedings of the International Conference on Radioactive Waste Management and Environmental Remediation, ICEM, 2013. <https://doi.org/10.1115/ICEM2013-96061>.
- [8] C. Mahe, M. Cuozzo, F. Lafont, S. Mitra, J. Venara, Development of a Dual Alpha-Gamma Camera for Radiological Characterization, in: 2017 IEEE Nuclear Science Symposium and Medical Imaging Conference, NSS/MIC 2017 - Conference Proceedings, Institute of Electrical and Electronics Engineers Inc., 2018. <https://doi.org/10.1109/NSSMIC.2017.8532595>.
- [9] O. Gal, C. Izac, F. Lainé, A. Nguyen, CARTOGAM: a portable gamma camera, Nucl Instrum Methods Phys Res A. 387 (1997) 297–303. [https://doi.org/10.1016/S0168-9002\(96\)01013-3](https://doi.org/10.1016/S0168-9002(96)01013-3).
- [10] K. Amgarou, V. Paradiso, A. Patoz, F. Bonnet, J. Handley, P. Couturier, F. Becker, N. Menea, A comprehensive experimental characterization of the iPIX gamma imager, Journal of Instrumentation. 11 (2016). <https://doi.org/10.1088/1748-0221/11/08/P08012>.
- [11] G. Montémont, P. Bohuslav, J. Dubosq, B. Feret, NuVISION: a Portable Multimode Gamma Camera based on HiSPECT Imaging Module, IEEE Nuclear Science Symposium and Medical Imaging Conference. (2017) 6–8.
- [12] R. Le Breton, O. Limousin, G. Daniel, D. Diquelou, Y. Gutierrez, J.I. Hullo, J.P. Paupe, V. Mogear, P. Serrano, G. Tauzin, A. Vanel, M.C. Vassal, M. Brunet, The Spid-X gamma camera: A miniature gamma ray integral field spectrometer for nuclear industry applications, Nucl Instrum Methods Phys Res A. 1047 (2023). <https://doi.org/10.1016/j.nima.2022.167722>.

- [13] S. Takeda, A. Harayama, Y. Ichinohe, H. Odaka, S. Watanabe, T. Takahashi, H. Tajima, K. Genba, D. Matsuura, H. Ikebuchi, Y. Kuroda, T. Tomonaka, A portable Si/CdTe Compton camera and its applications to the visualization of radioactive substances, *Nucl Instrum Methods Phys Res A*. 787 (2015) 207–211. <https://doi.org/10.1016/J.NIMA.2014.11.119>.
- [14] C.G. Wahl, W.R. Kaye, W. Wang, F. Zhang, J.M. Jaworski, A. King, Y.A. Boucher, Z. He, The Polaris-H imaging spectrometer, *Nucl Instrum Methods Phys Res A*. 784 (2015) 377–381. <https://doi.org/10.1016/J.NIMA.2014.12.110>.
- [15] PHDS Gamma Ray Imaging Detectors, GeGI Imaging HPGe Detector, (2023). <https://phdsco.com/products/gegi>.
- [16] Createc, N-Visage[®] Gamma Imager, (2023). <https://createc.co.uk/n-visage-scanner>.
- [17] Gammadata, DIAMON - NEUTRON SPECTROMETER, (2023). <https://www.gammadata.se/products/radiation-detection/lab-and-spectroscopy/detectors/neutron/neutron-spectrometer/>.
- [18] BTIIBUBBLE Technology Industries, ROSPEC – ROTATING NEUTRON SPECTROMETER, (2023). <https://bubbletech.ca/product/rospec-rotating-neutron-spectrometer/>.
- [19] Mirion Technologies, Gamma imaging iPIX, 2019. <https://www.mirion.com/products/technologies/health-physics-radiation-safety-instruments/portable-radiation-measurement/gamma-imaging-systems/ipix-ultra-portable-gamma-ray-imaging-system>.
- [20] N. Ensslin, W.C. Harker, M.S. Krick, D.G. Langner, M.M. Pickrell, J.E. Stewart, Application Guide to Neutron Multiplicity Counting Los Alamos, 1998. https://cdn.lanl.gov/files/m-app-to-neutron-multiplicity-counting_9ea55.pdf.
- [21] N.J. Nicholas, K.L. Coop, R.J. Estep, Capability and Limitation Study of the DDT Passive-Active Neutron Waste Assay Instrument, 1992. https://inis.iaea.org/collection/NCLCollectionStore/_Public/23/064/23064409.pdf.
- [22] B. Pérot, J. Artaud, C. Passard, A. Raoux, Experimental Qualification With a Scale One Mock-Up of the “Measurement and Sorting Unit” for Bituminized Waste Drums., in: Proceedings of the ASME 2003 9th International Conference on Radioactive Waste Management and Environmental Remediation. , 2003. <https://doi.org/10.1115/ICEM2003-4597>.
- [23] F. Jallu, A. Reneleau, P. Soyer, J. Loridon, Dismantling and decommissioning: The interest of passive neutron measurement to control and characterise radioactive wastes containing uranium, *Nucl Instrum Methods Phys Res B*. 271 (2012) 48–54. <https://doi.org/10.1016/j.nimb.2011.09.018>.
- [24] N.K. Mumba, L. Vas, Cs.M. Buczko, Uranium and thorium analyses by delayed fission neutron counting technique using a small neutron generator, *J.Radioanal.Nucl.Chem., Letters* 95 /5/ 311-322 . (1985).
- [25] H. René Vega-Carrillo, E. Manzanares-Acuña, V.M. Hernández-Dávila, E. Gallego, A. Lorente, Neutron Shielding for a 252 Cf Source, México, 2006.
- [26] J. Armstrong, F. B. Brown, J. S. Bull, L. Caswell, Manuel_MCNP_6.2, U.S., 2017.

- [27] M.F. L'Annunziata, Handbook of Radioactivity Analysis, Second edition, Academic Press, 2003. <https://doi.org/10.1016/B978-012436603-9/50006-5>.
- [28] I. Murata, I. Tsuda, R. Nakamura, S. Nakayama, M. Matsumoto, H. Miyamaru, Neutron and gamma-ray source-term characterization of AmBe sources in Osaka University, Progress in Nuclear Science and Technology. 4 (2014) 345–348. <https://doi.org/10.15669/pnst.4.345>.
- [29] J.W. Marsh, D.J. Thomas, M. Burke, High resolution measurements of neutron energy spectra from Am-Be and Am-B neutron sources, Nuclear Instruments and Methods in Physics Research . 366 (1995) 340–348.
- [30] P. Grand, A.N. Goland, An intense neutron source based upon the deuteron-stripping reaction, Nuclear Instruments and Methods. 145 (1977) 49–76. [https://doi.org/10.1016/0029-554X\(77\)90557-2](https://doi.org/10.1016/0029-554X(77)90557-2).
- [31] M. Douglas, S. J. Kenneth, Radiation Detection Concepts, Methods, and Devices, 1st Edition, Boca Raton, 2020.
- [32] J.B. Marion, F.C. Young, Nuclear Reaction Analysis, John Wiley and Sons, Netherlands, 1968.
- [33] M. Bricka, G. Soudain, Spectrométrie des neutrons par détecteurs à activation, Radioprotection. 1 (1966). <https://doi.org/10.1051/radiopro/19660101015>.
- [34] F.L. Ribe, Li6(n, tr)H3 Cross Section as a Function of Neutron Energy, Physical Review. 103 (1956).
- [35] D. Kasatov, A. Koshkarev, A. Kuznetsov, A. Makarov, Y. Ostreinov, I. Shchudlo, I. Sorokin, T. Sycheva, S. Taskaev, L. Zaidi, The accelerator neutron source for boron neutron capture therapy, in: J Phys Conf Ser, Institute of Physics Publishing, 2016. <https://doi.org/10.1088/1742-6596/769/1/012064>.
- [36] G.F. Knoll, Radiation detection and measurement, 3rd ed., John Wiley & Sons, Inc., 2000. <https://phyusdb.files.wordpress.com/2013/03/radiationdetectionandmeasurementbyknoll.pdf>.
- [37] D.-J. Gambini, R. Granier, Manuel pratique de radioprotection, troisième édition, 1997.
- [38] A. Stoykov, T. Rostomyan, Time resolution of BC422 plastic scintillator read out by a SiPM, (2021). <https://doi.org/10.1109/TNS.2021.3089616>.
- [39] F. Ferrulli, M. Labalme, M. Silari, Investigation of CLYC-6 for thermal neutron detection and CLYC-7 for fast neutron spectrometry, Nucl Instrum Methods Phys Res A. 1029 (2022). <https://doi.org/10.1016/j.nima.2022.166460>.
- [40] G. Rooh, H.J. Kim, H. Park, S. Kim, Luminescence and scintillation characterization of Cs₂NaGdBr₆: Ce³⁺ single crystal, J Lumin. 132 (2012) 713–716. <https://doi.org/10.1016/j.jlumin.2011.10.015>.
- [41] C. Lynde, Développement d'un imageur neutron portable, Thèse de doctorat, Université de Strasbourg, Ecole doctorale Physique et Chimie Physique 182, Institut Pluridisciplinaire Hubert Curien, 2019. <https://www.theses.fr/2019STRAE006>.
- [42] A. Kargar, H. Hong, J. Tower, A. Gueorguiev, H. Kim, L. Cirignano, J.F. Christian, M.R. Squillante, K. Shah, LiInSe₂ for Semiconductor Neutron Detectors, Front Phys. 8 (2020). <https://doi.org/10.3389/fphy.2020.00078>.

- [43] J.E.M. Goldsmith, M.D. Gerling, J.S. Brennan, A compact neutron scatter camera for field deployment, *Review of Scientific Instruments*. 87 (2016). <https://doi.org/10.1063/1.4961111>.
- [44] P.E. Vanier, L. Forman, An 8-element fast-neutron double-scatter directional detector, in: *Penetrating Radiation Systems and Applications VII SPIE*, 2005. <https://www.osti.gov/servlets/purl/15020061-GBN4Jq/>.
- [45] P.E. Vanier, L. Forman, Demonstration of a directional Fast Neutron Detector, in: *IEEE Nuclear Science Symposium Conference Record*, 2005: pp. 116–119. <https://doi.org/10.1109/NSSMIC.2005.1596219>.
- [46] P. Marleau, J. Brennan, K. Krenz, N. Mascarenhas, S. Mrowka, Advances in Imaging Fission Neutrons with a Neutron Scatter Camera, in: *IEEE Nuclear Science Symposium Conference Record*, IEEE, 2007. <https://doi.org/10.1109/NSSMIC.2007.4436310>.
- [47] N. Mascarenhas, J. Brennan, K. Krenz, P. Marleau, S. Mrowka, Results with the neutron scatter camera, *IEEE Trans Nucl Sci*. 56 (2009) 1269–1273. <https://doi.org/10.1109/TNS.2009.2016659>.
- [48] J. Brennan, R. Cooper, M. Gerling, P. Marleau, Results with a 32-Element Dual Mode Imager, in: *IEEE Nuclear Science Symposium & Medical Imaging Conference*, IEEE, 2010: pp. 1634–1639. <https://doi.org/doi:10.1109/NSSMIC.2010.5874053>.
- [49] A.C. Madden, P.F. Bloser, D. Fourquette, L. Larocque, J.S. Legere, M. Lewis, M.L. McConnell, M. Rousseau, J.M. Ryan, An imaging neutron/gamma-ray spectrometer, in: *Chemical, Biological, Radiological, Nuclear, and Explosives (CBRNE) Sensing XIV*, SPIE, 2013: p. 87101L. <https://doi.org/10.1117/12.2018075>.
- [50] J.E.M. Goldsmith, M.D. Gerling, J.S. Brennan, A Compact Neutron Scatter Camera for Field Deployment, *Review of Scientific Instruments*. 87 (2016) 83307. <https://doi.org/https://doi.org/10.1063/1.4961111>.
- [51] K. Weinfurther, J. Mattingly, E. Brubaker, J. Steele, Model-based design evaluation of a compact, high-efficiency neutron scatter camera, *Nucl Instrum Methods Phys Res A*. 883 (2018) 115–135. <https://doi.org/10.1016/j.nima.2017.11.025>.
- [52] J. Braverman, J. Brennan, E. Brubaker, B. Cabrera-Palmer, S. Czyz, P. Marleau, J. Mattingly, A. Nowack, J. Steele, M. Sweany, K. Weinfurther, E. Woods, Single-Volume Neutron Scatter Camera for High-Efficiency Neutron Imaging and Spectroscopy, (2018). <http://arxiv.org/abs/1802.05261>.
- [53] G.R. Jocher, J. Koblanski, V.A. Li, S. Negrashov, R.C. Dorrill, K. Nishimura, M. Sakai, J.G. Learned, S. Usman, miniTimeCube as a neutron scatter camera, *AIP Adv.* 9 (2019). <https://doi.org/10.1063/1.5079429>.
- [54] X. Pang, Z. Zhang, J. Zhang, W. Zhou, Y. Zhang, D. Cao, L. Shuai, Y. Wang, Y. Liu, X. Jiang, X. Liang, X. Xiao, L. Wei, D. Li, A compact MPPC-based camera for omnidirectional (4π) fast-neutron imaging based on double neutron–proton elastic scattering, *Nucl Instrum Methods Phys Res A*. 944 (2019). <https://doi.org/10.1016/j.nima.2019.162471>.
- [55] W.M. Steinberger, M.L. Ruch, N. Giha, A. Di Fulvio, P. Marleau, S.D. Clarke, S.A. Pozzi, Imaging Special Nuclear Material using a Handheld Dual Particle Imager, *Sci Rep.* 10 (2020). <https://doi.org/10.1038/s41598-020-58857-z>.

- [56] T. Harvey, A. Enqvist, Development of Prototype Simplified Neutron Scatter Camera for Nuclear Safeguards Applications, EPJ Web Conf. 253 (2021) 07008. <https://doi.org/10.1051/epjconf/202125307008>.
- [57] Wikipedia, Pinhole camera model, (2021). https://en.wikipedia.org/wiki/Pinhole_camera_model.
- [58] R.G. Johnson, J.W. Behrens, C.D. Bowman, Source imaging using neutron pinhole cameras based on position-sensitive proportional counters, Nucl Technol. 55 (1981) 724–727. <https://doi.org/10.13182/NT81-A32817>.
- [59] D. Ress, R.A. Lerche, R.J. Ellis, S.M. Lane, K.A. Nugent, Neutron Imaging of Laser Fusion Targets, 1988. <http://science.sciencemag.org/>.
- [60] R.H. Dicke, Scatter-hole cameras for x-rays and gamma rays, Astrophys J. 153 (1968). <https://doi.org/10.1086/180230>.
- [61] R. Zhang, P. Gong, X. Tang, P. Wang, C. Zhou, X. Zhu, L. Gao, D. Liang, Z. Wang, Reconstruction method for gamma-ray coded-aperture imaging based on convolutional neural network, Nucl Instrum Methods Phys Res A. 934 (2019) 41–51. <https://doi.org/10.1016/j.nima.2019.04.055>.
- [62] F. Carrel, R.A. Khalil, S. Colas, D. De Toro, G. Ferrand, E. Gaillard-Lecanu, M. Gmar, D. Hameau, S. Jahan, F. Laine, A.S. Lalleman, F. Lemasle, C. Mahé, J.E. Maurer, N. Menaa, S. Normand, H. Onillon, N. Saurel, V. Schoepff, H. Toubon, GAMPIX: A new gamma imaging system for radiological safety and homeland security purposes, in: IEEE Nuclear Science Symposium Conference Record, Institute of Electrical and Electronics Engineers Inc., 2011: pp. 4739–4744. <https://doi.org/10.1109/NSSMIC.2011.6154706>.
- [63] C. Lynde, Développement d'un imageur neutron portable, Thèse de doctorat, Université de Strasbourg, Ecole doctorale Physique et Chimie Physique 182, 2019. <https://www.theses.fr/2019STRAE006>.
- [64] G. Amoyal, Développement d'un imageur gamma hybride pour les applications de l'industrie nucléaire, thèse de doctorat, Université Caen Normandie, Ecole doctorale PSIME, 2020. <https://theses.hal.science/tel-02522908v2>.
- [65] H. Lemaire, Développement d'une caméra gamma de troisième génération, Thèse de doctorat, Université de Caen Basse-Normandie, École doctorale SIMEM, 2019. <https://hal.archives-ouvertes.fr/tel-02271784>.
- [66] P.E. Van, L. Forman, E.C. Selcow, A thermal neutron source imager using coded apertures, in: Conference: 36. Annual Meeting of the Institute for Nuclear Materials Management, Palm Desert, CA (United States), 9-12 Jul 1995, 1995. <https://www.osti.gov/servlets/purl/10046> (accessed December 18, 2023).
- [67] P. Hausladen, M. Blackston, Passive and Active Fast-Neutron Imaging in Support of AFCI Safeguards Campaign, 2009. <http://www.osti.gov/contact.html>.
- [68] P.A. Hausladen, M.A. Blackston, R.J. Newby, Position-Sensitive Fast-Neutron Detector Development in Support of Fuel-Cycle R&D MPACT Campaign Prepared by, 2010. <http://www.osti.gov/contact.html>.
- [69] P.A. Hausladen, M.A. Blackston, E. Brubaker, D.L. Chichester, P. Marleau, R.J. Newby, Fast-Neutron Coded-Aperture Imaging of Special Nuclear Material Configurations INMM 2012,

- Conference: 53rd INMM Annual Meeting, Orlando, Fla., 07/15/2012, 07/20/2012. (2012). <https://www.osti.gov/servlets/purl/1055983>.
- [70] L. Soundara-Pandian, J. Glodo, J.F. Christian, R. Vinci, A. Gueorguiev, C. Whitney, E.B. Johnson, K.S. Shah, M.R. Squillante, Combined Gamma-Ray/Neutron Imaging System for Detecting Nuclear Material, 2013.
- [71] C.M. Whitney, L. Soundara-Pandian, E.B. Johnson, S. Vogel, B. Vinci, M. Squillante, J. Glodo, J.F. Christian, Gamma-neutron imaging system utilizing pulse shape discrimination with CLYC, Nucl Instrum Methods Phys Res A. 784 (2015) 346–351. <https://doi.org/10.1016/j.nima.2014.09.022>.
- [72] R. S. Woolf, An Active Interrogation Detection System (ACTINIDES) Based on a Dual Fast Neutron/Gamma-Ray Coded Aperture Imager, in: IEEE Conference on Technologies for Homeland Security (HST), Waltham, MA, USA, IEEE, 2012: pp. 30–35. <https://doi.org/10.1109/THS.2012.6459822>.
- [73] C. V. Griffith, R. S. Woolf, 64-Element Fast-Neutron, Coded-Aperture Imager, in: IEEE International Symposium on Technologies for Homeland Security (HST), Waltham, MA, USA, 2017: pp. 1–5. <https://doi.org/10.1109/THS.2017.7943453>.
- [74] I. DIOSZEGI, G.C. SMITH, N.A. SCHAKNOWSKI, B. YU, J. FRIED, C. SALWEN, P.E. VANIER, L. FORMAN, CODED APERTURE THERMAL NEUTRON CAMERA WITH ASIC-BASED PAD READOUT, Int J Mod Phys Conf Ser. 27 (2014) 1460139. <https://doi.org/10.1142/s2010194514601392>.
- [75] J. Brennan, E. Brubaker, M. Gerling, P. Marleau, K. McMillan, A. Nowack, N.R. Le Galloudec, M. Sweany, Demonstration of two-dimensional time-encoded imaging of fast neutrons, Nucl Instrum Methods Phys Res A. 802 (2015) 76–81. <https://doi.org/10.1016/j.nima.2015.08.076>.
- [76] J. Guo, X. Pang, J. Cai, D. Li, X. Wang, X. Hu, Y. Yu, S. Liu, X. Liang, Y. Zhang, L. Shuai, L. Wei, Compact MPPC-based coded aperture imaging camera for dual-particle detection, Radiation Detection Technology and Methods. 5 (2021) 61–70. <https://doi.org/10.1007/s41605-020-00218-5>.
- [77] J. Boo, M.D. Hammig, M. Jeong, Compact lightweight imager of both gamma rays and neutrons based on a pixelated stilbene scintillator coupled to a silicon photomultiplier array, Sci Rep. 11 (2021). <https://doi.org/10.1038/s41598-021-83530-4>.
- [78] C. Lynde, C. Frangville, R. Woo, V. Schoepff, G.H.V. Bertrand, J.M. Bourbotte, M. Hamel, J. Dumazert, F. Carrel, On the Use of Pixelated Plastic Scintillator and Silicon Photomultipliers Array for Coded Aperture Gamma-Neutron Imaging, IEEE Trans Nucl Sci. 69 (2022) 731–737. <https://doi.org/10.1109/TNS.2022.3140601>.
- [79] R.L. Bramblett, R.I. Ewing, T.W. Bonner, A new type of neutron spectrometer, Nuclear Instruments and Methods. 9 (1960) 1–12. [https://doi.org/10.1016/0029-554X\(60\)90043-4](https://doi.org/10.1016/0029-554X(60)90043-4).
- [80] C. E. Teeter, J. A. Lecky, J. H. Martens, Catalog of nuclear reactor concept, Argonne, Illinois, 1966.
- [81] J.C. Liu, NEUTRON SPECTRAL MEASUREMENTS AT ORNL, Radiat Prot Dosimetry. 30 (1990) 169–178.
- [82] K. Verghese, J.R. Bohannon, A.D. Kowalczyk, RESPONSE OF BF₃ COUNTERS TO NEUTRONS IN MODERATE GAMMA FIELDS, 1969.

- [83] M. Mourgues, Proceedings of a Symposium on Neutron Monitoring for Radiation Protection Purposes, Proceedings of a Symposium on Neutron Monitoring for Radiation Protection Purposes. Vol. 2 (1975) 907.
- [84] "M.Bricka", "et al," Proceedings of a Symposium on Neutron Monitoring for Radiation Protection Purposes, Proceedings of a Symposium on Neutron Monitoring for Radiation Protection Purposes. (1972) 279.
- [85] A.V. Alevra, M. Kosack, J.B. Hunt, D.J. Thomas, H. Schraube, Experimental determination of the response of four Bonner sphere sets to monoenergetic neutrons, Radiat Prot Dosimetry. 23 (1988) 293–296.
- [86] D. Mazed, M. Baaliouamer, A. Tahri, Développement et technologie des compteurs proportionnels à hélium-3, in: 3ème Conférence Magrébine d'Automatique, d'Electrotechnique et d'Electronique Industrielle 8 - 9 Décembre 1998, Béjaïa , Algérie., 1998.
- [87] D.J. Thomas, A. v. Alevra, Bonner sphere spectrometers—a critical review, Nucl Instrum Methods Phys Res A. 476 (2002) 12–20. [https://doi.org/10.1016/S0168-9002\(01\)01379-1](https://doi.org/10.1016/S0168-9002(01)01379-1).
- [88] A. Mitaroff, Design, Calibration and Tests of an Extended-Range Bonner Sphere Spectrometer, Thesis, 2001. <https://cds.cern.ch/record/573078>.
- [89] P. Goldhagen, M. Reginatto, T. Kniss, J.W. Wilson, R.C. Singleterry, I.W. Jones, Measurement of the energy spectrum of cosmic-ray induced neutrons aboard an ER-2 high-altitude airplane, Nucl Instrum Methods Phys Res A. 476 (2002) 42–51. [https://doi.org/10.1016/S0168-9002\(01\)01386-9](https://doi.org/10.1016/S0168-9002(01)01386-9).
- [90] V.P. Kryuchkov, G.I. Semenova, Neutron responses for sphere spectrometer (IFVE-87-191), Serpukhov, 1987.
- [91] V. Mares, H. Schraube, High energy neutron spectrometry with Bonner spheres, in: IRPA Regional Symposium Radiation Protection in Neighbouring Countries of Central Europe, Prague. 8-12 September , 1998. https://inis.iaea.org/search/search.aspx?orig_q=RN:30031609.
- [92] M.S. Gordon, P. Goldhagen, K.P. Rodbell, T.H. Zabel, H.H.K. Tang, J.M. Clem, P. Bailey, Measurement of the flux and energy spectrum of cosmic-ray induced neutrons on the ground, in: IEEE Trans Nucl Sci, 2004: pp. 3427–3434. <https://doi.org/10.1109/TNS.2004.839134>.
- [93] B. Wiegel, A. V. Alevra, NEMUS-the PTB Neutron Multisphere Spectrometer: Bonner spheres and more, Nuclear Instruments and Methods in Physics Research A. 476 (2002) 36–41. [https://doi.org/10.1016/S0168-9002\(01\)01385-7](https://doi.org/10.1016/S0168-9002(01)01385-7).
- [94] S. Serre, Définition par Modélisation, Optimisation et Caractérisation d'un Système de Spectrométrie de Neutron par Sphères de Bonner Etendu au Domaine des Hautes Energies, 2011. <https://tel.archives-ouvertes.fr/tel-00630202>.
- [95] R.M. Howell, M.S. Ferenci, N.E. Hertel, G.D. Fullerton, T. Fox, L.W. Davis, Measurements of secondary neutron dose from 15 MV and 18 MV IMRT, Radiat Prot Dosimetry. 115 (2005) 508–512. <https://doi.org/10.1093/rpd/nci041>.
- [96] R. 'Barquero, R. 'Mendez, H. 'Vega-Carrillo, M. 'Iñiguez, T. 'Edwards, Neutron spectra and dosimetric features around an 18 mv linac accelerator, Health Phys. (2005) 48–58.

- [97] F. Fernández, T. Bouassoule, K. Amgarou, C. Domingo, M.J. Garcia, V. Lacoste, V. v. Gressier, H.H. Muller, Monte Carlo calculations and validation of a gold foil-based Bonner sphere system, *Radiat Prot Dosimetry*. 126 (2007) 366–370. <https://doi.org/10.1093/rpd/ncm076>.
- [98] A. Esposito, R. Bedogni, L. Lembo, M. Morelli, Determination of the neutron spectra around an 18 MV medical LINAC with a passive Bonner sphere spectrometer based on gold foils and TLD pairs, *Radiat Meas*. 43 (2008) 1038–1043. <https://doi.org/10.1016/j.radmeas.2007.10.035>.
- [99] R. Bedogni, P. Ferrari, G. Gualdrini, A. Esposito, Design and experimental validation of a Bonner Sphere Spectrometer based on Dysprosium activation foils, in: *Radiat Meas*, 2010: pp. 1201–1204. <https://doi.org/10.1016/j.radmeas.2010.04.005>.
- [100] V. Gressier, L. Van Ryckeghem, B. Asselineau, R. Babut, J.F. Guerre-Chaley, V. Lacoste, L. Lebreton, A. Martin, H. Muller, G. Pelcot, J.L. Pochat, Recent developments in neutron metrology at the Institute for Radiological Protection and Nuclear Safety (IRSN) (CCRI(III)/05-18), 2005. <https://www.bipm.org/documents/20126/48202692/working-document-ID-3401/247be5de-3194-6d51-7098-ef54300ae40d>.
- [101] A. Cheminet, V. Lacoste, V. Gressier, G. Hubert, A. Martin, M. Pépino, Characterization of the IRSN neutron multisphere spectrometer (HERMEIS) at European standard calibration fields, *Journal of Instrumentation*. 7 (2012). <https://doi.org/10.1088/1748-0221/7/04/C04007>.
- [102] M. Ben Mosbah, Spectrométrie des neutrons : étude de la réponse d'un ensemble de compteurs proportionnels, Thèse de doctorat, Université de Franche-Comté, Ecole doctorale Louis Pasteur, 2007.
- [103] R.H. Johnson, D.T. Ingersoll, B.W. Wehring, J.J. Dorning, Ne-213 Neutron spectrometry system for measurements from 1.0 to 20 MeV, *NUCL..F,XR INSTRUMENTS AND METIIODS* 145. (1997) 337–346.
- [104] V. V. Verbinski, W.R. Burrus, T.A. Love, W. Zobel, N.W. Hill, Calibration of an organic scintillator for neutron spectrometry, *NUCLEAR INSTRUMENTS AND METHODS* 65 (. (1968) 8–25.
- [105] R.H. Johnson, B.W. Wehring, NE-213 scintillation neutron spectrometer-The Forist unfolding code (ORNL/RSIC--40), in: Trubey, D.K. (Comp.); Oak Ridge National Lab., Tenn. (USA); p. 33-39; Oct 1976; Seminar on Radiation Energy Spectra Unfolding; Oak Ridge, Tennessee, United States of America (USA); 12 Apr , United States, 1976.
- [106] D.F. Shook, C.R. Pierce, Comparison of neutron spectra measured with three sizes of organic liquid scintillators using differentiation analysis (NASA-TM-X-2646), 1972.
- [107] L. Green, J.A. Mitchell, N.M. Steen, Californium-252 fission neutron spectrum from 0.5 to 13 MeV, *Nuclear Science and Engineering*. 50 (1973) 257–272. <https://doi.org/10.13182/NSE73-A28979>.
- [108] B. Pehlivanovic, S. Avdic, P. Marinkovic, S.A. Pozzi, M. Flaska, Comparison of unfolding approaches for monoenergetic and continuous fast-neutron energy spectra, *Radiat Meas*. 49 (2013) 109–114. <https://doi.org/10.1016/j.radmeas.2012.12.008>.
- [109] Y.H. Chen, X.M. Chen, J.R. Lei, L. An, X.D. Zhang, J.X. Shao, P. Zheng, X.H. Wang, Unfolding the fast neutron spectra of a BC501A liquid scintillation detector using GRAVEL method, *Sci China Phys Mech Astron*. (2013). <https://doi.org/10.1007/s11433-014-5553-7>.

- [110] G. Dietze, H. Klein, NRESP4 and NEFF4-Monte Carlo Codes for the Calculation of Neutron Response Functions and Detection Efficiencies for NE213 Scintillation Detectors (PTB-ND-22), 1982.
- [111] M.: T.M.Inc. (2023) Natick, MATLAB R2018a, (1984). <https://www.mathworks.com>.
- [112] A. Sharghi Ido, M.R. Bonyadi, G.R. Etaati, M. Shahriari, Unfolding the neutron spectrum of a NE213 scintillator using artificial neural networks, *Applied Radiation and Isotopes* 67. (2009) 1912–1918. <https://doi.org/10.1016/j.apradiso.2009.05.020>.
- [113] H.R. Vega-Carrillo, V. Martín Hernández-Dávila, E. Manzanares-Acuña, G.A.M. Sánchez, M.P.I. De La Torre, R. Barquero, F. Palacios, R.M. Villafañe, T.A. Arteaga, J.M.O. Rodriguez, Neutron spectrometry using artificial neural networks, *Radiat Meas.* 41 (2006) 425–431. <https://doi.org/10.1016/j.radmeas.2005.10.003>.
- [114] H. Zhu, Y. Altmann, A.D.F.S. McLaughlin, S. Pozzi, A. Hero, A Hierarchical Bayesian Approach to Neutron Spectrum Unfolding with Organic Scintillators, *IEEE Transactions on Nuclear Science.* 66 (2019) 2265–2274. <https://doi.org/10.1109/TNS.2019.2941317>.
- [115] P.C. Hansen, The L-curve and its use in the numerical treatment of inverse problems, in: *Computational Inverse Problems in Electrocardiology*, WIT Press, 2001: pp. 119–142.
- [116] M.A.T. Figueiredo, J.M. Bioucas-Dias, Restoration of Poissonian Images Using Alternating Direction Optimization, (2010). <https://doi.org/10.1109/TIP.2010.2053941>.
- [117] J.B. Birks, M. Moszynski, The theory and practice of scintillation counting, *International Series of Monographs in Electronics and Instrumentation*, 1964.
- [118] C. Potiriadis, I. Kazas, C. Papadimitropoulos, C.P. Lambropoulos, Miniature neutron spectrometer for space, in: *Journal of Instrumentation* 14 C11029, Institute of Physics Publishing, 2019. <https://doi.org/10.1088/1748-0221/14/11/C11029>.
- [119] S. Nyibule, E. Henry, W.U. Schröder, J. Töke, L. Acosta, L. Auditore, G. Cardella, E. de Filippo, L. Francalanza, S. Giani, T. Minniti, E. Morgana, E. v. Pagano, S. Pirrone, G. Politi, L. Quattrocchi, F. Rizzo, P. Rusotto, A. Trifirò, M. Trimarchi, Radioluminescent characteristics of the EJ 299-33 plastic scintillator, *Nucl Instrum Methods Phys Res A.* 728 (2013) 36–39. <https://doi.org/10.1016/j.nima.2013.06.020>.
- [120] M. Pillon, M. Angelone, A. Krása, A.J.M. Plompen, P. Schillebeeckx, M.L. Sergi, Experimental response functions of a single-crystal diamond detector for 520.5 MeV neutrons, *Nucl Instrum Methods Phys Res A.* 640 (2011) 185–191. <https://doi.org/10.1016/j.nima.2011.03.005>.
- [121] C. Cazzaniga, M. Nocente, M. Rebai, M. Tardocchi, P. Calvani, G. Croci, L. Giacomelli, M. Girolami, E. Griesmayer, G. Grosso, M. Pillon, D.M. Trucchi, G. Gorini, A diamond based neutron spectrometer for diagnostics of deuterium-tritium fusion plasmas, *Review of Scientific Instruments.* 85 (2014). <https://doi.org/10.1063/1.4885356>.
- [122] A. Alghamdi, E. Lukosi, Diamond-based neutron scatter camera, *Nuclear Engineering and Technology.* 54 (2022) 1406–1413. <https://doi.org/10.1016/j.net.2021.09.037>.

- [123] A. Alekseyev, G. Martin, The application of natural diamond detectors to 3 MeV proton diagnostic at TORE SUPRA, *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research A*. 417 (1998) 400–404. [https://doi.org/10.1016/S0168-9002\(98\)00762-1](https://doi.org/10.1016/S0168-9002(98)00762-1).
- [124] K.K. Artemev, N.B. Rodionov, V.N. Amosov, V.A. Krasilnikov, S.A. Meschaninov, V.P. Rodionova, I. v. Kedrov, E.G. Kuzmin, S.Y. Petrov, Development of a Diamond Detector for the ITER Diamond Neutral-Particle Spectrometer, *Instruments and Experimental Techniques*. 62 (2019) 360–365. <https://doi.org/10.1134/S0020441219020167>.
- [125] G.J. Schmid, J.A. Koch, R.A. Lerche, M.J. Moran, A neutron sensor based on single crystal CVD diamond, *527* (2004) 554–561.
- [126] O. Obraztsova, L. Ottaviani, A. Klix, T. Döring, O. Palais, A. Lyoussi, Comparing the Response of a SiC and a sCVD Diamond Detectors to 14-MeV Neutron Radiation, *IEEE Trans Nucl Sci*. 65 (2018) 2380–2384. <https://doi.org/10.1109/TNS.2018.2848469>.
- [127] O. Novak, L. Sklenka, M. Pomorski, C. Lynde, Study of the parameters of the pulse shape method and experimental test of diamond based detector at the VR-1 reactor, *Ann Nucl Energy*. 142 (2020) 107431. <https://doi.org/10.1016/j.anucene.2020.107431>.
- [128] International Atomic Energy Agency, Modern Neutron Detection, in: IAEA-TECDOC-1935, Vienna, 2020. https://www-pub.iaea.org/MTCD/Publications/PDF/TE-1935_web.pdf.

Chapitre II. La spectrométrie neutronique appliquée sur des données simulées

Ce chapitre sera dédié à la démonstration, à l'aide de simulations Monte Carlo, de la faisabilité de la spectrométrie neutronique par déconvolution avec un détecteur de type scintillateur plastique. Nous appliquons trois algorithmes de déconvolution différents, MAXED (*Maximum Entropy Deconvolution*), GRAVEL et MLEM (*Maximum Likelihood Expectation Maximization*), sur des données simulées provenant d'un monobloc de scintillateur plastique. Ensuite, nous procédons à une comparaison de leurs performances respectives afin d'évaluer leur capacité à reproduire le spectre en énergie de deux types de sources neutroniques ^{252}Cf et AmBe.

II.1. Présentation de la méthode de spectrométrie neutronique par déconvolution

II.1.1. Présentation du problème inverse de la spectrométrie neutronique

Le problème inverse de la déconvolution en spectrométrie neutronique permet de déterminer le spectre en énergie des neutrons incidents avec un nombre n d'intervalles à partir d'un spectre de hauteur en impulsion mesuré avec un nombre de canaux m , par l'intermédiaire d'une fonction de réponse, qui a n réponses correspondant au nombre d'énergies des neutrons incidents. Nous représentons ce problème par la forme discrétisée de l'équation de Fredholm [1] :

$$N_k = \sum_{i=1}^n R_{ki} \cdot f_i + \varepsilon_k \text{ avec } k = 1, \dots, m \text{ et } i = 1, \dots, n \quad (II-1)$$

Avec N_k : le taux comptage d'impulsions associé à un canal k et représentant le spectre mesuré, R_{ki} est la matrice $m \times n$ qui représente la fonction de réponse et dont chaque colonne représente le spectre de hauteur en impulsion pour une énergie de neutron incident i , f_i est le spectre d'énergie de la fluence de neutron, et ε_k est le terme d'erreur lié à l'estimation de N_k .

Pour garantir que le vecteur de fluence f_i est une solution valide, le comptage attendu $N_k^{(f)}$ obtenu en multipliant la matrice de réponse R_{ki} par le vecteur de fluence f_i doit être en accord avec le spectre mesuré N_k , en tenant compte des incertitudes expérimentales σ_k . La qualité et la précision de la solution par rapport aux données sont déterminées et évaluées à l'aide du paramètre statistique χ^2 présenté par (II-2). Lorsque la valeur de χ^2 est trop élevée, les performances de la déconvolution sont dégradées et le spectre calculé diffère significativement du spectre mesuré. Inversement, lorsque la valeur de χ^2 est trop faible, elle conduit à un sur-ajustement, où le spectre présente des caractéristiques non physiques, telles que la présence des fluctuations (ou des oscillations). Il est donc important de trouver une valeur intermédiaire appropriée pour χ^2 . Pour résoudre ce problème, diverses approches basées sur des méthodes bayésiennes ont été proposées dans la littérature, utilisant différentes approximations [2,3].

$$\chi^2 = \frac{1}{m} \sum_{k=1}^m \left(\frac{\varepsilon_k}{\sigma_k} \right)^2 \quad (II-2)$$

Les spectromètres neutroniques existants peuvent être classés en deux catégories : les mesures multicanaux (*multi-channel*), où $m > n$ conduisent à un problème sur-déterminé, comme dans les détecteurs à scintillation. La seconde catégorie est celle des mesures à quelques canaux (*few-channel*), où $m < n$ conduit à un problème sous-déterminé, comme dans le cas des feuilles d'activation ou du système de sphère de Bonner. Dans ce cas, l'équation (II-1) n'a pas de solution unique, il est donc généralement nécessaire d'avoir recours à des informations *a priori* pour compléter l'ensemble des contraintes imposées par les mesures. Des méthodes existantes, comme le code MAXED, tentent de résoudre ce problème en utilisant un spectre *a priori* pour résoudre les mesures sous-déterminées.

Dans les trois paragraphes suivants nous présentons les trois codes de déconvolution MAXED, GRAVEL et MLEM qui utilisent différentes approches pour résoudre le problème inverse et obtenir une estimation du spectre de fluence de neutrons à partir de mesures expérimentales.

II.1.2. Présentation du code MAXED

MAXED est codé en FORTRAN qui applique le principe de l'entropie maximale à la déconvolution des données du spectromètre neutronique multi-sphère [4]. Il a été modifié ultérieurement pour la déconvolution de données multicanaux, fournies par exemple par les spectromètres à protons de recul.

Reprenons le problème inverse de la spectrométrie neutronique qui est décrit par le système d'équations discrètes présenté dans les équations (II-3) et (II-4). X_k représente les mesures, R_{ki} est une matrice $m \times n$ qui représente la fonction de réponse, σ_k est l'incertitude liée aux données mesurées. " Ω " représente le nombre de détecteurs dans le cas de données «*few_channel*» (spectromètre par sphère de Bonner) dans lequel le nombre de canaux dans le spectre mesuré est égal au nombre de détecteurs, et le nombre de canaux d'énergies pour le spectre mesuré pour des données «*multi-channel*» (spectromètre à protons de recul). L'équation (II-4) est une contrainte pour les erreurs inconnues (ε_k) en supposant que ces dernières suivent une loi normale avec une moyenne nulle et une variance σ_k^2 .

$$X_k = \sum_{i=1}^N R_{ki} \cdot f_i + \varepsilon_k \text{ avec } k = 1, \dots, M \text{ et } i = 1, \dots, N \quad (II-3)$$

$$\sum_k \frac{\varepsilon_k^2}{\sigma_k^2} = \Omega \quad (II-4)$$

En revanche, comme mentionné dans le paragraphe précédent, dans le cas d'un problème sous-déterminé, ce système d'équations n'a pas de solution unique et pour cette raison MAXED propose d'introduire un spectre d'entrée qui contient une information *a priori*, afin d'orienter l'étape de reconstruction parmi l'ensemble des spectres solutions. La méthode d'entropie maximale permet à partir d'une distribution de probabilité fournie par l'utilisateur (le spectre *a priori*) d'obtenir une

nouvelle distribution de probabilité (le spectre qui résulte de la déconvolution), en prenant en compte les informations fournies par notre mesure.

Cette méthode modifie le spectre *a priori*, afin de le rendre compatible avec les données expérimentales mais en restant le plus proche possible du spectre *a priori*. Cette approche peut se traduire par la maximisation de la formule d'entropie croisée S_{EC} présentée dans l'équation (II-5), avec $p(x)$ une distribution de probabilité préalable et $q(x)$ une autre distribution de probabilité. Autrement dit, $|S_{EC}|$ est le taux d'informations pour changer le $p(x)$ en $q(x)$ et, parmi tous les spectres qui s'adaptent aux données, la méthode d'entropie maximale sélectionne celui permettant de minimiser la valeur $|S_{EC}|$, par conséquent celui qui est le plus proche du spectre *a priori*.

$$S_{EC} = - \int \left\{ q(x) \ln \left(\frac{q(x)}{p(x)} \right) \right\} dx \quad (II-5)$$

En considérant la déconvolution par le principe d'entropie maximale utilisé par MAXED, le spectre solution final f_i est celui qui maximise l'entropie S décrit par l'équation (II-6) (une forme généralisée de l'équation (II-5)) avec f_i^{DEF} le spectre par défaut (ou spectre d'entrée).

$$S = - \sum \left\{ f_i \ln \left(\frac{f_i}{f_i^{DEF}} \right) + f_i^{DEF} - f_i \right\} \quad (II-6)$$

La maximisation de S avec les contraintes données par les équations (II-3) et (II-4) est équivalente à la maximisation de la fonction $Z(\lambda_k)$ (équation (II-7)) en fonction d'un ensemble des M paramètres λ_k .

$$Z = - \sum f_i^{DEF} \exp \left\{ - \sum \lambda_k R_{ki} \right\} - \left(\Omega \sum (\lambda_k \sigma_k)^2 \right)^{1/2} - \sum N_k \lambda_k \quad (II-7)$$

L'algorithme de maximum d'entropie mène à une liste de paramètres $\{\lambda_k\}$ satisfaisant les équations (II-8) et (II-9). Ces deux équations décrivent le spectre solution et les incertitudes associées.

$$f_i = f_i^{DEF} \exp \left\{ - \sum_k \lambda_k R_{ki} \right\} \quad (II-8)$$

$$\varepsilon_k = \frac{\lambda_k \sigma_k^2}{2} \left(\frac{4 \Omega}{\sum_j (\lambda_j \sigma_j)^2} \right)^{1/2} \quad (II-9)$$

Pour trouver les valeurs de λ_k qui maximisent Z , un algorithme de recuit simulé pour le cas des mesures à quelques canaux (*few-channel*) [5,6] et un algorithme basé sur la méthode du gradient conjugué pour le cas des mesures à multi-canaux (*multi-channel*) sont utilisés [7].

II.1.3. Présentation du code GRAVEL

GRAVEL [8] est basé sur une légère modification de l'algorithme SAND-II. Il utilise la méthode des moindres carrés non linéaire et inclut dans l'algorithme la condition de fluence non-négative. L'analyse mathématique nécessite un spectre initial comme spectre d'entrée qui est ensuite modifié par des ajustements itératifs afin d'obtenir un ajustement approprié entre spectres mesurés et spectres calculés. En partant du système d'équations décrit par l'équation (II-10), où z_i représente le comptage dans le canal i du spectre de hauteur en impulsion calculé, R_{iv} est la matrice de réponse, et ϕ_v est le spectre en fluence neutronique. Le spectre solution et sa matrice d'incertitude peuvent être calculés en utilisant la méthode des moindres carrés et en minimisant χ^2 décrit par l'équation (II-11), où z_{0i} est le spectre de hauteur en impulsion mesuré et ρ_i est l'écart-type relatif à z_{0i} , avec $\rho_i = \frac{\sigma_{0i}}{z_{0i}}$.

$$z_i = \sum_v R_{iv} e^{(\ln \phi_v)} \quad i = 1, \dots, m, \quad v = 1, \dots, n. \quad (II-10)$$

$$\chi^2 = \frac{\sum_i (\ln z_{0i} - \ln z_i)^2}{\rho_i^2} \quad (II-11)$$

Pour minimiser χ^2 , la solution de l'algorithme GRAVEL est déterminée par une méthode spéciale de gradient [8], qui débute le processus itératif avec un spectre $\phi_v^{(1)}$ supposé déjà connu et qui est supposé proche de la solution exacte. $\ln z_i$ peut être développé suivant la série de Taylor décrite dans l'équation (II-12) :

$$\ln z_i = \ln z_i^{(1)} + \sum_v w_{iv}^{(1)} \cdot (\ln \phi_v - \ln \phi_v^{(1)}) \quad (II-12)$$

avec

$$z_i^{(1)} = \sum_v R_{iv} \cdot e^{\ln \phi_v^{(1)}} \quad (II-13)$$

et les poids $w_{iv}^{(1)}$ sont définis par l'équation (II-14) :

$$w_{iv}^{(1)} = \frac{R_{iv} e^{\ln \phi_v^{(1)}}}{z_i^{(1)}} \quad (II-14)$$

Les équations pour $\chi^2 \rightarrow \min$ se traduisent désormais par l'équation (II-15) :

$$\sum_i (\ln z_{0i} - \ln z_i^{(1)}) \cdot \frac{w_{iv}^{(1)}}{\rho_i^2} = \sum_\mu \sum_i \frac{w_{iv}^{(1)} w_{i\mu}^{(1)}}{\rho_i^2} \cdot (\ln \phi_\mu - \ln \phi_\mu^{(1)}) \quad (II-15)$$

La solution à la $(k+1)^{\text{ème}}$ itération est obtenue à partir de la solution résultante de l'itération k , comme décrit par l'équation (II-16) :

$$\ln \phi_{\mu}^{(k+1)} - \ln \phi_{\mu}^{(k)} = \lambda_{\mu}^{(k)} \sum_i (\ln z_{0i} - \ln z_i^{(k)}) \cdot \frac{w_{i\mu}^{(k)}}{\rho_i^2} \quad (II-16)$$

Avec

$$\lambda_{\mu}^{(k)} = \left(\sum_i \frac{w_{i\mu}^{(k)}}{\rho_i^2} \right)^{-1} \quad (II-17)$$

En partant de l'équation (II-16), et en développant le membre de droite autour de $z_i^k = z_{0i} + \delta_i^k$, la solution obtenue par GRAVEL peut être mise sous la forme de l'équation (II-18) :

$$\phi_{\mu}^{(k+1)} = \phi_{\mu}^{(k)} \frac{\sum_i \frac{z_{0i}}{z_i^{(k)}} \cdot \frac{R_{i\mu}}{z_{0i}} \cdot \frac{1}{\rho^2}}{\sum_i \frac{R_{i\mu}}{z_{0i}} \cdot \frac{1}{\rho^2}} \quad (II-18)$$

MAXED et GRAVEL sont deux codes contenus dans le package UMG (*Unfolding with MAXED and GRAVEL*), développés par le PTB (*Physikalisch-Technische Bundesanstalt*) et distribués par le NEA (*Nuclear Energy Agency*) Data Bank.

II.1.4. Présentation du code MLEM

L'algorithme MLEM [9,10] est une méthode probabiliste bayésienne qui permet de résoudre le problème inverse en maximisant la fonction de vraisemblance de la matrice a décrite par l'équation (II-19). Ainsi, a est la solution la plus probable qui produit les données mesurées. L'algorithme MLEM est largement utilisé dans la reconstruction d'images de tomographie par émission de positons (TEP) [9], et nous allons ici l'appliquer à la spectrométrie neutronique.

Reprenons le système d'équation du problème inverse de la spectrométrie neutronique :

$$c_i = \sum_j \varepsilon_{ij} a_j \text{ avec } i = 1, \dots, P \text{ et } j = 1, \dots, V. \quad (II-19)$$

Avec :

- c_i , le comptage mesuré dans le canal i du spectre mesuré ;
- ε_{ij} , la probabilité de déposer une énergie dans le canal i par une source d'énergie appartenant à l'intervalle j ;
- a_j , le comptage dans l'intervalle j du spectre solution.

Le théorème de Bayes énonce la relation entre les probabilités conditionnelles suivant l'équation (II-20) tel que $P(a/c)$ est la probabilité d'avoir a sachant c , $P(c/a)$ est la probabilité d'avoir

c sachant a , $P(a)$ est la probabilité d'avoir a dans les V intervalles et $P(c)$ est la probabilité d'avoir c dans les P canaux.

$$P(a/c) = \frac{P(c/a) \cdot P(a)}{P(c)} \quad (II-20)$$

Par définition, la fonction de vraisemblance peut être décrite de la manière suivante :

$$L(a|c) = \prod_{i=1}^P \prod_{j=1}^V f(c_i|a_j) = f(c|a) \quad (II-21)$$

Or, dans le cas où c est une variable aléatoire discrète, comme c'est le cas lorsqu'elle exprime des valeurs de comptage : $f(c|a) = P(c|a)$. On en déduit $L(a|c) = P(c|a)$.

D'après la référence [11], il est possible de maximiser la fonction de vraisemblance $L(a|c)$ en maximisant $L(a|x)$. En considérant que x sont des variables complètes cachées, nous n'observons pas directement X , nous observons plutôt une réalisation y de la variable aléatoire $Y = T(X)$ pour une fonction T quelconque. Nous faisons une supposition sur les données complètes X et nous déterminons Y qui permet de maximiser la log-vraisemblance (attendue) de X . Une fois obtenue une estimation pour Y , nous pouvons faire une meilleure estimation pour les données complètes X , et ainsi poursuivre le processus itératif.

Le comptage c_i dans le canal i du spectre peut être écrit suivant l'équation (II-22). x_{ij} correspond au comptage dans le canal i issu d'une source d'énergie appartenant à l'intervalle j .

$$c_i = \sum_{j=1}^V x_{ij} \quad (II-22)$$

L'équation à résoudre est donc la suivante :

$$\hat{a}_{ML} = \operatorname{argmax} L(a|x) \quad (II-23)$$

La vraisemblance $L(a|x)$ s'écrit :

$$L(a|x) = \prod_{i=1}^P \prod_{j=1}^V p(x_{ij}|a_j) \quad (II-24)$$

En supposant que les données observées suivent une distribution de Poisson, la probabilité d'observer la matrice de comptage x_{ij} sachant a_j est décrite par l'équation suivante :

$$p(x_{ij}|a_j) = e^{-\varepsilon_{ij}a_j} \frac{\varepsilon_{ij}a_j^{x_{ij}}}{x_{ij}!} \quad (II-25)$$

En remplaçant $p(x_{ij}|a_j)$ dans l'équation (II-24) de la fonction de vraisemblance, et en calculant son logarithme népérien, nous obtenons la fonction de log-vraisemblance :

$$l(a|x) = \ln(L(a|x)) = \sum_i \sum_j x_{ij} \ln(\varepsilon_{ij} a_j) - \varepsilon_{ij} a_j - \ln(x_{ij}!) \quad (II-26)$$

Afin de maximiser $l(a|x)$, l'algorithme MLEM consiste en une succession d'étapes d'espérance et de maximisation :

- Au cours de l'étape d'espérance, l'espérance $\hat{x}_{ij}^{(k)}$ est calculée à l'itération k courante en utilisant les valeurs des énergies $a_j^{(k)}$ obtenues lors de l'étape de maximisation de l'itération précédente. $\hat{x}_{ij}^{(k)}$ peut-être écrite : $\hat{x}_{ij}^{(k)} = p_{ij}^{(k)} y_i$, avec $p_{ij}^{(k)}$ une fraction d'évènement qui s'écrit sous la forme : $p_{ij}^{(k)} = \frac{\varepsilon_{ij} a_j^{(k)}}{\sum_{t=1}^V \varepsilon_{it} a_t}$. Enfin en remplaçant $p_{ij}^{(k)}$ par son expression, nous obtenons $\hat{x}_{ij}^{(k)} = \frac{a_j^{(k)} \varepsilon_{ij}}{\sum_{t=1}^V \varepsilon_{it} a_t} y_i$.
- Au cours de l'étape de maximisation, nous dérivons $l(a|x)$ en remplaçant l'espérance $x_{ij}^{(k)}$ par sa dernière expression pour obtenir au final la formule suivante :

$$a_j^{(k+1)} = \frac{a_j^{(k)} \sum_{i=1}^P y_i \frac{\varepsilon_{ij}}{\sum_{t=1}^V \varepsilon_{it} a_t}}{\sum_{i=1}^P \varepsilon_{ij}} \quad (II-27)$$

Pour initialiser l'algorithme, il est d'usage [10] d'utiliser une valeur moyenne calculée comme suit :

$$a_j^{(0)} = \frac{\sum_{i=1}^P y_i}{\sum_{i=1}^P \sum_{j=1}^V \varepsilon_{ij}} \quad (II-28)$$

II.2. Simulation de la spectrométrie neutronique à l'aide d'un monobloc de scintillateur plastique

II.2.1. Présentation du détecteur formé de scintillateur plastique

Pour réaliser la spectrométrie neutronique, nous utilisons un détecteur de type scintillateur plastique triple discriminant (gamma/ neutrons rapides/ neutrons thermiques) présenté sur la Figure II-1. Ce scintillateur, fabriqué au CEA List, est composé de 73,15% de monomère de styrène, 8,13% d'acide méthacrylique, 16,26% de fluorophore primaire PPO, 0,024% de 1,4-bis(5-phényloxazol-2-yl) benzène (POPOP) et 2,44% de Li α -valerate (Li α val). Il a un volume actif de 1 cm²×2 cm (surface×hauteur) et sa formulation chimique est montrée dans le Tableau II-1. Ce scintillateur plastique fait maison présente de nombreux avantages, qui vont au-delà des considérations pratiques et financières. Tout d'abord, il permet une connaissance précise de la composition chimique. En plus, il peut être façonné en différentes formes et dimensions selon les besoins. En outre, il peut être créé en version pixellisée, ce

qui permet d'identifier la localisation précise de l'interaction des neutrons dans le scintillateur. Enfin, il peut être modifié chimiquement, ce qui permet une double discrimination (rayonnements gamma/neutrons rapides) ou une triple discrimination (rayonnements gamma/neutrons rapides/neutrons thermiques). Une description détaillée de ce scintillateur fait maison peut être trouvée dans la référence [12].

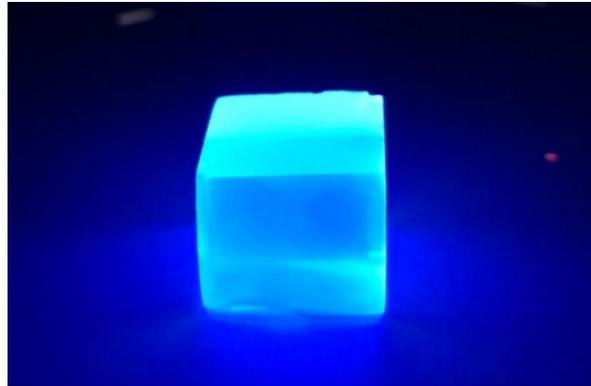


Figure II-1 Photographie du scintillateur plastique utilisé.

Atomes	C	H	O	N	Li
Fractions massiques (%)	89,02	7,21	2,53	1,06	0,053

Tableau II-1 Composition chimique du scintillateur plastique triple discriminant développé par le CEA List.

II.2.2. Les interactions du neutron dans le scintillateur organique

Les scintillateurs organiques sont composés essentiellement d'hydrogène et de carbone. L'interaction principale des neutrons dans le scintillateur est la réaction de diffusion élastique sur les noyaux d'hydrogène, décrit dans le paragraphe I.2.2.1 du chapitre 1. Durant cette réaction, selon l'angle de diffusion, le neutron transfère une partie ou la totalité de son énergie au noyau d'hydrogène (ou proton). L'énergie de proton recul E_p est liée directement à l'énergie du neutron incident E_n par l'équation (II-29), avec θ l'angle de diffusion du proton de recul.

$$E_p = \cos^2(\theta)E_n \quad (II-29)$$

Barshall et Kanner ont montré en 1940 [13], que pour les neutrons d'énergie inférieure à 10 MeV, la diffusion est isotrope, et que tous les angles de diffusion sont équiprobables. Pour cette raison, la distribution en énergie des protons de recul est uniforme de $E_p=0$ à $E_p=E_n$, comme le montre la Figure II-2. Pour les neutrons d'énergie supérieure à 10 MeV, la diffusion élastique devient non-isotrope ce qui mène à la déformation de la distribution en énergie des protons de recul [14].

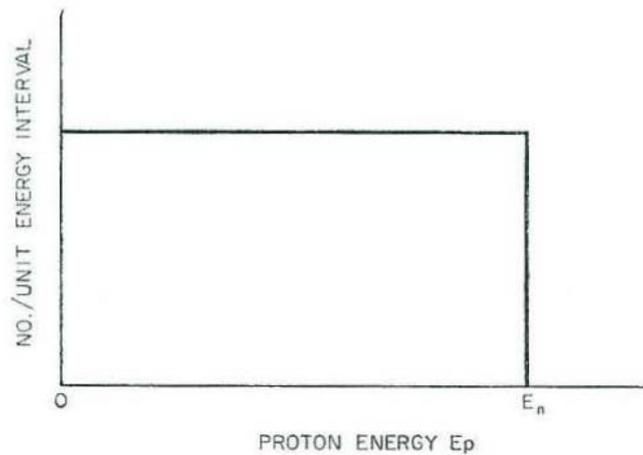


Figure II-2 Le spectre en énergie des protons de recul produit par des neutrons mono-énergétiques dans un milieu hydrogéné [14].

Pour les neutrons incidents sur un petit scintillateur organique (quelques cm³), la diffusion élastique simple est le processus le plus probable. Si la taille du scintillateur augmente, des diffusions élastiques doubles ou multiples peuvent se produire à l'intérieur du scintillateur. Au cours de cette réaction, un même neutron incident peut subir deux ou trois diffusions consécutives sur différents noyaux d'hydrogène. La Figure II-3 (à gauche) montre la déformation des spectres simulés due aux diffusions doubles sur l'hydrogène et le carbone. La Figure II-3 (à droite) montre un spectre mesuré pour le même scintillateur (stilbène) et énergie de neutrons (2,6 MeV), utilisés pour faire les calculs de la Figure II-3 (à gauche).

Lorsque l'énergie des neutrons incidents dépasse 8 ou 9 MeV, deux réactions additionnelles peuvent se produire sur le noyau de carbone : $^{12}\text{C}(n, \alpha)^9\text{Be}$ et $^{12}\text{C}(n, n')^3\alpha$. Dans la réaction $^{12}\text{C}(n, \alpha)^9\text{Be}$, le neutron est capturé par le noyau de carbone, qui émet ensuite une particule alpha (un noyau d'hélium) et un noyau de béryllium. Dans la réaction $^{12}\text{C}(n, n')^3\alpha$, le neutron est diffusé par le noyau de carbone, ce qui lui fait perdre une partie de son énergie, et lui permet de potentiellement faire une deuxième diffusion avec un noyau d'hydrogène. La Figure II-4 (à gauche) montre la réponse calculée d'un scintillateur NE-213 à des neutrons d'énergie 14,3 MeV, où les effets de ces deux réactions $\text{C}^{12}(n, \alpha)\text{Be}^9$ et $\text{C}^{12}(n, n')^3\alpha$ apparaissent dans le spectre sous forme de pics aux énergies 7,01 et 8,59 MeV, respectivement.

Par ailleurs, il existe plusieurs autres types d'interactions avec le carbone telles que la réaction de diffusion élastique $^{12}\text{C}(n, n)^{12}\text{C}$, et inélastique : $^{12}\text{C}(n, n')^{12}\text{C}$, $^{12}\text{C}(n, d)^9\text{Be}$, $^{12}\text{C}(n, p)^9\text{Be}$. La Figure II-4 (à droite) montre les sections efficaces des différents réactions d'interaction des neutrons avec le ^{12}C , en fonction de l'énergie des neutrons.

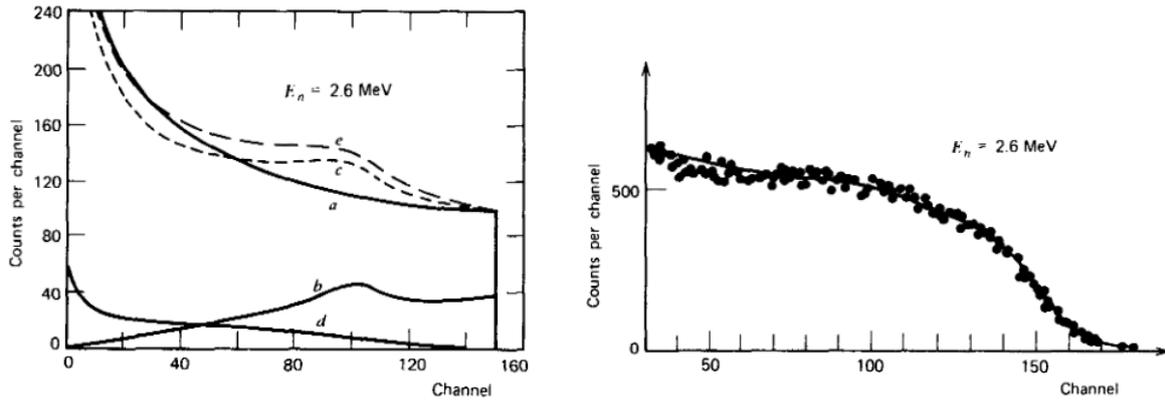


Figure II-3 À gauche : La fonction de réponse calculée pour un scintillateur organique cylindrique de type stilbène à des neutrons d'énergie 2,6 MeV. Les différents composants de cette réponse sont : (a) la diffusion élastique simple sur l'hydrogène, (b) la diffusion élastique double sur l'hydrogène, (c) la somme de (a) et (b), (d) les protons de recul induits par des neutrons diffusés par le carbone, (e) la somme de (c) et (d). À droite : le spectre en énergie mesuré pour le même scintillateur et en utilisant la même énergie de neutrons incidents (2,6 MeV) [15].

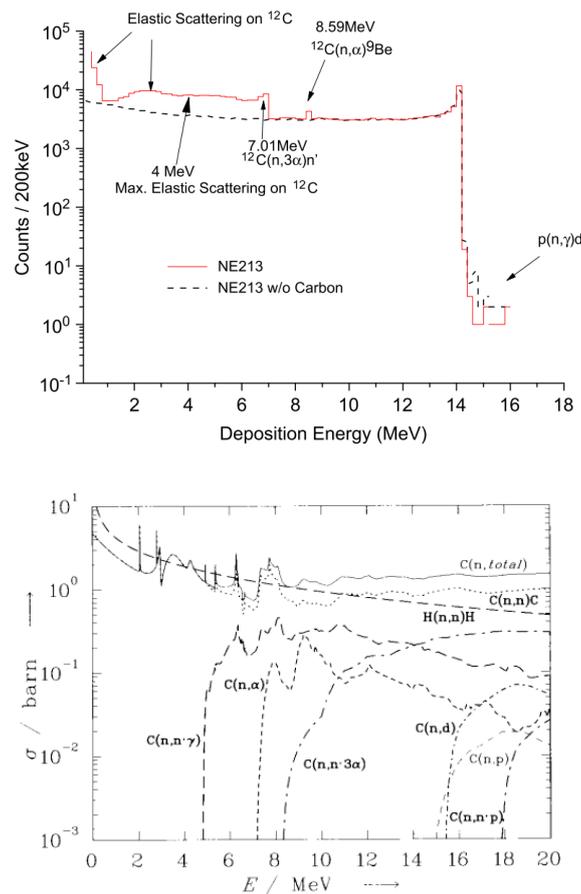


Figure II-4 En haut : spectre en énergies déposées par les particules secondaires suite à une interaction au sein du scintillateur NE-213 (forme cylindrique 6 cm×6 cm) avec des neutrons d'énergie 14,3 MeV [16]. En bas : sections efficaces de différents processus d'interaction des neutrons avec le carbone et l'hydrogène en fonction de l'énergie de neutrons [17].

D'autre part, un scintillateur plastique triple discriminant permet ainsi de détecter les neutrons thermiques d'énergie (< 1 MeV) par capture neutronique sur le ${}^6\text{Li}$ suivie de l'émission d'une particule alpha d'énergie 2,5 MeV et d'un atome de tritium (${}^3\text{H}$) d'énergie 2,73 MeV. Cette interaction ne sera pas incluse dans les simulations, car l'interaction des neutrons par capture neutronique sur le ${}^6\text{Li}$ sert seulement pour le comptage des neutrons thermiques sans avoir accès à leurs énergies.

II.2.3. Théorie du rendement lumineux des scintillateurs

Les rayonnements incidents indirectement ionisants, tels que les rayonnements gamma et les neutrons, ionisent le scintillateur en mettant en mouvement des particules secondaires ionisantes. Dans le cas d'un rayonnement gamma, la particule chargée mise en mouvement est l'électron, qui à son tour excite le milieu en favorisant l'état singulet. Un neutron incident dépose quant à lui son énergie, principalement, sous forme d'énergie cinétique de protons de recul qui excite le scintillateur en favorisant l'état triplet. Dans les deux cas, la désexcitation à l'état fondamental émet des photons dans le domaine de la lumière visible.

Dans la plupart des cas, la relation entre l'énergie déposée et la lumière émise n'est pas linéaire. Pour cette raison, nous utilisons la loi de Birks pour déterminer théoriquement cette relation qui est indispensable pour calculer la fonction de réponse du scintillateur à une particule d'un type donné et d'une énergie spécifique. D'après Birks [14], le nombre de photons produits suite à l'interaction d'une particule chargée avec un matériau scintillant dépend du pouvoir d'ionisation de la particule, ainsi que de son énergie. Cela veut dire que pour une même énergie déposée, par deux particules différentes, la quantité de lumière émise par le scintillateur est différente.

Les électrons ayant une énergie égale ou supérieure à 1 MeV produisent une faible densité d'excitation et d'ionisation ($\sim 1 \text{ MeV} \cdot \text{cm}^{-2} \cdot \text{g}^{-1}$) le long de leur trajectoire à l'intérieur du scintillateur. Or, lorsque la densité d'excitation est faible, les excitations et les ionisations moléculaires individuelles sont espacées de plusieurs distances moléculaires le long du chemin de la particule, et les interactions entre elles sont négligeables. Dans ces conditions, la réponse de scintillation qui est l'énergie émise sous forme de fluorescence L , est proportionnelle à l'énergie déposée E de la particule dans le scintillateur. Donc, pour les électrons rapides (≥ 1 MeV) :

$$L = S \times E \tag{II-30}$$

Ou bien exprimé sous forme différentielle,

$$\frac{dL}{dr} = S \times \frac{dE}{dr} \tag{II-31}$$

Où r est la portée d'un électron dans le scintillateur, S est l'efficacité absolue de scintillation. La perte d'énergie spécifique est exprimée par $\frac{dE}{dr}$, et $\frac{dL}{dr}$ est appelé la fluorescence spécifique.

Pour les particules plus lourdes, telles que les protons, les particules alpha, ou les électrons lents d'une énergie inférieure à 125 keV, la perte d'énergie spécifique $\frac{dE}{dr}$ est plus importante que pour les électrons rapides. Lorsque ces particules relativement lourdes déposent leurs énergies dans le scintillateur, les densités d'excitations et d'ionisations sont élevées, ce qui entraîne une réduction de l'efficacité de la scintillation $\frac{dL}{dE}$ en dessous de la valeur de S , un phénomène connu sous le nom de "Ionization Quenching". Ce dernier se réfère à la diminution de l'intensité de fluorescence d'un fluorophore due à un transfert d'énergie non radiatif entre la molécule fluorescente et son environnement [18]. Cela entraîne une augmentation de la valeur de L de manière non linéaire avec l'énergie E .

Birks a formulé une loi semi-empirique qui explique le comportement observé comme étant causé par l'extinction (*quenching*) résultant de la forte densité des molécules ionisées et excitées. La densité spécifique de ces molécules le long de la trajectoire de la particule est représentée par $B \times \frac{dE}{dr}$ où B est une constante. Par conséquent, si l'extinction est considérée comme étant unimoléculaire avec un paramètre d'extinction k , l'équation (II-31) se transforme en (II-32) en raison de l'effet d'extinction d'ionisation (*quenching effect*). Bien que la formule de Birks soit largement utilisée pour tous les types de scintillateurs, elle a été développée à l'origine pour les cristaux d'anthracène. La Figure II-5 montre la réponse de scintillation d'un cristal d'anthracène à plusieurs types de particules : électrons, protons et particules alpha.

$$\frac{dL}{dr} = \frac{S \frac{dE}{dr}}{1 + kB \frac{dE}{dr}} \quad (II-32)$$

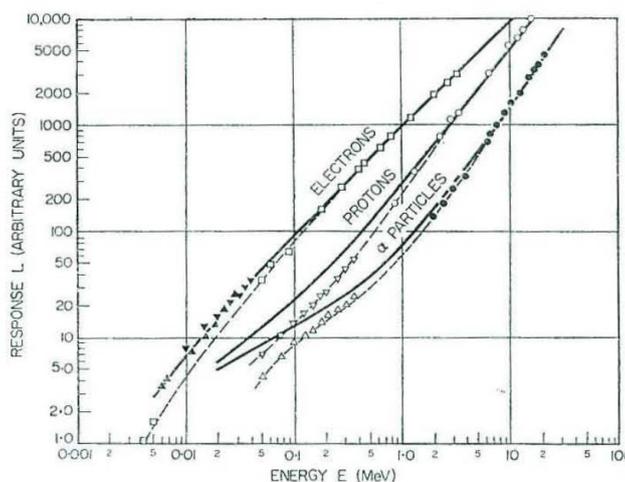


Figure II-5 Comparaison entre les réponses théoriques (les tirets) et expérimentales (les traits pleins) de scintillation d'un cristal d'anthracène aux électrons, protons et particules alpha [14].

D'autres équations ont été proposées pour décrire la relation entre ces paramètres. Ces équations ont été proposées par Chou [19] et Wright [20], afin de mieux décrire la réponse des détecteurs de particules aux rayonnements ionisants.

En 1952, Chou [19] a proposé une extension empirique de la loi de Birks, qui correspond mieux à l'émission de la lumière observée pour les scintillateurs à des énergies plus faibles. Cette loi est décrite par l'équation (II-33) avec k_B et C sont des constantes à ajuster.

$$\frac{dL}{dr} = S \frac{dE}{dr} \left[1 + k_B \left(\frac{dE}{dr} \right) + C \left(\frac{dE}{dr} \right)^2 \right]^{-1} \quad (II-33)$$

En 1953 [20], Wright a utilisé un autre mécanisme d'extinction, en étudiant l'effet de l'extinction bimoléculaire dû aux interactions entre les molécules voisines ionisées et/ou excitées. Il a dérivé l'équation (II-34) avec S un paramètre d'échelle lié à l'efficacité de scintillation absolue et α est le paramètre d'extinction.

$$\frac{dL}{dr} = S \ln \left(1 + \alpha \frac{dL}{dr} \right) \quad (II-34)$$

II.2.4. Reconstruction par simulation des spectres en énergie des sources neutroniques ^{252}Cf et AmBe

II.2.4.1. Le code de simulation MCNP6.2

Le code de calcul MCNP [21] est développé et entretenu par le *Los Alamos National Laboratory*. C'est un code de transport de particules basé sur les méthodes Monte Carlo, ces dernières mettant en œuvre le tirage de nombres aléatoires et l'utilisation des techniques probabilistes. Le code suit le parcours d'une particule, traversant une cellule donnée, de sa naissance jusqu'à sa disparition et en étudiant les particules secondaires émises. Un fichier MCNP se décompose en trois sections principales : carte des cellules, carte des surfaces et carte des données. La carte de cellule permet de décrire les différents éléments composant la géométrie du problème. La carte des surfaces permet de définir les surfaces constituant les cellules décrites dans la première section. La troisième section, carte des données, décrit notamment les caractéristiques de la source radioactive, les matériaux du problème, et le type de réponse ou de comptage désiré (*tally*).

II.2.4.2. Simulation de la réponse lumineuse du scintillateur plastique à une source neutronique ^{252}Cf

Nous utilisons le code Monte Carlo MCNP6.2 pour simuler la réponse d'un scintillateur plastique triple discriminant, de forme cubique et de volume 2 cm^3 , exposé à une source neutronique de type ^{252}Cf . Ce code simule l'interaction des neutrons avec le scintillateur pour déterminer des quantités

d'intérêt, appelées *tally*, telles que le dépôt d'énergie dans une cellule donnée ou bien l'équivalent de cette énergie déposée en lumière visible émise.

En considérant la gamme d'énergie d'intérêt allant de 500 keV (seuil expérimental présumé de détection des neutrons rapides à l'aide d'un scintillateur plastique lié à un SiPM) à 11 MeV, les interactions des neutrons dans le scintillateur sont principalement dominées par la réaction de diffusion élastique sur les noyaux d'hydrogène. En plus, la contribution à la réponse lumineuse observée due à l'énergie déposée par les noyaux de carbone diffusés, est négligeable en comparaison avec la réponse lumineuse attribuée à l'énergie déposée par les protons de recul [22]. Pour cela, lors de la simulation de la réponse lumineuse du scintillateur, nous simplifions en considérant uniquement l'interaction des neutrons par diffusion élastique sur les protons.

En utilisant le *tally* F8, nous pouvons déterminer l'énergie déposée par les protons diffusés exprimée en MeVep (équivalent protons). D'autre part, cette énergie déposée se transforme en lumière émise et sera exprimée en MeVee. Par définition, 1 MeVee (équivalent électron) correspond à la quantité de lumière produite par un électron de 1 MeV déposant son énergie dans le milieu. Donc, pour calculer le rendement lumineux de l'énergie déposée par un proton de recul, nous ajoutons au *tally* F8 l'option « *Pulse Height Light Tally* » (FT8 PHL) qui, d'après le manuel du MCNP6.2, utilise par défaut le *tally* F6. Ce dernier permet de mesurer le dépôt d'énergie moyenne dans une cellule. Le « *Pulse Height Light Tally* » (FT8 PHL) permet au *tally* F8 de se baser sur le dépôt d'énergie (ou la production de lumière) dans une ou deux régions, comme spécifié par un ou plusieurs *tally* F6. Le *tally* FT8 PHL dépend des résultats du *tally* F6 : étant donné que le *tally* F8 enregistre l'énergie à la fin de l'histoire d'une particule, alors que les énergies enregistrées par le *tally* F6 sont accumulées pour chaque interaction le long de la trajectoire d'une particule [23]. Par conséquent, le dépôt d'énergie d'un ou de plusieurs types de particules peut être combiné, converti en lumière en appliquant une fonction de réponse du détecteur (DRF-*Detector Response Function*) et affiché dans l'emplacement F8 approprié.

Depuis la sortie de la version MCNP6, le *tally* F8 a été amélioré pour permettre la spécification d'une DRF intégré pour plusieurs types de détecteurs de particules. Pour les détecteurs à scintillation, la loi de Birks est utilisée pour produire le rendement lumineux [24]. La formule utilisée est dérivée de l'équation (II-35) et représentée par l'équation (II-36).

$$\frac{dL}{dx} = \left(\frac{dL}{dE} \right) \left(\frac{dE}{dx} \right) = \frac{S}{\left(1 + k_B \frac{dE}{dx} \right)} \frac{dE}{dx} \quad (II-35)$$

Le terme de rendement lumineux par dépôt d'énergie $\frac{dL}{dE}$ de l'équation (II-35) est le DRF, tandis que le second terme $\frac{dE}{dx}$ est déjà calculé par MCNP6 en tant que pouvoir d'arrêt. Les paramètres libres dans l'équation (II-35) sont réduits à deux constantes (C_0 et C_1) pour l'implémentation dans MCNP6. C_0 est une constante de normalisation pour assurer une sortie en MeVee et C_1 (le facteur de *quenching*) peut être trouvée dans la littérature [25] pour un scintillateur donné ou ajustée à partir de données expérimentales.

$$\frac{dL}{dE} = \frac{C_0}{\left(1 + C_1 \frac{dE}{dx} \right)} \quad (II-36)$$

Les DRF implémentées dans MCNP6 sont disponibles pour différents types de détecteurs commerciaux, par exemple un détecteur à gaz (^3He), un scintillateur à cristaux inorganiques (NaI(Tl)) et un scintillateur en plastique (BC400). Malheureusement, il n'existe pas de DRF intégré pour le scintillateur plastique utilisé dans le cadre de notre étude, car il ne s'agit pas d'un scintillateur commercial. Pour cette raison, nous avons décidé d'utiliser en première approximation le DRF intégré du scintillateur plastique BC400 (qui est supposé avoir une réponse sensiblement identique à notre scintillateur) dans un premier temps, puisque notre objectif est d'appliquer le code de déconvolution sur la réponse simulée du détecteur exprimée en lumière émise (ou MeVee). L'ajustement de la réponse lumineuse expérimentale de notre scintillateur plastique fait maison sera effectué dans le chapitre 3. Le code MCNP suivant est un exemple de carte de *tally* F8 exécuté pour générer une distribution d'impulsions à partir de l'énergie déposée par les protons de recul :

F6:h 1 \$ ici le *tally* F6 qui est utilisé par l'option PHL afin de créer des impulsions, '1' est le numéro de cellule sur laquelle le *tally* F6 est appliqué.

F8:h 1

e8 0 1e⁻⁶ 1e⁻³ 1020i 12

FT8 PHL 1 6 1 BC4-1 \$ '1' pour dire qu'on utilise un seul *tally*, '6' spécifie le numéro du *tally* utilisé et le deuxième '1' permet de désigner le premier 'cell bin', BC4-1 : désigne une fonction de réponse définie par défaut dans MCNP6.2 pour le scintillateur commercial BC400.

Les nombres qui suivent le numéro de *tally*, FT et PHL, sont le numéro de *tally* F6 pour la région du détecteur, suivi des numéros d'appariement du numéro de *tally* (6 ou 16) et du numéro de *bin* du *tally*. BC4-1 est le descripteur du détecteur qui spécifie quelle fonction de réponse intégrée est appliquée. Le manuel de MCNP6.2 [21] fournit plus de détails sur le paramétrage de l'option PHL. Dans les simulations nous n'avons pas appliqué un seuil bas sur l'énergie de détection des protons et des neutrons.

La Figure II-6, présente le spectre de hauteur en impulsion simulé du scintillateur plastique lors de l'utilisation d'une source de neutrons ^{252}Cf , avec et sans l'intégration de l'option PHL. En comparant les deux courbes, nous pouvons observer l'effet d'extinction (*quenching effect*) de l'énergie déposée par les protons en les convertissant en réponse lumineuse.

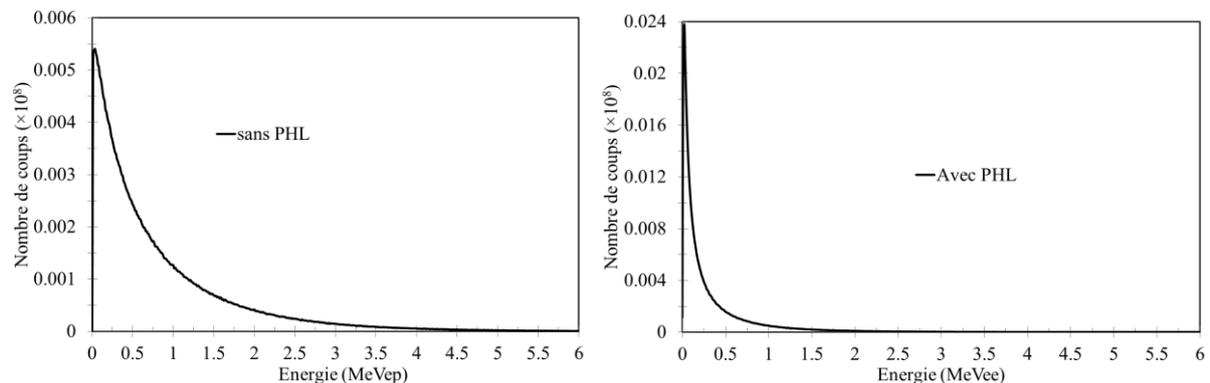


Figure II-6 À gauche : spectre en énergie de protons de recul de la source de neutrons ^{252}Cf exprimé en MeVep. À droite : spectre en énergie de protons de recul de la source de neutrons ^{252}Cf exprimé en MeVee en utilisant l'option PHL.

II.2.4.3. Simulation de la fonction de réponse du scintillateur

Le spectre de hauteur en impulsion mesuré par le scintillateur, qui est désigné par le spectre en énergie de protons de recul, n'est pas directement lié au spectre en énergie de neutrons incidents du ^{252}Cf . Ce dernier doit être déconvolué du spectre de hauteur en impulsion par l'intermédiaire d'une matrice de réponse, comme décrit dans le paragraphe II.1.1. Chaque colonne de cette matrice représente le spectre de hauteur en impulsion pour une énergie donnée de neutron incident. La matrice de réponse est simulée en utilisant le même modèle décrit dans le paragraphe II.2.4.2 et en exposant le scintillateur à des sources de neutrons mono-énergétiques. La matrice de réponse utilisée est de dimensions (1022×150). Les 150 colonnes correspondent aux 150 énergies de neutrons incidents mono-énergétiques, qui sont comprises entre 0,1 MeV et 15 MeV avec un pas de 0,1 MeV. Les 1022 lignes correspondent au nombre d'intervalles du spectre en énergie des protons de recul associés à chaque énergie de neutrons. Les spectres de protons de recul ont des énergies comprises entre 1 keVee et 12 MeVee. La Figure II-7 donnent quelques exemples de courbes de réponse simulées.

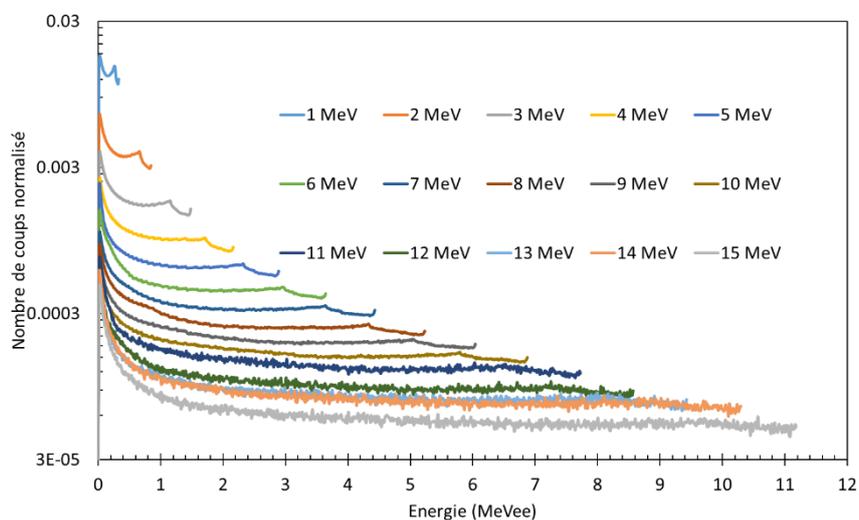


Figure II-7 Spectres en énergie de protons de recul exprimés en MeVee extraits de la fonction de réponse simulée par le code Monte Carlo MCNP6.2 pour le scintillateur plastique triple discriminant de 2 cm³. L'axe des ordonnées est présenté sur une échelle logarithmique.

II.2.4.4. Application des codes de déconvolution sur les données simulées

II.2.4.4.1. Application des codes de déconvolution pour la reconstruction du spectre ^{252}Cf simulée

Dans ce paragraphe, nous montrons les résultats de déconvolution du spectre en énergie de la source ^{252}Cf en utilisant les trois codes MAXED, GRAVEL et MLEM. Pour effectuer la déconvolution, nous injectons dans le code la fonction de réponse décrite dans le paragraphe II.2.4.3 et le spectre en énergie des protons de recul de la source ^{252}Cf , décrit dans le paragraphe II.2.4.2. Durant le processus de déconvolution du ^{252}Cf , les bornes de l'intervalle en énergie utilisées, pour le spectre de hauteur en impulsion, sont [0,001 MeVee ; 6,08 MeVee] pour MAXED et GRAVEL, et [0,001 MeVee ; 11,19 MeVee] pour MLEM. La variation des intervalles d'énergie s'explique par le fait que, pour les cas de MAXED et GRAVEL, nous devons appliquer un seuil haut en énergie à la première valeur du spectre de hauteur

en impulsion du ^{252}Cf , où le comptage des événements atteint zéro (dans notre cas, à 6,08 MeVee). En revanche, lors de l'application de l'algorithme MLEM, nous devons fixer le seuil haut en énergie à la première valeur où le comptage des événements atteint zéro pour tous les spectres de hauteur en impulsion de la fonction de réponse (dans notre cas, à 11,19 MeVee). Concernant le spectre d'entrée, nous avons utilisé un spectre plat (amplitude constante et égale à un) comme information *a priori* dans MAXED, et comme spectre initial dans GRAVEL. Les énergies de ce spectre plat sont comprises entre 100 keV et 15 MeV avec un pas de 100 keV. Pour MLEM le spectre d'entrée utilisé pour initialiser l'algorithme est un spectre dont l'amplitude est égale à la valeur moyenne $a_j^{(0)}$, comme décrit dans le paragraphe II.1.4.

En complément du choix de l'information *a priori* et du spectre initial, la détermination du facteur χ^2 par degré de liberté, décrit dans l'équation (II-2), joue un rôle important dans la déconvolution des spectres. Nous avons utilisé χ^2 comme paramètre d'arrêt pour MAXED et GRAVEL. Au fur et à mesure du traitement, GRAVEL permet de visualiser la valeur de χ^2 atteinte après chaque itération. Au cours de la déconvolution, le facteur χ^2 diminue rapidement jusqu'à atteindre une valeur limite. À partir de cette valeur, il va avoir tendance à diminuer lentement (l'écart entre deux valeurs χ^2 consécutives est inférieur à 0,1) et des oscillations dans le spectre en énergie de neutrons commencent à augmenter. Cette valeur limite est la valeur finale de χ^2 qui peut être utilisée dans GRAVEL. Pour MAXED, on peut utiliser la même valeur de χ^2 trouvée pour GRAVEL. La valeur initiale du critère d'arrêt utilisé pour MLEM est le nombre d'itérations atteint par GRAVEL à la valeur finale de χ^2 . Nous réduisons ensuite le nombre d'itérations jusqu'à ce que le spectre obtenu ne présente plus d'oscillations.

Afin d'évaluer et comparer les différents résultats de déconvolution obtenus par les trois codes MAXED, GRAVEL et MLEM, nous avons calculé l'erreur quadratique moyenne (EQM) qui doit tendre vers 0, représentée par l'équation (II-37), entre les spectres déconvolués et les spectres de référence fournis par l'Organisation Internationale de Normalisation (ISO) [26].

$$\text{EQM} = \frac{\sum_{i=1}^N (f_i^{\text{solution}} - f_i^{\text{référence}})^2}{N} \quad (\text{II-37})$$

- **Déconvolution du spectre ^{252}Cf en utilisant MAXED et un spectre plat comme spectre *a priori***

Dans cette partie nous montrons les résultats de déconvolution du ^{252}Cf en utilisant le code MAXED avec en spectre d'entrée un spectre plat. La Figure II-8 (à gauche) montre une comparaison entre le spectre de protons de recul simulé (désigné par *measured*, en bleu) et le spectre de protons de recul calculé par MAXED après la première itération (désigné par *estimated default*, en rouge). La Figure II-8 (à droite) montre une comparaison entre le spectre de protons de recul simulé (désigné par *measured*, en rouge) et le spectre de protons de recul calculé par MAXED après 1750 itérations (désigné par *estimated output*, en rouge). La Figure II-9 montre le spectre en énergie de neutrons du ^{252}Cf déconvolué par MAXED et comparé au spectre ^{252}Cf ISO. Nous notons que la différence la plus significative entre le spectre de référence et le spectre déconvolué se trouve à basse énergie (<400 keV). On peut constater que le spectre obtenu est en bon accord avec le spectre ^{252}Cf de référence, avec une valeur $\text{EQM}=1,068 \times 10^{-6}$.

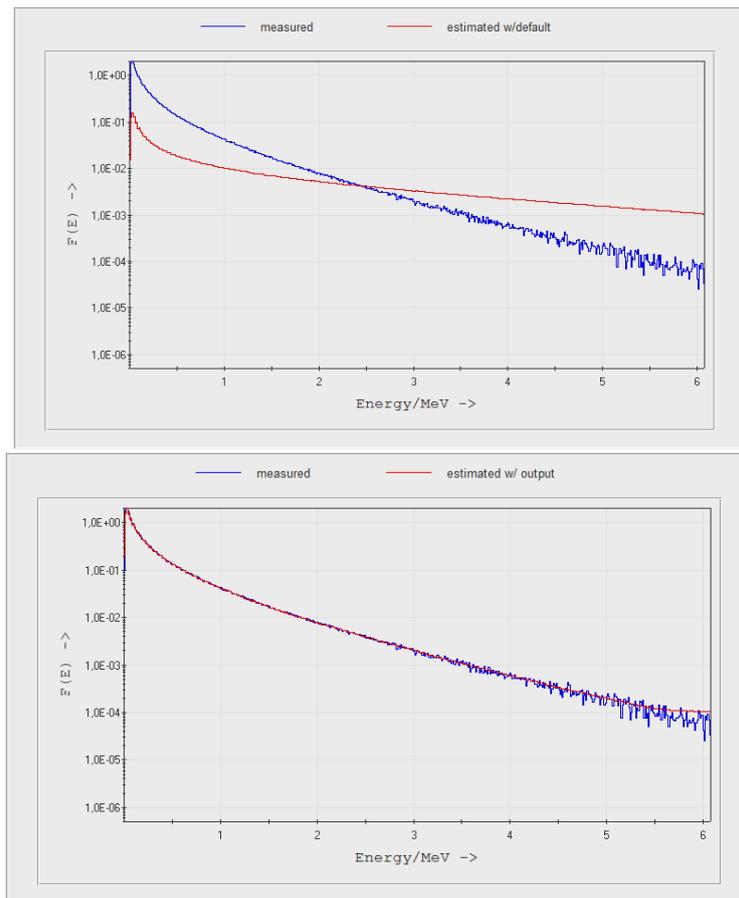


Figure II-8 Une comparaison entre le spectre de protons de recul simulé et le spectre calculé par MAXED à la première itération (figure en haut, courbe rouge) et après 1750 itérations (figure en bas, courbe rouge).

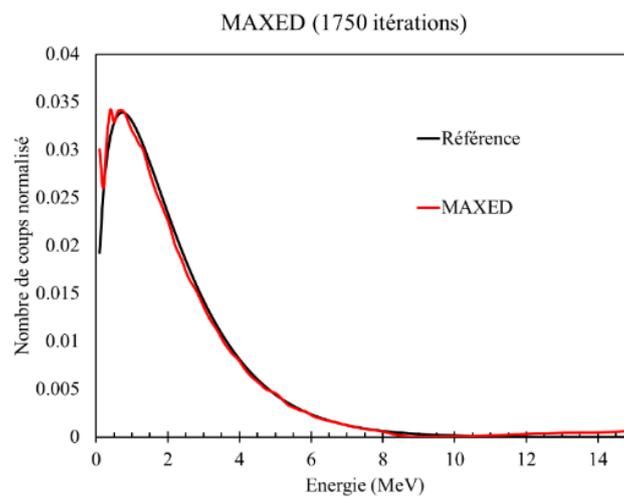


Figure II-9 Comparaison entre le spectre en énergie ^{252}Cf reconstruit par MAXED et le spectre utilisé dans la simulation (spectre ISO).

• **Déconvolution du spectre ^{252}Cf en utilisant GRAVEL et un spectre plat comme spectre initial**

Dans cette partie nous montrons les résultats de déconvolution du ^{252}Cf en utilisant le code GRAVEL avec en spectre d'entrée un spectre plat. Le spectre de protons de recul calculé par le code à l'initialisation (*estimated default*) est présenté sur la Figure II-10 (à gauche) et comparé avec le spectre de protons de recul simulé (*measured*). La Figure II-10 (à droite) montre le spectre de protons de recul calculé par le code après 25 itérations (*estimated output*). Le spectre du ^{252}Cf obtenu, illustré sur la Figure II-11, est en bon accord avec le spectre du ^{252}Cf de référence avec une valeur EQM=1,254×10⁻⁶. Il convient de noter que des performances similaires sont observées entre GRAVEL et MAXED, en comparant les valeurs de EQM obtenues par les deux codes pour reconstruire le spectre en énergie du ^{252}Cf et en utilisant un spectre plat en tant que spectre d'entrée.

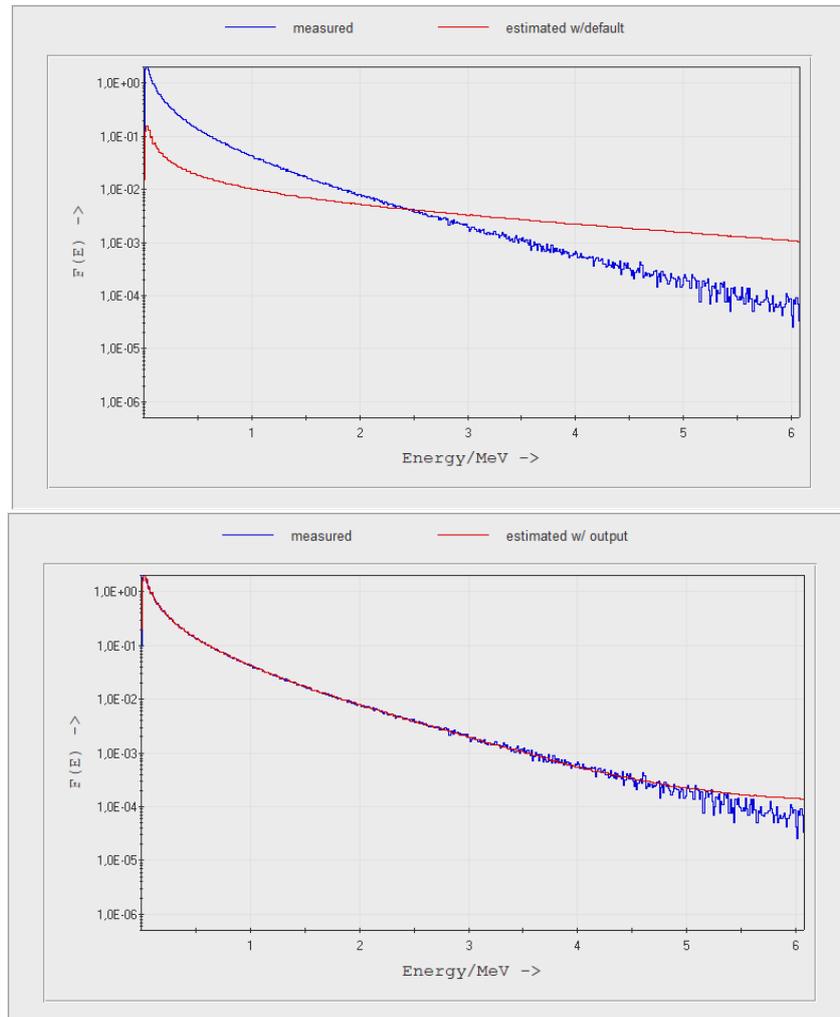


Figure II-10 Comparaison entre le spectre de protons de recul simulé et le spectre calculé par GRAVEL après une seule itération (figure en haut, courbe rouge) et après 25 itérations (figure en bas, courbe rouge).

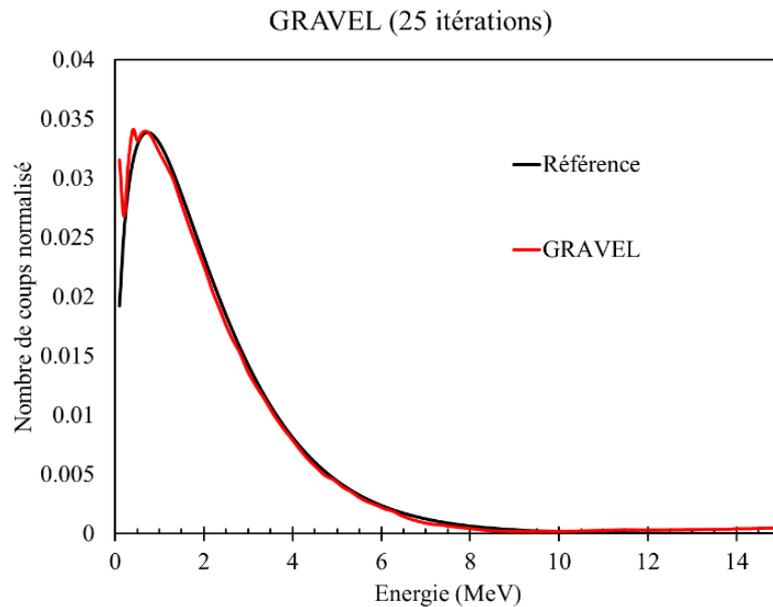


Figure II-11 Comparaison entre le spectre en énergie ^{252}Cf reconstruit par GRAVEL et le spectre utilisé dans la simulation Monte Carlo (spectre ISO).

- **Déconvolution du spectre ^{252}Cf en utilisant l’algorithme MLEM et un spectre plat comme spectre initial**

Le spectre en énergie du ^{252}Cf présenté sur la Figure II-12 est reconstruit avec l’algorithme MLEM en utilisant un spectre plat en tant que spectre d’entrée et en effectuant 8 itérations. Le spectre en énergie du ^{252}Cf reconstruit est en très bon accord avec le spectre de référence, avec $\text{EQM}=6,306 \times 10^{-8}$. En comparant la valeur de EQM des trois méthodes MLEM, MAXED et GRAVEL ainsi que le nombre d’itérations effectué, nous constatons qu’en initialisant les trois codes avec un spectre plat, MLEM est plus performant que les deux autres méthodes.

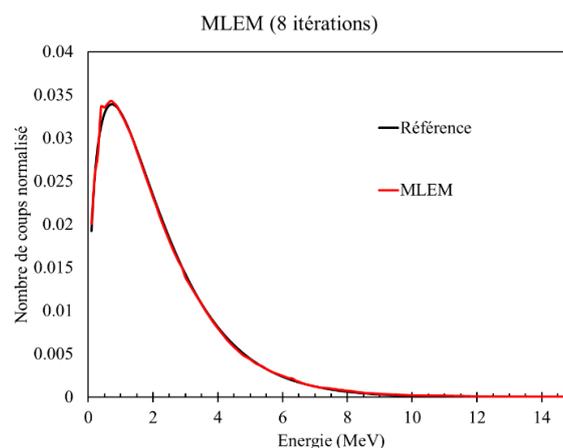


Figure II-12 Comparaison entre le spectre en énergie ^{252}Cf reconstruit par MLEM et le spectre utilisé dans la simulation Monte Carlo (spectre ISO).

- **Déconvolution du spectre ^{252}Cf en utilisant MAXED, GRAVEL et MLEM avec un spectre de Watt comme spectre *a priori* pour MAXED et comme spectre initial pour GRAVEL et MLEM**

Afin d'étudier l'effet des spectres à fournir en entrée sur les performances des trois codes de déconvolution, nous avons utilisé en tant que spectre d'entrée un spectre de Watt qui diffère du spectre de fission de Watt du ^{252}Cf , comme le présente la Figure II-13. Les valeurs des paramètres a et b du spectre de Watt utilisé sont respectivement 0,9 et 1,8. Les résultats des trois méthodes de déconvolution pour la reconstruction du spectre en énergie du ^{252}Cf , en utilisant en tant que spectre d'entrée un spectre de Watt, sont présentés sur la Figure II-14. Le Tableau II-2 montre pour chaque spectre déconvolué, en fonction du spectre d'entrée utilisé, le nombre d'itérations effectuées et la valeur de EQM qui quantifie l'accord entre le spectre calculé et le spectre déconvolué. Nous remarquons que l'utilisation d'un spectre de Watt comme spectre *a priori*, ou initial, améliore les résultats pour les trois codes de déconvolution, même s'il ne s'agit pas du spectre de Watt correct. Cette amélioration est significative pour MAXED ($\Delta\text{EQM}=7,662\times 10^{-7}$) plus que pour GRAVEL ($\Delta\text{EQM}=1,320\times 10^{-7}$) et MLEM ($\Delta\text{EQM}=1,939\times 10^{-7}$). Ce résultat montre que MAXED est plus sensible au spectre d'entrée que GRAVEL et MLEM. En revanche, si on compare les critères de performance EQM et le nombre d'itérations effectuées, montrés dans le Tableau II-2, l'algorithme MLEM présente la valeur d'EQM la plus faible par rapport aux deux autres codes. Ce résultat confirme que MLEM est plus performant que MAXED et GRAVEL dans la reconstruction de la source de neutrons de fission spontanée, quel que soit le type de spectre d'entrée employé.

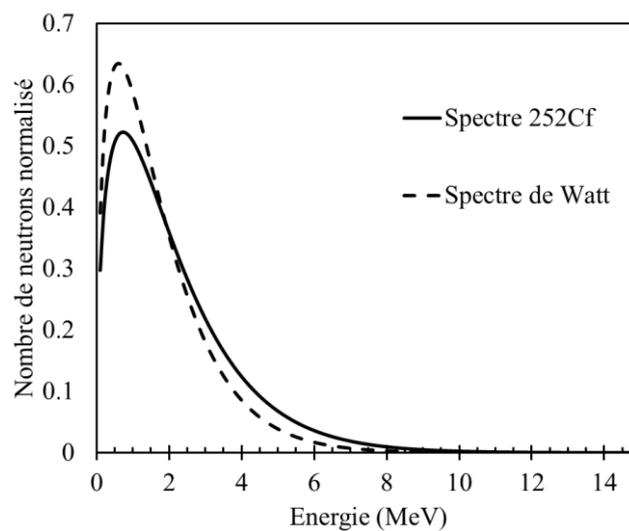


Figure II-13 Comparaison entre le spectre de Watt utilisé comme spectre d'entrée (ligne pointillée) et le spectre de fission ^{252}Cf ISO, utilisé comme spectre d'entrée dans les simulations Monte Carlo (ligne continue).

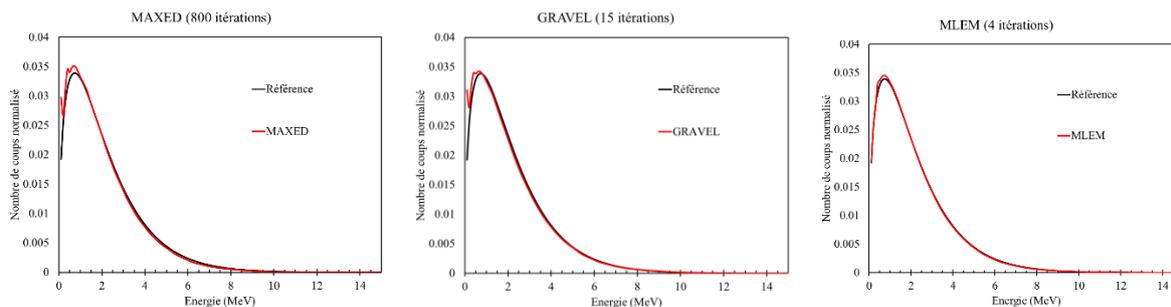


Figure II-14 Déconvolution des spectres simulés de ^{252}Cf en utilisant MAXED (gauche), GRAVEL (milieu), et MLEM (droite). Le spectre d'entrée est un spectre de Watt.

Méthode de déconvolution	MAXED		GRAVEL		MLEM	
	Nombre d'itérations	EQM	Nombre d'itérations	EQM	Nombre d'itérations	EQM
Performances Spectre d'entrée						
Spectre plat	1750	$1,07 \times 10^{-6}$	25	$1,25 \times 10^{-6}$	8	$6,31 \times 10^{-8}$
Spectre de Watt	800	$9,14 \times 10^{-7}$	10	$1,12 \times 10^{-6}$	4	$4,10 \times 10^{-8}$

Tableau II-2 Synthèse des critères de performance de MAXED, GRAVEL et MLEM pour reconstruire le spectre de la source ^{252}Cf .

II.2.4.4.2. Application des codes de déconvolution pour la reconstruction du spectre simulé d'une source d'AmBe

Dans ce paragraphe, nous étudions les performances des trois codes de déconvolution pour reconstruire le spectre en énergie d'une source neutronique de type (α, n) . La source retenue est une source d'AmBe dont le spectre en énergie est plus complexe que celui du ^{252}Cf . Pour faire la reconstruction, nous avons considéré la même fonction de réponse et le même modèle de simulation que ceux utilisés pour la reconstruction du spectre en énergie du ^{252}Cf . Pour la déconvolution de l'AmBe, les bornes de l'intervalle d'énergie pour le spectre de hauteur en impulsion sont [0,001 MeVee ; 7,70 MeVee] pour MAXED et GRAVEL, et [0,001 MeVee ; 11,19 MeVee] pour MLEM. La Figure II-15 et la Figure II-16 montrent les spectres déconvolués de la source AmBe en utilisant respectivement pour les spectres d'entrée un spectre plat et un spectre de Watt.

En comparant les critères de performance présentés dans Tableau II-3, nous avons obtenu la même conclusion pour la déconvolution de la source d'AmBe que pour la source de ^{252}Cf : le spectre d'AmBe déconvolué en utilisant MLEM est en meilleur accord avec le spectre de référence ($\text{EQM} = 2,358 \times 10^{-7}$) que pour les spectres d'AmBe déconvolués par GRAVEL ($\text{EQM} = 6,129 \times 10^{-7}$) et MAXED ($\text{EQM} = 7,219 \times 10^{-7}$). Cependant, l'initialisation des trois codes de déconvolution avec un spectre de Watt pour la déconvolution du spectre d'AmBe donne une amélioration moins significative que celle observée dans la déconvolution du spectre ^{252}Cf .

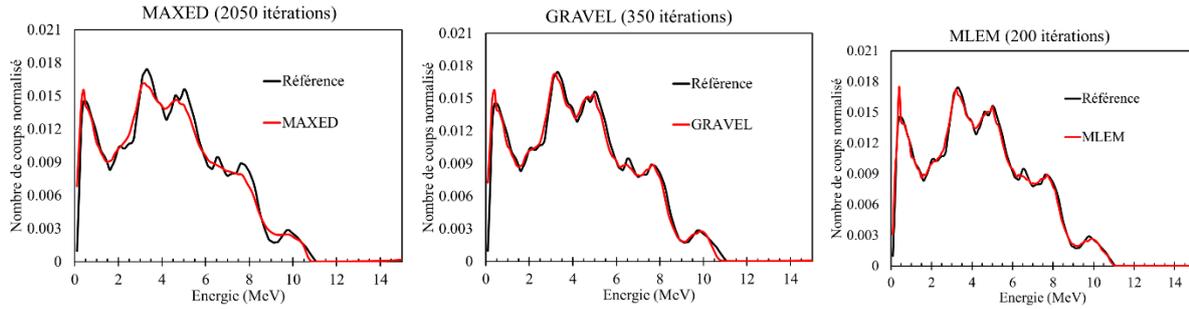


Figure II-15 Déconvolution de spectres simulés d'AmBe en utilisant MAXED (à gauche), GRAVEL (au milieu) et MLEM (à droite). Le spectre d'entrée est un spectre plat.

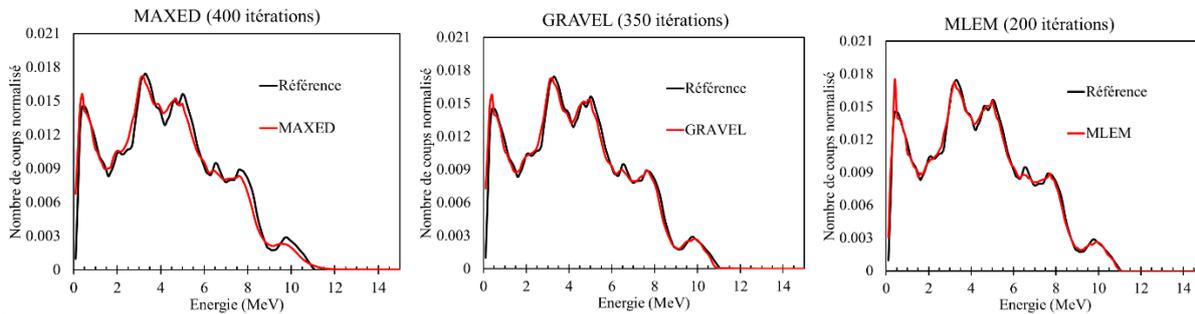


Figure II-16 Déconvolution de spectres simulés d'AmBe en utilisant MAXED (à gauche), GRAVEL (au milieu) et MLEM (à droite). Le spectre d'entrée est un spectre de Watt.

Méthode de déconvolution	MAXED		GRAVEL		MLEM	
Performances						
Spectre d'entrée	Nombre d'itérations	EQM	Nombre d'itérations	EQM	Nombre d'itérations	EQM
Spectre plat	2050	$7,50 \times 10^{-7}$	350	$6,28 \times 10^{-7}$	200	$2,40 \times 10^{-7}$
Spectre de Watt	400	$7,22 \times 10^{-7}$	350	$6,13 \times 10^{-7}$	200	$2,36 \times 10^{-7}$

Tableau II-3 Synthèse des critères de performance de MAXED, GRAVEL et MLEM pour reconstruire le spectre de la source AmBe.

II.3. Synthèse du chapitre 2

Dans ce chapitre nous avons montré à l'aide de la simulation Monte Carlo, la faisabilité de la spectrométrie neutronique en utilisant un scintillateur plastique de volume actif 2 cm³. Nous avons testé et comparé les performances de trois codes de déconvolution, MAXED, GRAVEL et MLEM pour reproduire le spectre en énergie de deux types différentes de sources neutroniques ²⁵²Cf et AmBe.

Les codes MAXED, GRAVEL et MLEM ont été appliqués aux spectres de hauteur en impulsion simulés avec le code MCNP6.2 et correspondant à un scintillateur plastique triple discriminant fabriqué au CEA List et de volume actif 2 cm³. En utilisant un spectre plat comme spectre d'entrée dans les trois codes de déconvolution, un bon accord (EQM <1,254×10⁻⁶) avec le spectre ISO de référence a été obtenu pour la déconvolution de la source de neutrons ²⁵²Cf. Les résultats de déconvolution du spectre en énergie du ²⁵²Cf sont améliorés, avec (EQM <1,122×10⁻⁶), en utilisant un spectre de Watt moyen comme spectre d'entrée. Pour les sources de neutrons (α , n) avec des spectres d'énergie plus complexes comme AmBe, la procédure de déconvolution donne également un bon accord (EQM <7,502×10⁻⁷) avec le spectre ISO de référence, et de meilleurs résultats (EQM <7,219×10⁻⁷) sont obtenus en considérant un spectre de Watt comme spectre d'entrée. D'autre part, nous pouvons noter qu'en comparant les critères de performance (nombre d'itérations effectuées et valeurs de EQM), MLEM est toujours plus performant que MAXED et GRAVEL, quel que soit le type de source de neutrons et le spectre d'entrée employé.

Dans le chapitre suivant, nous appliquerons ces codes de déconvolution sur des données expérimentales en utilisant les deux sources neutroniques disponibles au laboratoire, à savoir le ²⁵²Cf et l'AmBe, ainsi que le générateur de champs neutroniques mono-énergétiques d'Amande. Dans ce cas, nous avons besoin d'une connaissance précise de la matrice de réponse du scintillateur plastique développé par le laboratoire. À cette fin, une matrice de réponse expérimentale sera déterminée pour ce détecteur, en utilisant des sources de neutrons et de protons mono-énergétiques. Par conséquent, dans le code de déconvolution, nous utiliserons un spectre de hauteur en impulsion mesuré et une fonction de réponse du détecteur simulée et optimisée par la fonction de réponse mesurée.

II.4. Bibliographie du chapitre 2

- [1] J.T. Routti, J.V. Standberg, Unfolding activation and multisphere detector data, *Radiat Prot Dosimetry*. 10 (1984) 103–110.
- [2] K. M. Hanson, R. N. Silver, *Maximum Entropy and Bayesian Methods*, in: Santa Fe, New Mexico, U.S.A, 1995.
- [3] L. Giacomelli, M. Reginatto, Optimization of MAXED input parameters with applications to the unfolding of neutron diagnostics data from the Joint European Torus, *Review of Scientific Instruments*. 90 (2019). <https://doi.org/10.1063/1.5097784>.
- [4] M. Reginatto, P. Goldhagen, *Maxed a computer code for the deconvolution of multisphere neutron spectrometer data using the maximum entropy method*, New York, 1998.
- [5] *Minimizing Multimodal Functions of Continuous Variables with the 'Simulated Annealing' Algorithm*, n.d.
- [6] W.L. Goffe, G.D. Ferrier, J. Rogers, H. Amman, G. Barinshtein, D. Belsley, T.R. Beard, H. Bierens, M. Booty, D. Goldberg, S. Kerr, D. Levy, E. Maasoumi, D. Mccaffrey, R. Quandt, M. Veal1, S. Barron, J. Byrd, R. Harkness, L. Keeler, J. Respass, S. Vellas, *Global optimization of statistical functions with simulated annealing**, n.d.
- [7] W.H. Press, *Numerical recipes in FORTRAN: the art of scientific computing*, Cambridge University Press, 1992.
- [8] M. Matzke, *Unfolding of Pulse Height Spectra: The HEPRO Program System*, 1994.
- [9] L.A. Shepp, Y. Vardi, *Maximum Likelihood Reconstruction for Emission Tomography*, *IEEE Trans Med Imaging*. 1 (1982) 113–122. <https://doi.org/10.1109/TMI.1982.4307558>.
- [10] H. Lemaire, *Développement d'une caméra gamma de troisième génération*, 2019. <https://hal.archives-ouvertes.fr/tel-02271784>.
- [11] Y. Chen, M.R. Gupta, U.W. Uw, *EM Demystified: An Expectation-Maximization Tutorial Electrical Engineering Engineering EM Demystified: An Expectation-Maximization Tutorial*, 2010.
- [12] H.H. Barschall, M.H. Kanner, *On the Angular Distribution of Fast Neutrons Scattered by Hydrogen, Deuterium and Helium*, 1940.
- [13] J.B. Birks, M. Moszynski, *The theory and practice of scintillation counting*, 2007.
- [14] G.F. Knoll, *Radiation detection and measurement*, Wiley, 2000.
- [15] M. Tajik, N. Ghal-Eh, G.R. Etaati, H. Afarideh, *Modeling NE213 scintillator response to neutrons using an MCNPX-PHOTRACK hybrid code*, *Nucl Instrum Methods Phys Res A*. 704 (2013) 104–110. <https://doi.org/10.1016/j.nima.2012.12.001>.
- [16] A. V Alevra, *Neutron Spectrometry**, 1999. <http://www.edpsciences.org/radiopro>.
- [17] F.D. Brooks, *DEVELOPMENT OF ORGANIC SCINTILLATORS*, (1979).
- [18] C. N. CHOU, *The Nature of the Saturation Effect of Fluorescent Scintillators*, 1952.

- [19] G.T. Wright, Scintillation Response of Organic Phosphors, 1953.
- [20] J. Armstrong, F. B. Brown, J. S. Bull, L. Caswell, Manuel_MCNP_6.2, U.S., 2017.
- [21] T.A. Laplace, B.L. Goldblum, J.J. Manfredi, J.A. Brown, D.L. Bleuel, C.A. Brand, G. Gabella, J. Gordon, E. Brubaker, Simultaneous measurement of organic scintillator response to carbon and proton recoils, *Phys Rev C*. 104 (2021). <https://doi.org/10.1103/PhysRevC.104.014609>.
- [22] J.S. Hendricks, G.W. Mckinney, L.S. Waters, T.L. Roberts, H.W. Egdorf, J.P. Finch, H.R. Trelue, E.J. Pitcher, D.R. Mayo, M.T. Swinhoe, S.J. Tobin, J.W. Durkee, F.X. Gallmeier, W.B. Hamilton, J. Lebenhaft, MCNPX EXTENSIONS VERSION 2.5.0, 2005.
- [23] G. Earl Mckinney, G. Walter, Enhancements to the built-in MCNP6 detector response functions, Los Alamos, 2015.
- [24] C. Awe, P. Barbeau, A. Haghighat, S. Hedges, T. Johnson, S. Li, J.M. Link, V. Mascolino, J. Runge, J. Steenis, T. Subedi, K. Walkup, Measurement of proton quenching in a plastic scintillator detector, *Journal of Instrumentation*. 16 (2021). <https://doi.org/10.1088/1748-0221/16/02/P02035>.

Chapitre III. La spectrométrie neutronique appliquée sur des données mesurées

Ce chapitre met en évidence les capacités des scintillateurs plastiques chimiquement modifiés en tant que spectromètres neutroniques. Nous présentons la mise en place de la chaîne d'acquisition et son étalonnage en utilisant des sources gamma, ainsi que des générateurs de neutrons et de protons mono-énergétiques. Enfin, nous présentons les résultats de la spectrométrie neutronique obtenus en déconvoluant des spectres de protons de recul mesurés provenant des deux sources neutroniques ^{252}Cf et AmBe, ainsi que le spectre de neutrons mono-énergétiques du faisceau d'Amande.

III.1. Description du prototype expérimental

Dans ce paragraphe, nous parlerons de la première chaîne de mesure mise en place pour la détection des neutrons à l'aide d'un détecteur de type scintillateur plastique. La configuration expérimentale illustrée sur la Figure III-1 est construite autour des éléments suivants :

- Le dispositif expérimental comprend un monobloc de scintillateur plastique d'un volume d'environ 2 cm^3 . Ce scintillateur peut être double ou triple discriminant :
 - Le scintillateur double discriminant de forme cylindrique (de rayon 0,6 cm et de hauteur 2 cm) est présenté sur la Figure III-2 (à gauche). C'est un scintillateur organique plastique en polystyrène capable de discriminer le signal gamma du signal neutron rapide et dont la composition chimique est rappelée dans le Tableau III-1. Ce scintillateur fabriqué au CEA List [1,2], est formé de 61,49% de monomère (styrène), 23,06% de fluorophore primaire 2,5-diphenyloxazole (PPO), 15,37% de réticulant 1,4-butanedioldimetacrylate, 0,073% de fluorophore secondaire, et 9,10-diphenylantracène (DPA).
 - Le scintillateur triple discriminant est un scintillateur de forme cubique (de surface 1 cm^2 et de hauteur 1,5 cm). C'est un scintillateur organique plastique capable de discriminer les signaux provenant des rayonnements gamma, des neutrons rapides et des neutrons thermiques. Ce scintillateur fabriqué au CEA List est formé de 73,15% de styrène, 8,13% d'acide méthacrylique, 16,26% de PPO, 0,024% de 1,4-Bis(5-phenyl-2-oxazolyl)benzene (POPOP) et 2,44% de Li α -valerate (Li α Val). Sa composition chimique est rappelée dans le Tableau III-1 [3]. Le scintillateur triple discriminant, contrairement au scintillateur double discriminant, a la capacité non seulement de mesurer l'énergie des neutrons rapides, mais également de détecter les neutrons thermiques tout en fournissant une mesure de comptage de ces neutrons thermiques. Bien que l'inclusion de la composante thermique des neutrons n'ait pas d'impact direct sur la mesure de la spectrométrie neutronique, elle présente l'avantage d'accroître la sensibilité du détecteur en ajoutant à la détection de la signature des neutrons rapides la signature des neutrons thermiques, ce qui, à son tour, améliore la sensibilité de la mesure d'imagerie neutronique. Dans les travaux de ce chapitre, nous allons présenter les résultats expérimentaux du prototype du spectromètre neutronique formé du scintillateur de type triple discriminant. Dans certaines situations, nous aurons également recours au scintillateur double discriminant à des fins de comparaison.
- Une matrice (2x2) de photomultiplicateurs de silicium (SiPM) de type ARRAYJ-60035-4P-PCB d'Onsemi [4] pour convertir la lumière émise par le scintillateur en signal électrique.

- Une interface en graisse silicone pour relier optiquement les scintillateurs aux photomultiplicateurs.
- Une enveloppe en Téflon, en ruban adhésif métallique, et parfois en feutrine adhésive noire pour assembler le scintillateur avec le SiPM. En plus, il permet de réfléchir la lumière émise par le scintillateur et empêcher la lumière extérieure de rentrer dans le scintillateur.
- Une carte électronique conçue pour une matrice SiPM (2x2) pour assurer la lecture des signaux du SiPM et les transmettre au numériseur [5].
- Un numériseur CAEN DT5743 [6] pour convertir le signal d'entrée en données numériques. Il stocke les données pour une analyse et un affichage ultérieurs.
- Un logiciel CAEN «WaveCatcher» [7] qui permet de paramétrer le numériseur DT5743, afficher et enregistrer les signaux de tension.
- Un générateur de tension CAEN DT5485P [8], spécialement conçu pour la polarisation du SiPM, en générant une tension continue entre 25 V et 30 V.
- Une boîte noire étanche à la lumière pour protéger le système d'un parasitage par de la lumière visible.

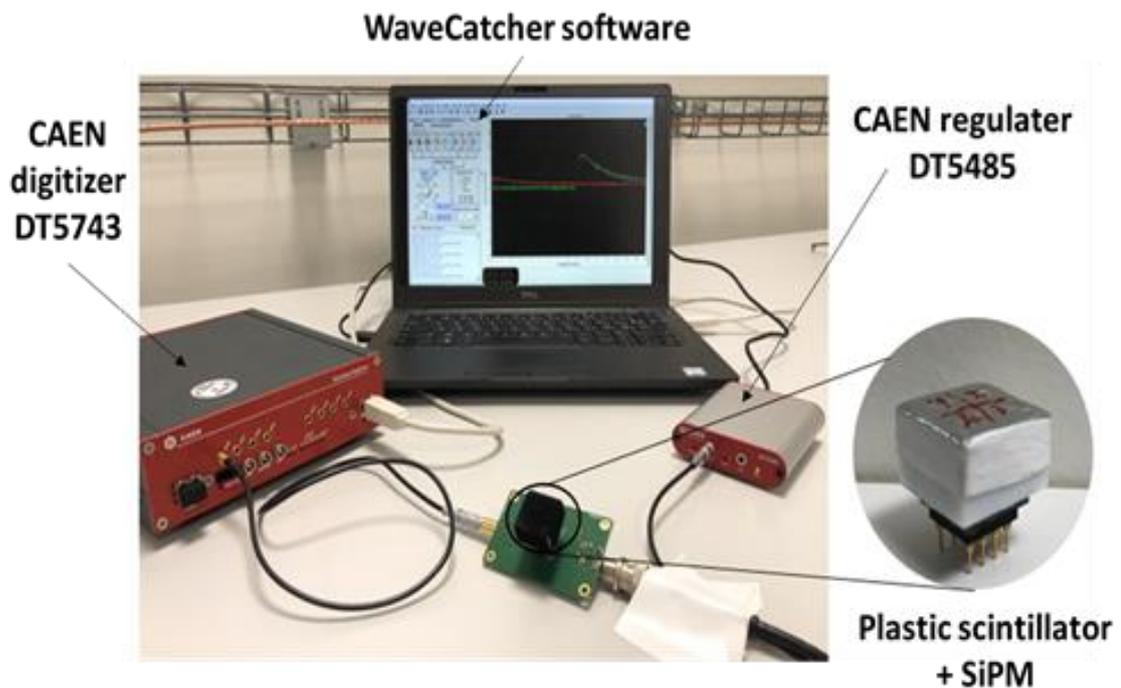


Figure III-1 Photographie de la chaîne d'acquisition.



Figure III-2 À gauche photographie du scintillateur cylindrique double discriminant. À droite photographie du scintillateur cubique triple discriminant.

	Element	C	H	N	O	Li
Fractions massiques (%)	Scintillateur double discriminant	85,3	7,15	1,46	6,09	–
	Scintillateur triple discriminant	89,02	7,21	2,53	1,06	0,053

Tableau III-1 Composition chimique des scintillateurs plastiques double et triple discriminant développés par le CEA List.

Le scintillateur est relié optiquement au SiPM, en utilisant une interface optique en graisse silicone, afin de maximiser la transmission des photons de scintillation. Les raisons principales pour lesquelles nous avons choisi d'utiliser ce type de photodétecteur sont liées à son faible encombrement et à son fonctionnement à basse tension (par comparaison aux photomultiplicateurs PMT, nécessitant une alimentation de plusieurs centaines de kilovolts). Le SiPM est conçu pour fonctionner en mode Geiger où la cathode doit être polarisée positivement par rapport à l'anode au-dessus de la tension de claquage. SensL, appartenant désormais au groupe Onsemi [4] est l'un des principaux fabricants de SiPM à l'heure actuelle. SensL propose plusieurs méthodes pour le développement du circuit électronique de lecture du SiPM [5]. La Figure III-3 montre le circuit électronique choisi. La Figure III-4 montre le montage expérimental de la carte électronique précédemment développé pendant des travaux de thèse réalisés au CEA List [9]. Les différents composants schématisés sur la Figure III-4 peuvent être regroupés au sein d'une carte électronique comme le montre la Figure III-5. Cette carte, fabriquée au laboratoire CEA List, est conçue pour une référence précise de la matrice SiPM (2x2), ARRAYJ-60035-4P-PCB, mais peut être adaptée à différents modèles de matrice de SiPM.

Il est important de noter que le prototype décrit dans ce paragraphe (III.1.) (comprenant une matrice SiPM de dimensions 2x2 et un monobloc de scintillateur plastique de 2 cm³, avec une discrimination double ou triple) sera utilisé pour tous les essais expérimentaux mentionnés dans les prochaines parties de ce chapitre.

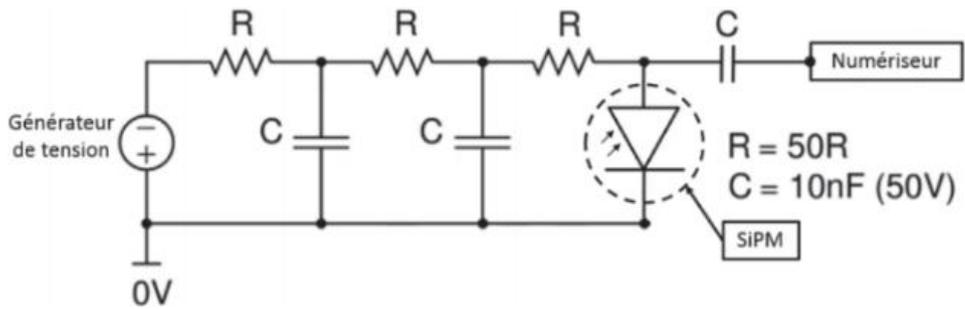


Figure III-3 Schéma de l'électronique de mesure. Le SiPM est symbolisé par la photodiode.

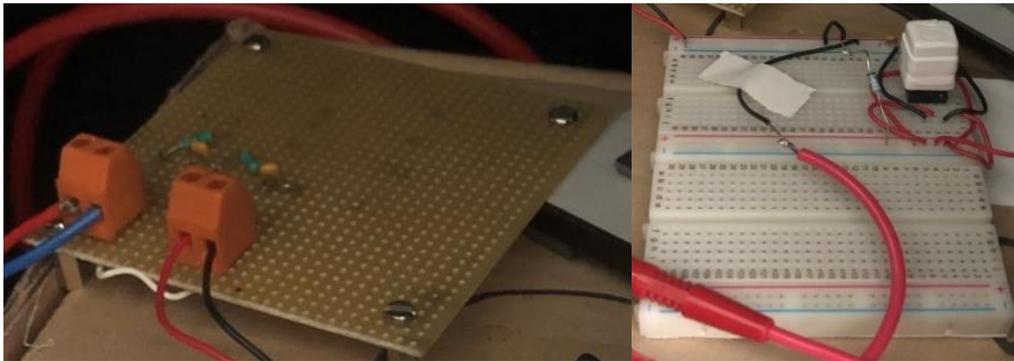


Figure III-4 Montage expérimental de mesure pour la matrice de SiPM

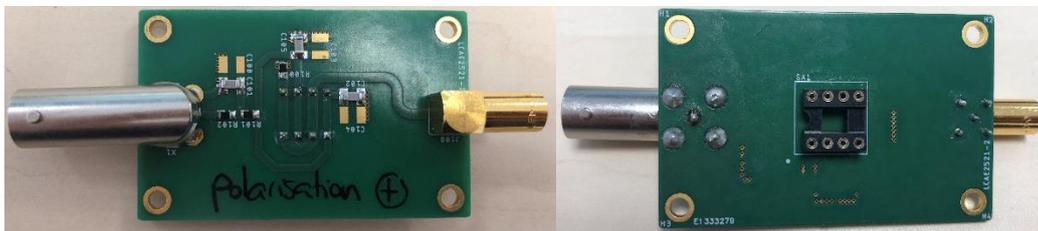


Figure III-5 Carte électronique conçue pour une matrice SiPM (2x2)



Figure III-6 Régulateur haute tension DT5485 commercialisé par CAEN [8]

III.2. Etalonnage du scintillateur plastique à l'aide de sources gamma

Dans ce paragraphe nous étudions la réponse du scintillateur plastique aux rayonnements gamma afin d'étalonner le détecteur à l'aide de sources gamma et étudier sa résolution en énergie. Le processus d'étalonnage en énergie gamma permet d'exprimer en MeVee le spectre en hauteur d'impulsion mesuré. Il convient de rappeler que 1 MeVee correspond à 1 MeV d'énergie déposée par un électron dans le scintillateur.

III.2.1. Interaction des rayonnements gamma dans le scintillateur plastique

Les rayonnements gamma interagissent dans les scintillateurs de trois manières différentes : par effet photoélectrique, par diffusion Compton et ou bien par création de paires électron-positon. Le type de réaction qui se produit dépend à la fois du numéro atomique des matériaux cibles et de l'énergie des photons gamma, comme nous pouvons le voir sur la Figure III-7. Dans le cas des scintillateurs organiques, en raison du faible numéro atomique de leurs éléments chimiques ($Z < 8$), l'effet Compton prédomine pour les rayonnements gamma dont les énergies sont supérieures à 100 keV, tandis que l'effet photoélectrique prédomine pour les rayonnements gamma d'énergies inférieures à 100 keV. En conséquence, dans le cas des rayonnements gamma avec une énergie d'environ quelques centaines de keV, nous détectons principalement les fronts Compton plutôt que les pics d'absorption totale. Cette observation est confirmée dans la suite du paragraphe III.2. , en étalonnant les spectres mesurés des sources gamma ^{22}Na et ^{137}Cs .

Un deuxième comportement des scintillateurs organiques ayant un impact notable sur les mesures est dû à leur résolution en énergie dégradée. En conséquence, le maximum Compton (CM), qui représente la vraie énergie déposée par la particule ionisante, comme illustré sur la Figure III-8, ne correspond plus au front Compton théorique (CE). D'après la référence [10], les paramètres qui affectent la résolution énergétique et qui sont responsables de l'élargissement des spectres sont :

- Fluctuation de la génération de lumière pour un même dépôt d'énergie,

- Non-proportionnalité de la réponse lumineuse,
- Fluctuation statistique de la collecte des charges dans le SiPM,
- Bruit électronique résultant du détecteur et de l'ensemble des composants électroniques associés.

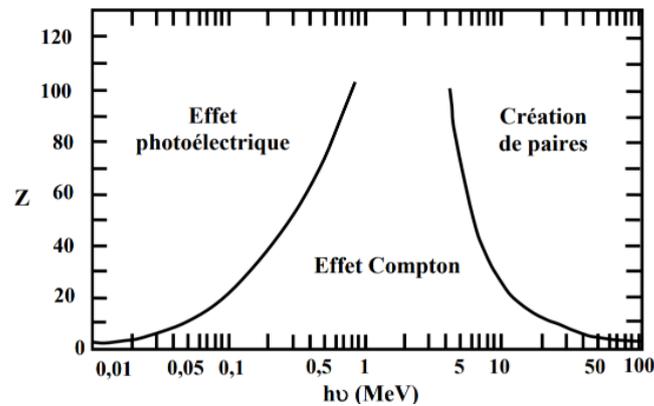


Figure III-7 Interactions entre rayonnement gamma et matière en fonction du numéro atomique Z et de l'énergie des photons [11].

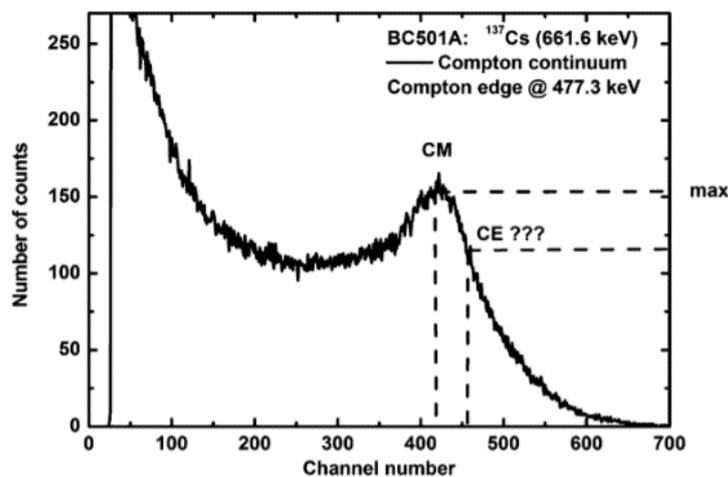


Figure III-8 Spectre gamma mesuré pour le scintillateur liquide BC501A exposé à une source de ^{137}Cs [12].

III.2.2. Présentation des spectres gamma mesurés

En utilisant la chaîne d'acquisition décrite dans le paragraphe III.1. , nous montrons les résultats des mesures faites en exposant le scintillateur plastique triple discriminant aux sources gamma suivantes : ^{22}Na , ^{137}Cs , ^{241}Am , ^{60}Co , ^{133}Ba et ^{152}Eu . Les énergies principales des rayonnements gamma émis par ces radionucléides sont rappelées dans le Tableau III-2. Suite à l'interaction du rayonnement au sein du détecteur, le processus lumineux se résume principalement à l'excitation des électrons qui émettent de la fluorescence en retombant à l'état d'équilibre. La lumière émise est ensuite détectée par les SiPM et est transformée en signal électrique. Les spectres mesurés sont exprimés en charge totale (Q_{tot}) qui est par définition l'intégrale de l'impulsion mesurée. La Figure III-9 montre les spectres en charge totale (Q_{tot}) mesurés en utilisant les sources ^{22}Na et ^{137}Cs . Les rayonnements gamma émis par ces sources

radioactives, dont les énergies sont supérieures à 100 keV, interagissent avec le détecteur en déposant une partie de leur énergie par effet Compton. Les valeurs Q_{tot} mesurées sont proportionnelles aux énergies déposées dans le détecteur et les pics ajustés dans les spectres de Q_{tot} correspondent aux énergies des maxima Compton. La Figure III-10 montre le spectre de la source d' ^{241}Am qui émet des rayonnements gamma d'énergie 59,5 keV et la répartition des Q_{tot} observés correspond au pic d'absorption totale. Les valeurs des énergies des maxima Compton (CM) ainsi que la résolution en énergie du détecteur peuvent être extraites en utilisant une méthode itérative pour ajuster les spectres simulés aux spectres mesurés, comme nous le montrerons dans les paragraphes III.2.3 et III.2.4.

Source gamma	Energie (keV)	Intensité (%)
^{22}Na	511,00	180,70
	1274,53	99,94
^{137}Cs	661,65	85,05
^{241}Am	59,54	35,92
^{60}Co	1 332,49	99,98
	1 173,23	99,85
^{133}Ba	356,01	62,05
	81,00	33,31
	302,85	18,31
	383,85	8,94
	276,40	7,13
^{152}Eu	121,80	28,41
	344,28	26,59
	1 408,01	20,85
	964,08	14,50
	1 112,08	13,41
	778,90	12,97
	1 085,84	10,13
	244,70	7,55

Tableau III-2 Energies principales des rayonnements gamma émis par les radionucléides ^{22}Na , ^{137}Cs , ^{241}Am , ^{60}Co , ^{133}Ba , et ^{152}Eu classées par intensité d'émission décroissante [13].

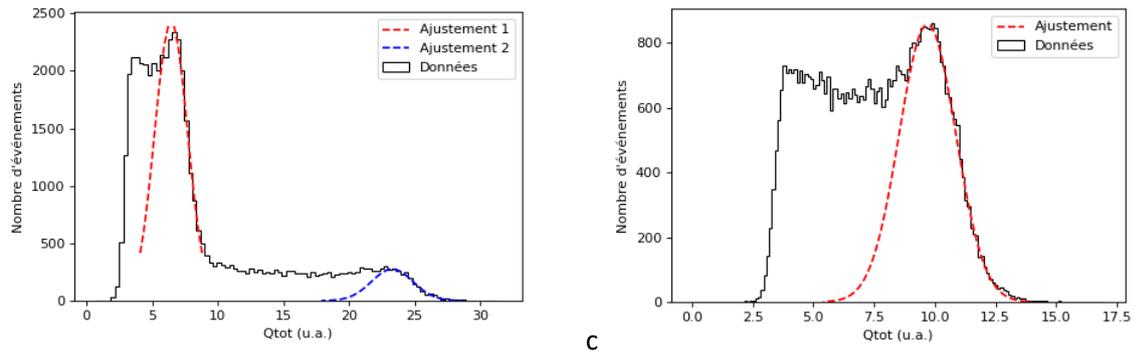


Figure III-9 À gauche : spectre de hauteur en impulsion mesuré en utilisant la source ^{22}Na . À droite : spectre de hauteur en impulsion mesuré en utilisant la source ^{137}Cs .

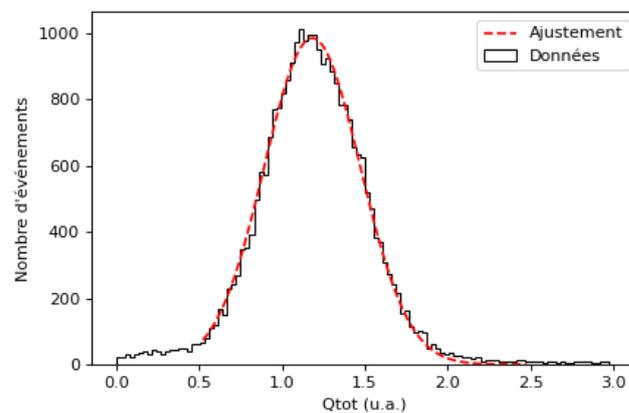


Figure III-10 Spectre de hauteur en impulsion mesuré en utilisant la source ^{241}Am .

L'absence de pic d'absorption totale et la faible résolution en énergie des scintillateurs plastiques rendent ces derniers intrinsèquement peu performants pour la spectrométrie gamma, notamment dans le cas des radio-isotopes émettant des rayonnements avec des énergies proches. Cela se traduit par la complexité d'analyse de ces spectres (déconvolution des régions d'intérêt correspondant aux énergies des fronts Compton) comme le montre la Figure III-11 en utilisant les sources ^{133}Ba , ^{60}Co et ^{152}Eu .

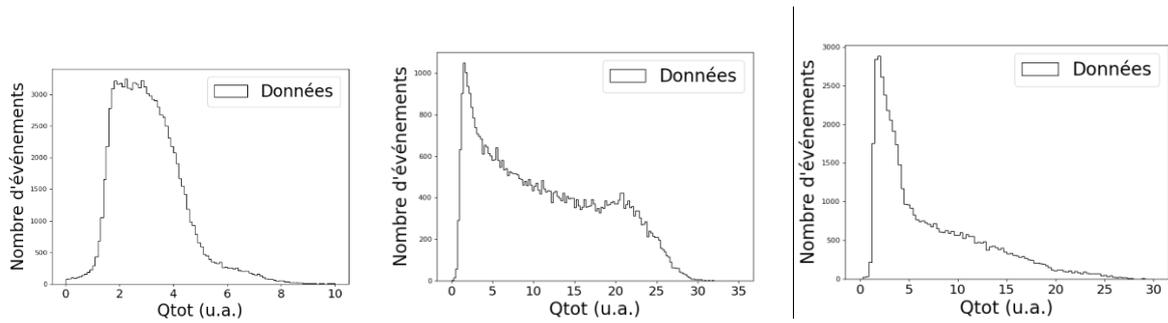


Figure III-11 De gauche à droite : spectres gamma mesurés en utilisant les sources ^{133}Ba , ^{60}Co et ^{152}Eu .

III.2.3. Simulation des spectres en énergie déposée pour des sources gamma avec MCNP6.2

Dans ce paragraphe, nous montrons les résultats de simulations des spectres en énergie en utilisant un scintillateur plastique triple discriminant exposé aux sources gamma. Le but sera d'ajuster les spectres simulés aux spectres mesurés afin d'étalonner précisément le détecteur ainsi que déterminer sa résolution en énergie en calculant les valeurs de la GEB (*Gaussian Energy Broadening*), présentée dans le paragraphe III.2.4.1. Les spectres simulés de dépôt d'énergie pour des sources gamma, présentés sur la Figure III-12 et la Figure III-13 ont été obtenus avec MCNP6.2. Le fichier d'entrée contient l'énergie des photons incidents ainsi qu'une description simplifiée de la géométrie du détecteur et de ses propriétés. Au niveau des caractéristiques introduites dans la simulation, le détecteur simulé a le même volume actif (2 cm^3) et la même composition chimique que le scintillateur plastique triple discriminant utilisé expérimentalement. Pour la carte d'énergie, nous utilisons le *tally F8*, qui permet d'enregistrer l'énergie déposée par la particule au sein d'une cellule donnée, et sans prendre en considération pour l'instant la fonction GEB.

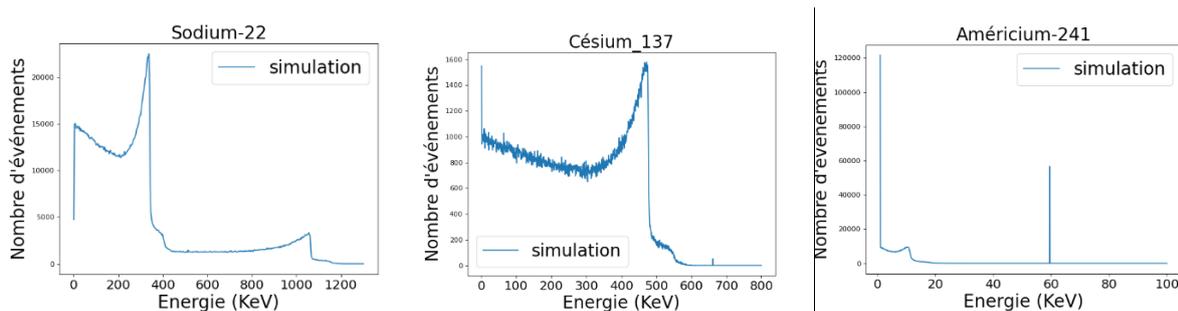


Figure III-12 De gauche à droite : spectre de dépôt d'énergie des sources ^{22}Na , ^{137}Cs , et ^{241}Am , sans prendre en compte la fonction GEB.

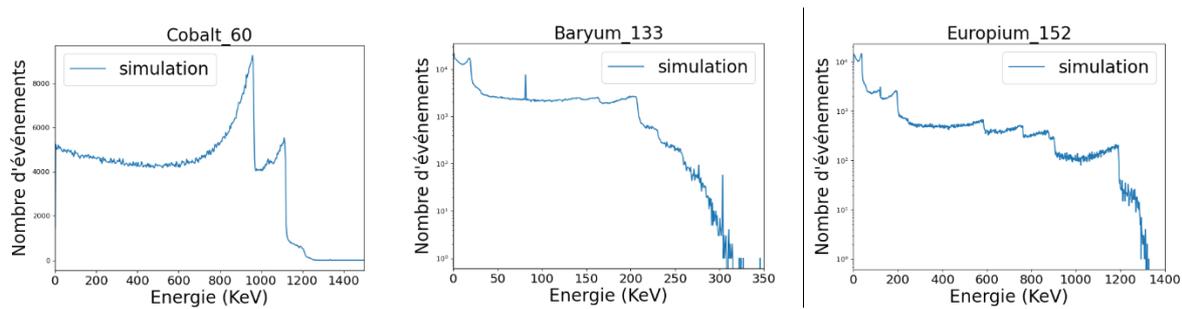


Figure III-13 De gauche à droite : spectre de dépôt d'énergie des sources ^{60}Co , ^{133}Ba , et ^{152}Eu , sans prendre en compte la fonction GEB.

D'après les spectres en énergie obtenus par simulation, nous confirmons que les rayonnements gamma provenant des sources ^{22}Na et ^{137}Cs , dont l'énergie est supérieure à 100 keV, interagissent dans le détecteur principalement par effet Compton. À l'inverse, les rayonnements gamma émis par ^{241}Am , dont l'énergie est inférieure à 100 keV, sont pour la plupart totalement absorbés par le détecteur, principalement par effet photoélectrique. Dans les spectres en énergie correspondant aux sources ^{133}Ba , ^{60}Co et ^{152}Eu , présentés sur la Figure III-13, nous remarquons que les différents fronts Compton correspondant aux principales énergies des rayonnements gamma émis sont bien séparées, ce qui n'est pas le cas dans les spectres correspondant aux valeurs de Q_{tot} mesurés (Figure III-11). Ceci s'explique par le fait que le code de calcul MCNP6.2 simule la réponse du détecteur sans tenir compte de sa résolution en énergie qui se traduit par un élargissement des pics observés. Dans le paragraphe III.2.4 nous présenterons la méthode utilisée pour prendre en compte la résolution en énergie dans les simulations, afin que ces dernières soient comparables aux données mesurées.

III.2.4. Etude de la résolution en énergie du détecteur

III.2.4.1. Méthode de détermination de la résolution en énergie décrit par *FWHM*

Pour prendre en compte la dégradation de la résolution en énergie des détecteurs dans les simulations, le code MCNP6.2 fournit une méthode d'ajustement par l'intermédiaire de la carte FT8 GEB. Cette dernière permet de reproduire l'effet d'élargissement gaussien des pics et d'aboutir à une résolution en énergie plus proche de la valeur réelle. Cette méthode consiste à calculer la largeur à mi-hauteur (FWHM) des pics mesurés, afin de déterminer un jeu de trois paramètres. Ces paramètres seront ensuite injectés dans la simulation. Dans MCNP6.2, cette méthode est implémentée par la formule (III-1) qui décrit l'élargissement à mi-hauteur des pics en énergie :

$$FWHM = a + b\sqrt{E} + cE^2 \quad (\text{III-1})$$

D'autre part, il y a plusieurs méthodes pour déterminer la largeur à mi-hauteur mesurée sur les spectres expérimentaux et cela dépend de l'énergie des photons interagissant dans le détecteur. Aux basses énergies de photons incidents (<100 keV), la résolution en énergie est calculée à partir de la

formule (III-2) où C_{max} et $FWHM$ représentent respectivement la valeur moyenne et la largeur à mi-hauteur de la gaussienne ajustée au pic d'absorption totale.

$$\frac{\Delta E}{E} = \frac{FWHM}{C_{max}} \quad (III-2)$$

Au dessus de 100 keV, la résolution en énergie est calculée à partir de la relation empirique (III-3), où C_{max} représente la valeur moyenne de la gaussienne ajustée au maximum Compton et $C_{1/2}$ la position à la moitié du maximum [14].

$$\frac{\Delta E}{E} = 1,5 \frac{C_{1/2} - C_{max}}{C_{1/2}} \quad (III-3)$$

III.2.4.2. Méthode Monte Carlo itérative pour le calcul de la GEB

Pour déterminer les paramètres de la GEB qui seront introduits dans la simulation et qui décriront la résolution en énergie du détecteur, nous appliquons une méthode itérative mentionnée dans la référence [15] et décrite par la Figure III-14.

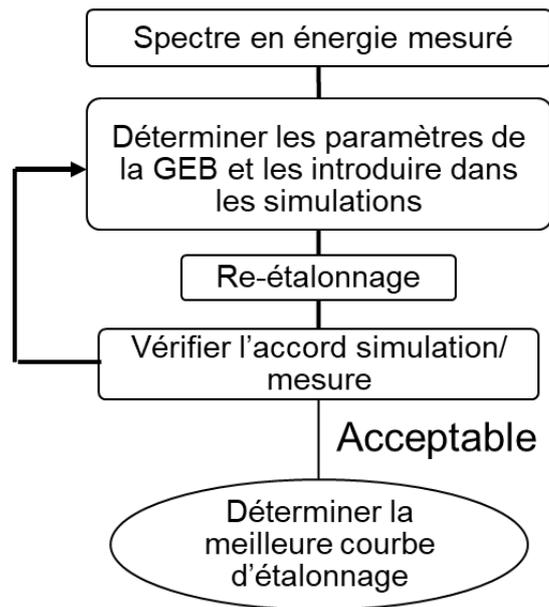


Figure III-14 Méthode itérative Monte Carlo visant à déterminer les paramètres optimaux de la GEB.

Cette méthode consiste à étalonner le détecteur, en utilisant tout d'abord des paramètres de la GEB issus de la littérature, afin de pouvoir partir d'une simulation plus proche de la réalité. Nous simulons les spectres en énergie déposée, en utilisant les mêmes sources gamma utilisées en mesure, et en introduisant dans le fichier MCNP6.2 d'entrée, les paramètres de la GEB ($a=0,0062$, $b=0,0537$, et $c=0,9957$) issus de la littérature [16]. Les spectres en énergie simulés sont exposés sur la Figure III-15 et la Figure III-16. Nous remarquons, dans les spectres présentés, l'effet de la GEB qui se traduit par un élargissement gaussien des pics d'intérêt.

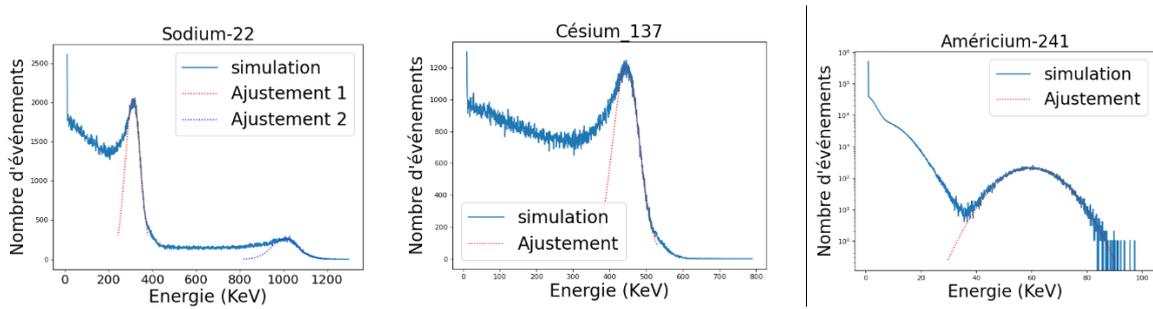


Figure III-15 De gauche à droite : spectres en énergie simulés pour le scintillateur plastique exposé aux sources ^{22}Na , ^{137}Cs et ^{241}Am .

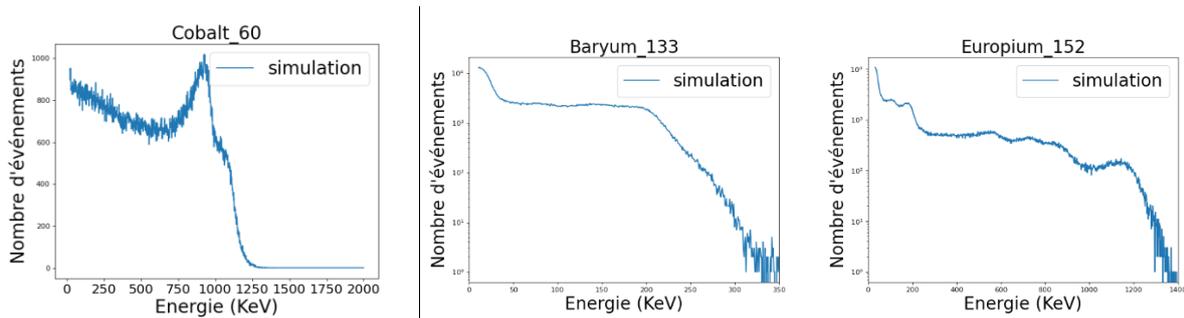


Figure III-16 De gauche à droite : spectres en énergie simulés pour le scintillateur plastique exposé aux sources ^{60}Co , ^{133}Ba , et ^{152}Eu .

À partir de ces spectres en énergie simulés des sources ^{22}Na , ^{137}Cs et ^{241}Am , en les comparant avec les spectres mesurés en Q_{tot} présentés sur la Figure III-9 et la Figure III-10, nous pouvons générer la première courbe d'étalonnage en énergie, présentée sur la Figure III-17. Ensuite, nous appliquons sur les données mesurées la courbe d'étalonnage qui relie les Q_{tot} aux énergies déposées dans le scintillateur et qui sont exprimées en keVee. Les spectres en énergies mesurés et étalonnés sont présentés sur la Figure III-18 et la Figure III-19. À l'aide des spectres mesurés et étalonnés des sources ^{22}Na , ^{137}Cs et ^{241}Am , nous calculons de nouveaux paramètres de la GEB (a , b , et c) pour réactualiser ceux utilisés dans la simulation, et qui sont issus initialement de valeurs de la littérature. Pour calculer les paramètres (a , b , et c) à partir des spectres mesurés, nous utilisons les formules (III-2) et (III-3), et nous suivons la méthode expliquée dans le paragraphe III.2.4.1.

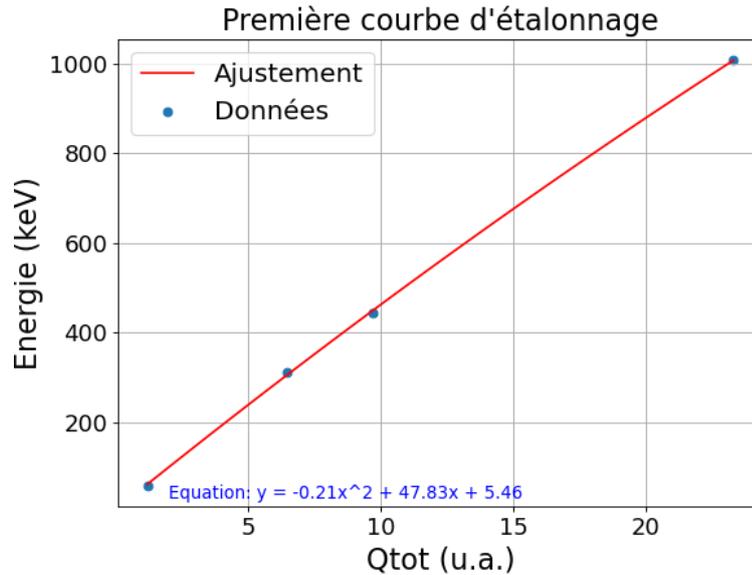


Figure III-17 Courbe d'étalonnage en équivalent électron issue de la comparaison entre les Q_{tot} mesurés et les spectres en énergie simulés.

Les paramètres de la GEB sont calculés en faisant un ajustement des points donnant l'élargissement de la gaussienne pour une énergie donnée et en appliquant l'équation (III-1) comme l'illustre la Figure III-20. Des nouveaux spectres sont simulés en utilisant les nouveaux paramètres calculés à partir des spectres mesurés ($a=0,0099$ $b=0,1050$, et $c=0,0001$). Une deuxième courbe d'étalonnage est ainsi générée en comparant les spectres mesurés avec les nouveaux spectres simulés.

Un étalonnage est de nouveau fait à chaque fois que de nouveaux paramètres de la GEB sont issus des spectres mesurés. Le processus itératif s'arrête une fois que les spectres en énergie simulés sont en accord avec les spectres en énergie mesurés. Cet accord peut être vérifié en calculant le coefficient de détermination R^2 entre les spectres simulés et mesurés.

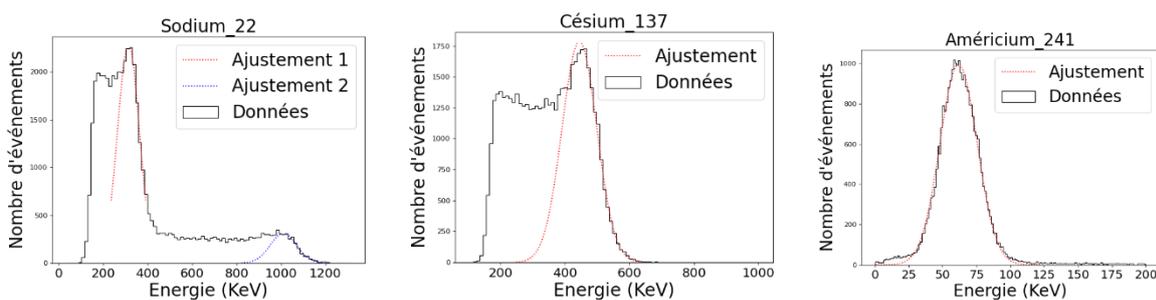


Figure III-18 De gauche à droite : spectres en énergie mesurés pour le scintillateur plastique exposé aux sources ^{22}Na , ^{137}Cs , et ^{241}Am .

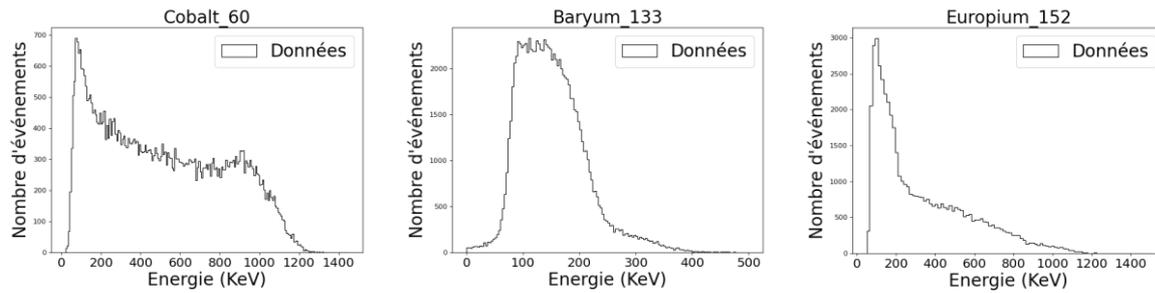


Figure III-19 De gauche à droite : spectres en énergie mesurés pour le scintillateur plastique exposé aux sources ^{60}Co , ^{133}Ba , et ^{152}Eu .

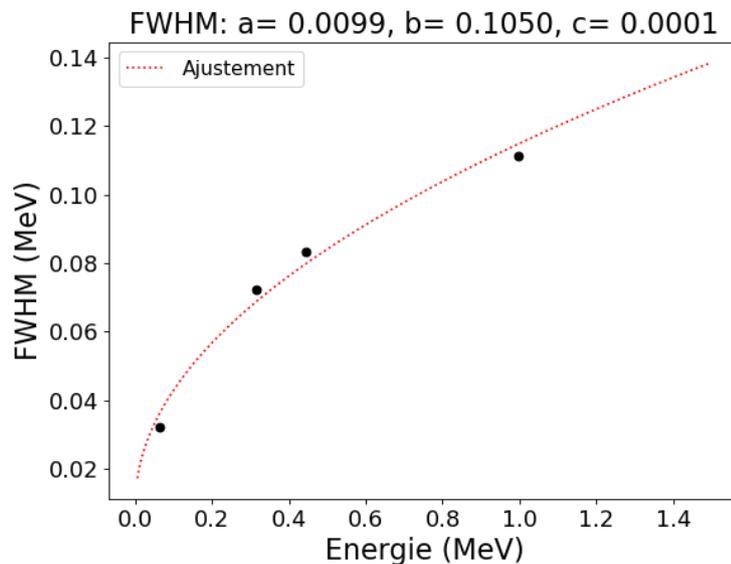


Figure III-20 Distribution de la largeur à mi-hauteur obtenue par le scintillateur en fonction de l'énergie des rayonnements gamma

Après deux itérations, nous avons obtenu un bon accord entre les spectres simulés et les spectres mesurés, comme l'illustrent la Figure III-22 pour la source ^{22}Na ($R^2 = 0,966$), la Figure III-23 pour la source ^{137}Cs ($R^2 = 0,962$), et la Figure III-24 pour la source ^{241}Am ($R^2 = 0,899$). La courbe d'étalonnage finalement obtenue est présentée sur la Figure III-21. Les résultats obtenus montrent que cette méthode itérative peut être utilisée pour étalonner avec précision l'énergie du détecteur et rapprocher la simulation du détecteur de la réalité expérimentale. Une fois l'étude de la réponse du scintillateur plastique aux rayonnements gamma achevée, nous focaliserons la suite des travaux sur la réponse de ces détecteurs aux neutrons. Le but sera de déterminer la réponse lumineuse des protons de recul induits par les neutrons.

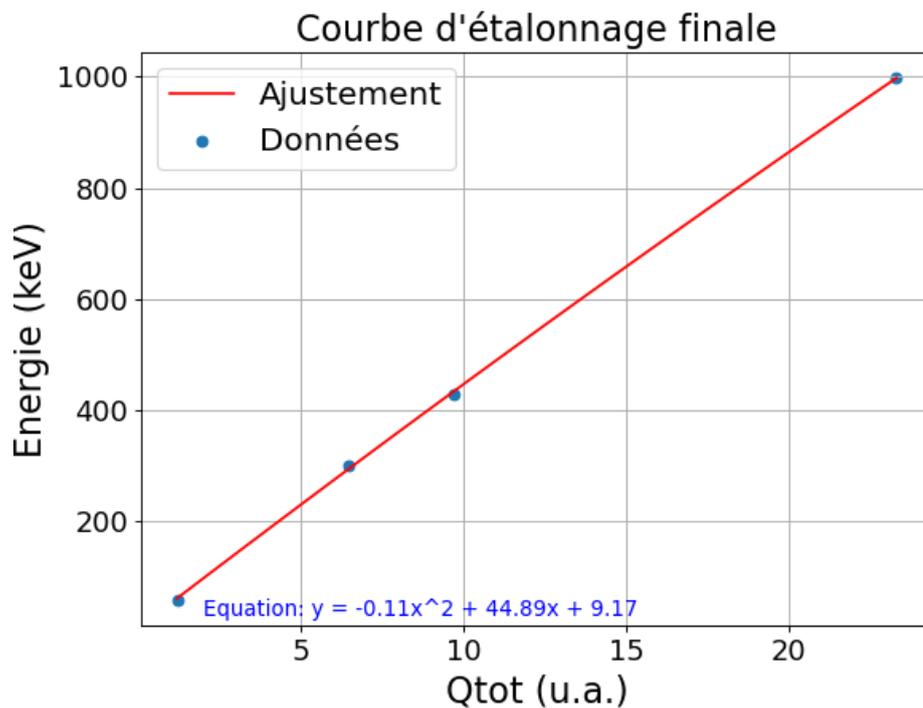


Figure III-21 Courbe d'étalonnage finale en équivalent électron issue de la comparaison entre les Qtot mesurés et les spectres en énergie simulés

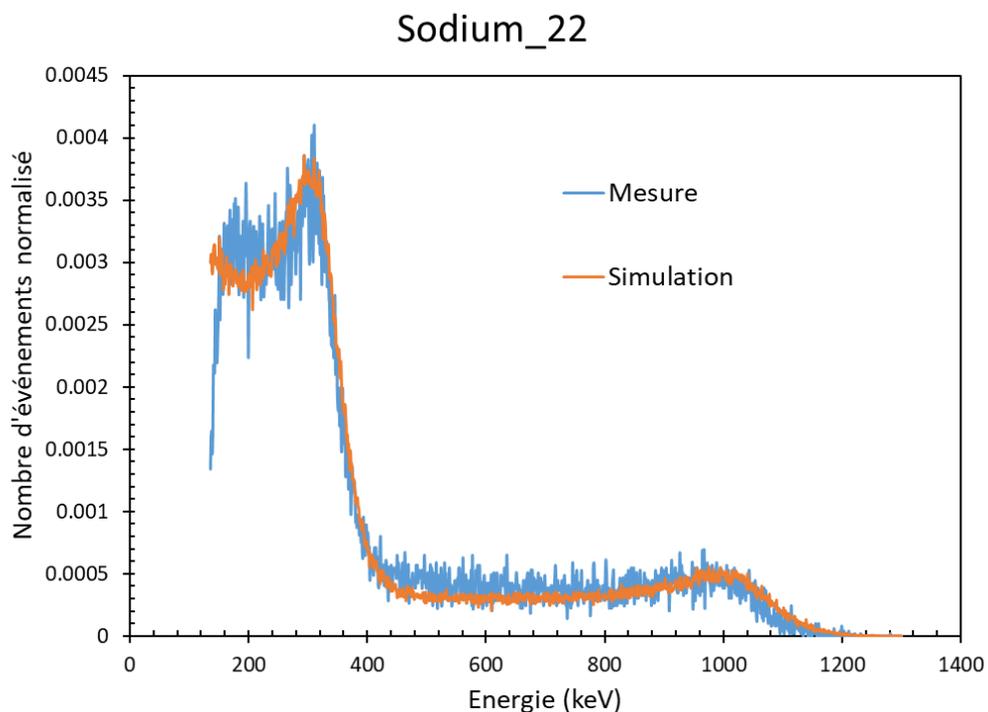


Figure III-22 Comparaison entre les spectres en énergie du ^{22}Na mesuré et simulé

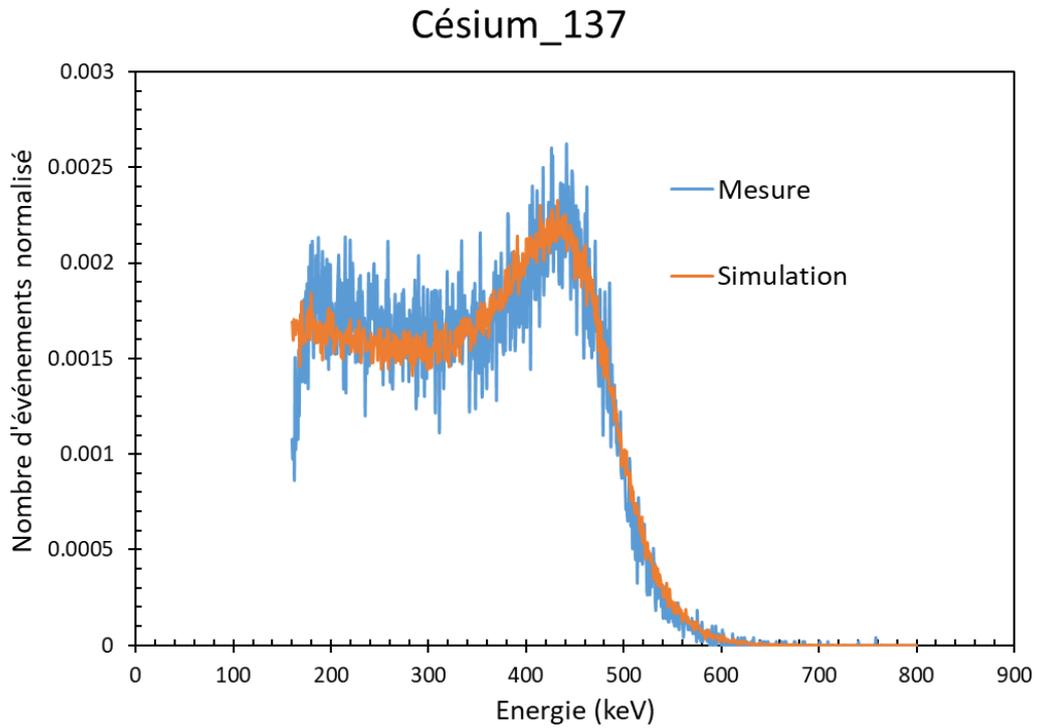


Figure III-23 Comparaison entre les spectres en énergie du ^{137}Cs mesuré et simulé

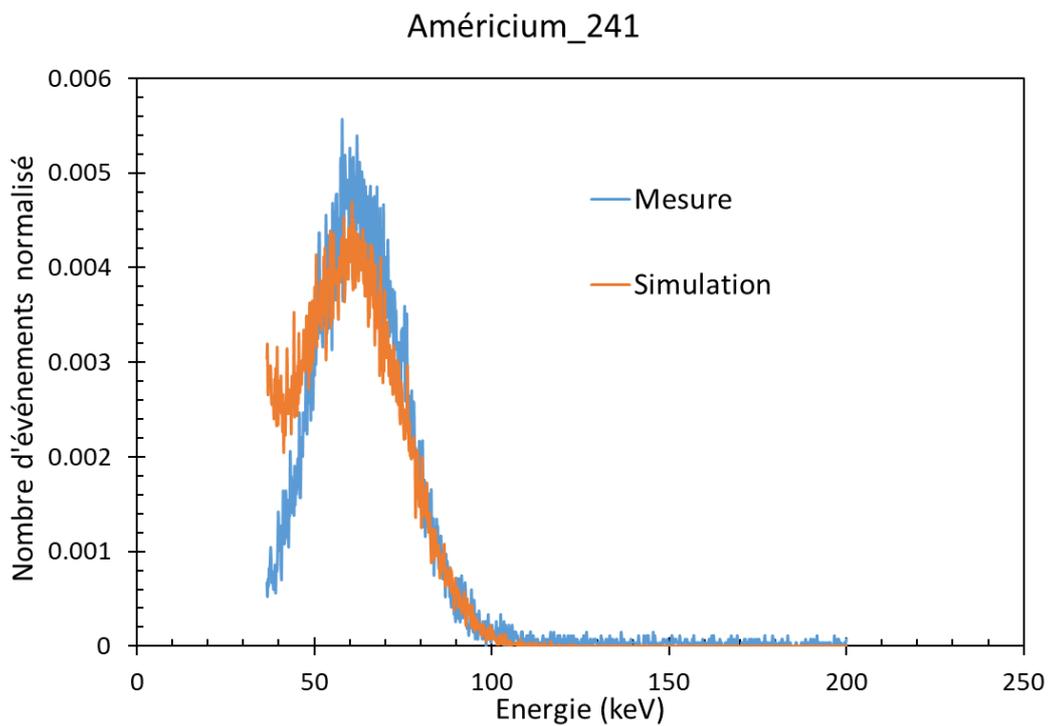


Figure III-24 Comparaison entre les spectres en énergie de l' ^{241}Am mesuré et simulé

III.3. Spectrométrie neutronique appliquée sur des données expérimentales

III.3.1. Détermination de la réponse lumineuse de l'énergie déposée par les protons dans le scintillateur

Les neutrons interagissent dans le scintillateur principalement par diffusion élastique sur les protons. Dans ce paragraphe, nous présentons les résultats des expériences effectuées pour déterminer la réponse lumineuse (exprimée en MeVee) pour chaque dépôt d'énergie par un proton (exprimée en MeVep). Étant donné qu'il n'existe pas de sources radioactives naturelles ou artificielles de neutrons mono-énergétiques, nous avons eu recours au générateur de champs neutroniques de l'installation Amande de l'IRSN à Cadarache [17]. Ce générateur délivre des neutrons à une énergie spécifique. Afin de déterminer plus précisément et de manière complémentaire la réponse lumineuse des protons, nous avons également utilisé le générateur de protons mono-énergétiques de la plateforme Cyréc de l'IPHC (CNRS) à Strasbourg.

III.3.1.1. Mesure de la réponse lumineuse du proton en utilisant le générateur de champs neutroniques

III.3.1.1.1. Présentation de l'installation Amande

L'installation Amande [17] a été mise en service en 2005. Elle repose sur l'utilisation d'un accélérateur d'ions d'hydrogène et deutérium qui produit des champs neutroniques à plusieurs énergies spécifiques sur une gamme en énergie étendue, comprise entre 2 keV et 20 MeV. Les ions d'hydrogène sont accélérés à une énergie donnée et dirigés sur une cible constituée d'un dépôt fin sur un support métallique, ce qui produit des neutrons. L'énergie des neutrons générés dépend de la particule accélérée (protons ou deutons), de son énergie mais aussi de la nature du dépôt sur la cible. Ce dépôt peut être formé de scandium, de lithium ou de titane dans lequel est inclus du tritium ou du deutérium. L'énergie des neutrons produits varie également en fonction de l'angle d'émission par rapport à la direction du faisceau d'ions. La gamme d'énergie des neutrons produits et les réactions nucléaires associées sont présentées dans le Tableau III-3. Le faisceau d'Amande émet également des rayonnements gamma qui sont créés au même moment que les neutrons lors de l'interaction du faisceau de protons avec la cible. Un soin particulier a été apporté au hall d'expérimentation de 400 m² d'Amande. Afin de réduire la quantité de neutrons diffusés polluant les champs neutroniques mono-énergétiques, un minimum de matière a été placée dans le hall expérimental et les limites du hall ont été optimisées. Ainsi, la cible est située à 7,2 m au-dessus du sol et le hall est délimité par des parois métalliques de faible épaisseur avec lesquelles les neutrons interagissent peu, comme le montre la Figure III-25.

Faisceau de particules incidentes	Cibles	Réactions	Energie des particules incidentes	Energie des neutrons dans l'axe du faisceau de particules (0°)	Energie des neutrons (recommandé par l'ISO)
Protons	Scandium	$^{45}\text{Sc}(p,n)^{45}\text{Ti}$	2,91 MeV à 2,95 MeV	2 keV à 52 keV	24 keV
Protons	Lithium	$^7\text{Li}(p,n)^7\text{Be}$	1,9 MeV à 2,5 MeV	120 keV à 650 keV	144 keV 250 keV 565 keV
Protons	Tritium	$^3\text{H}(p,n)^3\text{He}$	1,15 MeV à 4 MeV	290 keV à 3,2 MeV	1,2 MeV 2,5 MeV 2,8 MeV
Deutons	Deutérium	$^2\text{H}(d,n)^3\text{He}$	200 keV à 4 MeV	2,45 MeV à 7,3 MeV	5 MeV
Deutons	Tritium	$^3\text{H}(d,n)^4\text{He}$	100 keV à 4 MeV	14,7 MeV à 20,8 MeV	14,8 MeV 19 MeV

Tableau III-3 Les réactions nucléaires permettant de créer des champs neutroniques mono-énergétiques sur l'installation Amande avec le domaine en énergie associé pour ces champs dans l'axe du faisceau d'ions. © IRSN

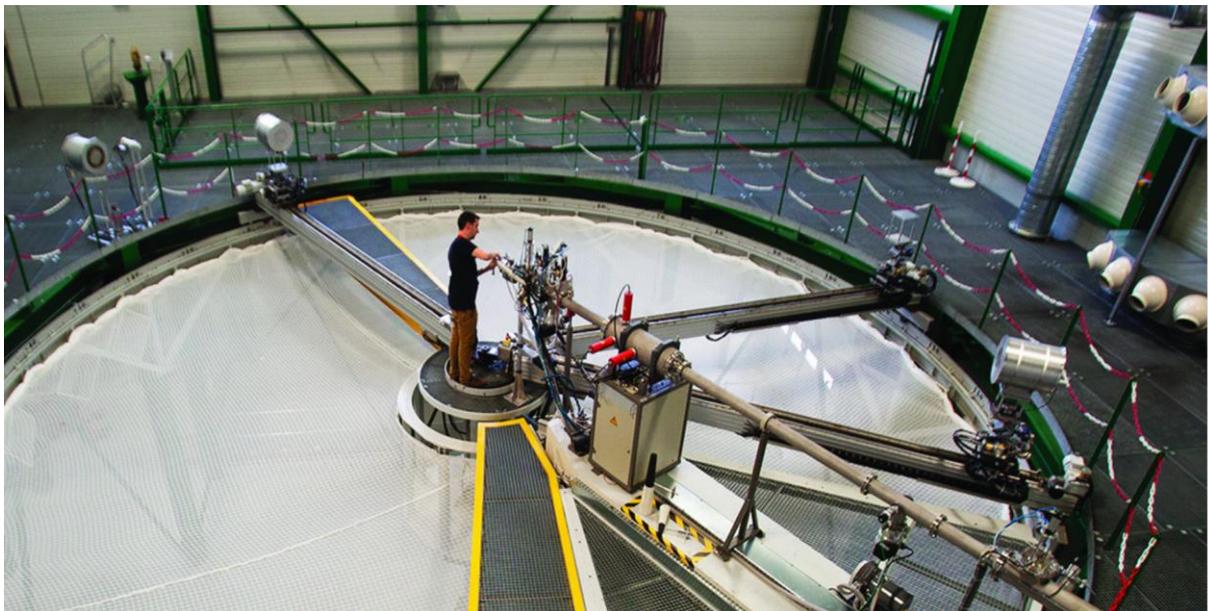


Figure III-25 Vue d'ensemble du hall d'irradiation. © IRSN

III.3.1.1.2. Résultats expérimentaux de la campagne de mesures

Durant cette campagne de mesures, deux types de scintillateurs plastiques, un double et un triple discriminant ont été exposés à 3 m de la source de neutrons mono-énergétiques. Les deux

scintillateurs ont été exposés à onze énergies de neutrons incidents. Les énergies et l'angle de l'emplacement du détecteur par rapport à l'axe du faisceau sont présentés dans le Tableau III-4.

Angle en degrés	0°	40°	90°	105°	115°	140°
Energie (keV)	250	191	—	—	—	—
	565	480	—	—	—	—
	1200	953	400	320	268	—
	2500	2062	1063	—	—	—
	5000	4404	—	—	—	—
	15100	14800	—	—	—	13400

Tableau III-4 Energies des neutrons incidents émis dans l'axe du faisceau (en rouge) et énergies des neutrons incidents sur le détecteur positionné aux différents angles (en noir).

Pour chaque énergie de neutron incident, les diagrammes de *Pulse Shape Discrimination* (PSD) illustrés sur la Figure III-26 et la Figure III-27 présentent la distribution du nombre des événements mesurés avec le scintillateur double discriminant, en fonction de l'énergie et du facteur de discrimination n/γ (Q_{tail}/Q_{tot}). La référence [18] offre une analyse plus détaillée de l'approche employée pour la discrimination n/γ , et elle expose en détails le processus de calcul des paramètres Q_{tail} et Q_{tot} . Pour les énergies des neutrons incidents comprises entre 191 et 480 keV, nous remarquons la présence d'une seule composante qui est associée à la composante gamma. A ces énergies, le détecteur n'est pas sensible aux neutrons en raison de l'effet du seuil électronique. Dans les diagrammes de PSD de la Figure III-27, nous remarquons l'apparition d'une deuxième composante due à la détection des neutrons rapides par interaction avec les protons. Pour cette raison, le seuil bas en énergie des neutrons détectés est évalué aux alentours de 953 keV.

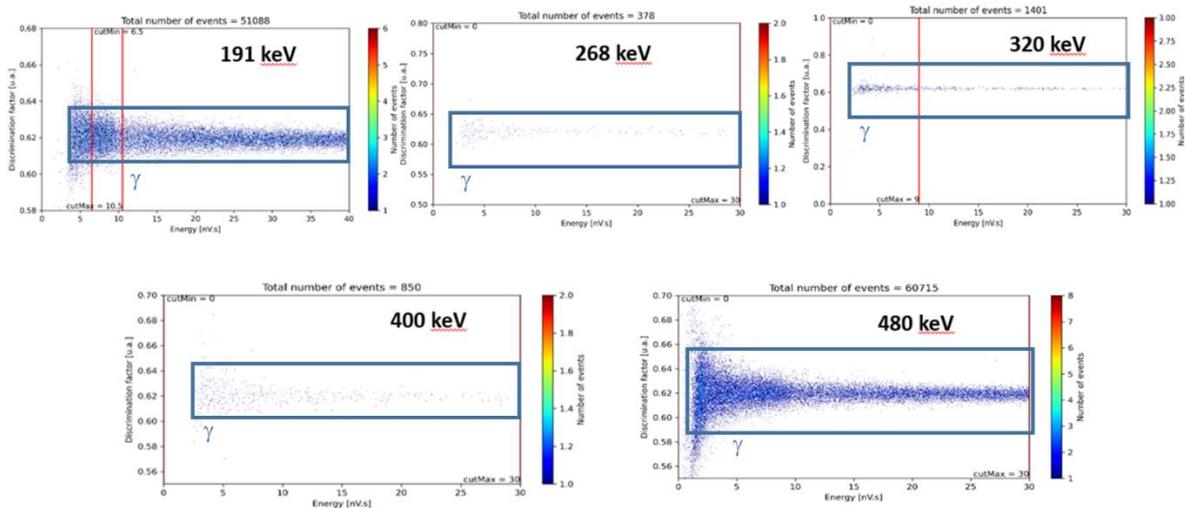


Figure III-26 Histogrammes bidimensionnels présentant la distribution du nombre d'évènements en fonction de l'énergie et du facteur de discrimination (Q_{tail}/Q_{tot}) pour la gamme d'énergie des neutrons incidents comprise entre 191 et 480 keV. Ces données sont obtenues avec le scintillateur double discriminant.

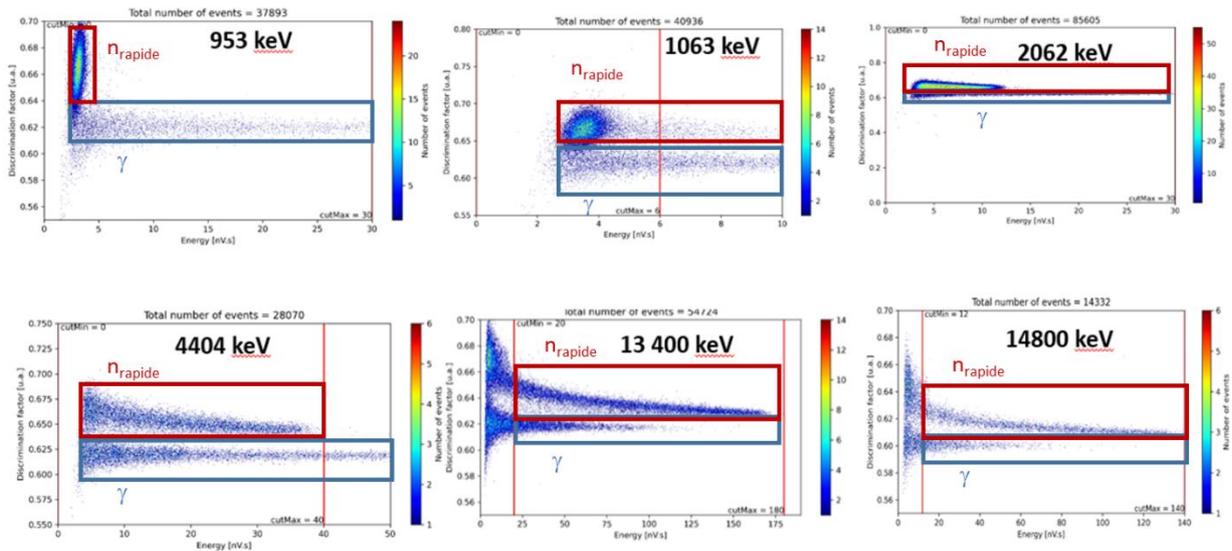


Figure III-27 Histogrammes bidimensionnels présentant la distribution du nombre d'évènements en fonction de l'énergie et du facteur de discrimination ($Q_{\text{tail}}/Q_{\text{tot}}$) pour la gamme en énergie des neutrons incidents comprise entre 953 et 14800 keV. Ces données sont obtenues avec le scintillateur double discriminant.

Les histogrammes présentés sur la Figure III-28 et la Figure III-29 correspondent à des données obtenues avec le scintillateur plastique triple discriminant ($n_{\text{rapide}}/n_{\text{thermique}}/\gamma$) dopé au ${}^6\text{Li}$. Pour les énergies des neutrons comprises entre 191 et 953 keV, nous retrouvons la composante gamma (en bas) et une deuxième composante (en haut). Cette dernière, pour toutes les énergies entre 191 et 953 keV, se trouve dans le même canal dont la valeur brute en charge totale est évaluée autour de 8 nV.s. Cette caractéristique montre que cette composante est due à la capture du neutron thermique par le ${}^6\text{Li}$ via la réaction. ${}^6\text{Li}(n, \alpha){}^3\text{H}$. Dans les histogrammes présentés sur la Figure III-29, pour les énergies de neutrons incidents comprises entre 1063 keV et 14800 keV, nous retrouvons la composante gamma (en bas) et la composante due aux neutrons rapides (en haut). Ceci montre que le seuil bas en énergie des neutrons rapides détectés par interaction avec les protons se situe environ à 1063 keV. Par ailleurs, il est important de noter que les composantes gamma pour les trois énergies de neutrons incidents 320 keV, 400 keV et 953 keV sont moins peuplées que pour les autres énergies de neutrons incidents. Ceci s'explique par une durée d'exposition réduite.

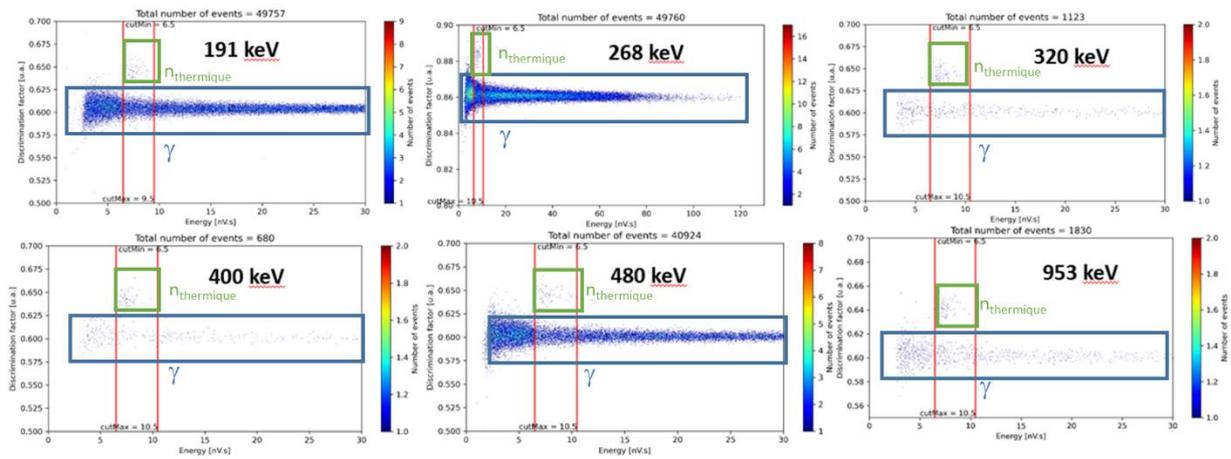


Figure III-28 Histogrammes bidimensionnels présentant la distribution du nombre d'évènements en fonction de l'énergie et du facteur de discrimination ($Q_{\text{tail}}/Q_{\text{tot}}$) pour la gamme d'énergie des neutrons incidents comprise entre 191 et 953 keV. Ces données sont obtenues avec le scintillateur triple discriminant.

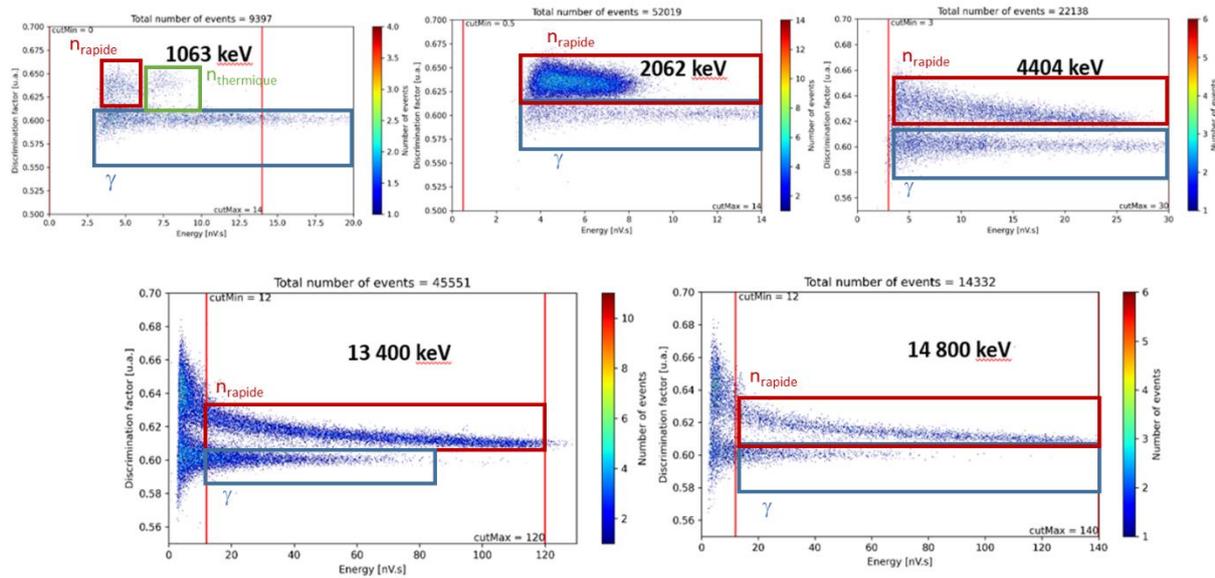


Figure III-29 Histogrammes bidimensionnels présentant la distribution du nombre d'évènements en fonction de l'énergie et du facteur de discrimination (Q_{tail}/Q_{tot}) pour la gamme d'énergie des neutrons incidents comprise entre 1063 et 14800 keV. Ces données sont obtenues avec le scintillateur triple discriminant.

Les résultats obtenus durant cette campagne de mesures ont permis de déterminer une fonction de réponse pour chacun des deux scintillateurs plastique double et triple discriminant et pour une large gamme d'énergie de neutrons incidents. Ces fonctions de réponse sont illustrées sur la Figure III-30. Chaque courbe représente la distribution en énergie des protons de recul dus à l'interaction d'un neutron dans le détecteur à une énergie donnée.

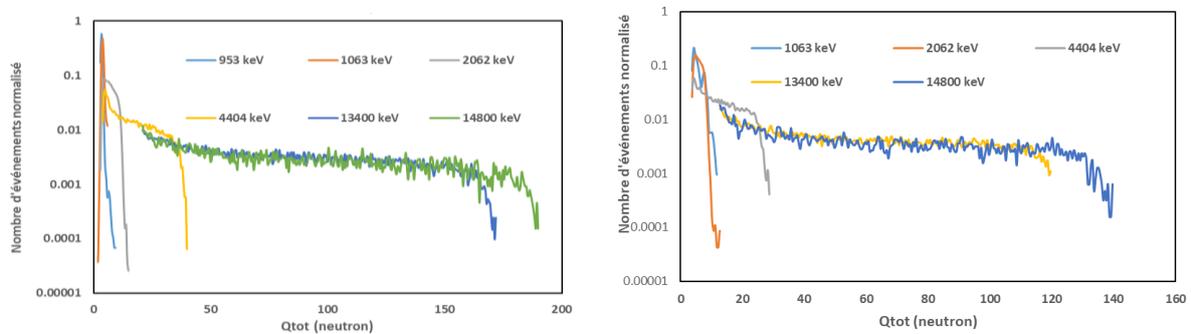


Figure III-30 Matrice de réponse mesurée à l'installation Amande avec le générateur de neutrons mono-énergétiques pour un scintillateur plastique de 2 cm³ double discriminant (à gauche) et pour un scintillateur de 2 cm³ triple discriminant (à droite).

Les valeurs en charge totale (Q_{tot}) de la fonction de réponse du scintillateur plastique triple discriminant présentée dans la Figure III-30 (à droite) sont converties en énergie keVee en utilisant la courbe d'étalonnage faite avec les sources gamma (²²Na et ¹³⁷Cs) préalablement à la campagne de mesures sur l'installation Amande. Cette courbe d'étalonnage est représentée par l'équation (III-4) avec E l'énergie exprimée en keVee.

$$E = 45.65 Q_{tot} - 0.496 \tag{III-4}$$

La Figure III-31 montre les réponses du scintillateur mesurées et exprimées en keVee, pour des neutrons d'énergies 1063 keV, 2062 keV, 4404 keV, 13400 keV, et 14800 keV. Les points d'inflexion des gaussiennes ajustées sur le bord de chaque spectre de protons de recul sont utilisés pour déterminer les points d'étalonnage comme le montre la Figure III-31. La courbe d'étalonnage reliant la réponse lumineuse (exprimée en MeVee) pour chaque dépôt d'énergie par un proton (exprimée en MeVep) est présentée dans la Figure III-32. Les données ont été ajustées en utilisant la fonction exponentielle (III-5) basée sur la loi empirique décrite dans la référence [19].

$$L = aE_p - b(1 - e^{-cE_p}) \quad (III-5)$$

Avec L , est la réponse lumineuse exprimée en MeVee, E_p , est l'énergie des protons de recul exprimée en MeVep et a , b , et c sont les paramètres libres à ajuster. Ces paramètres sont calculés pour avoir les valeurs suivantes : $a = 0,57$, $b = 2,50$ et $c = 0,18$.

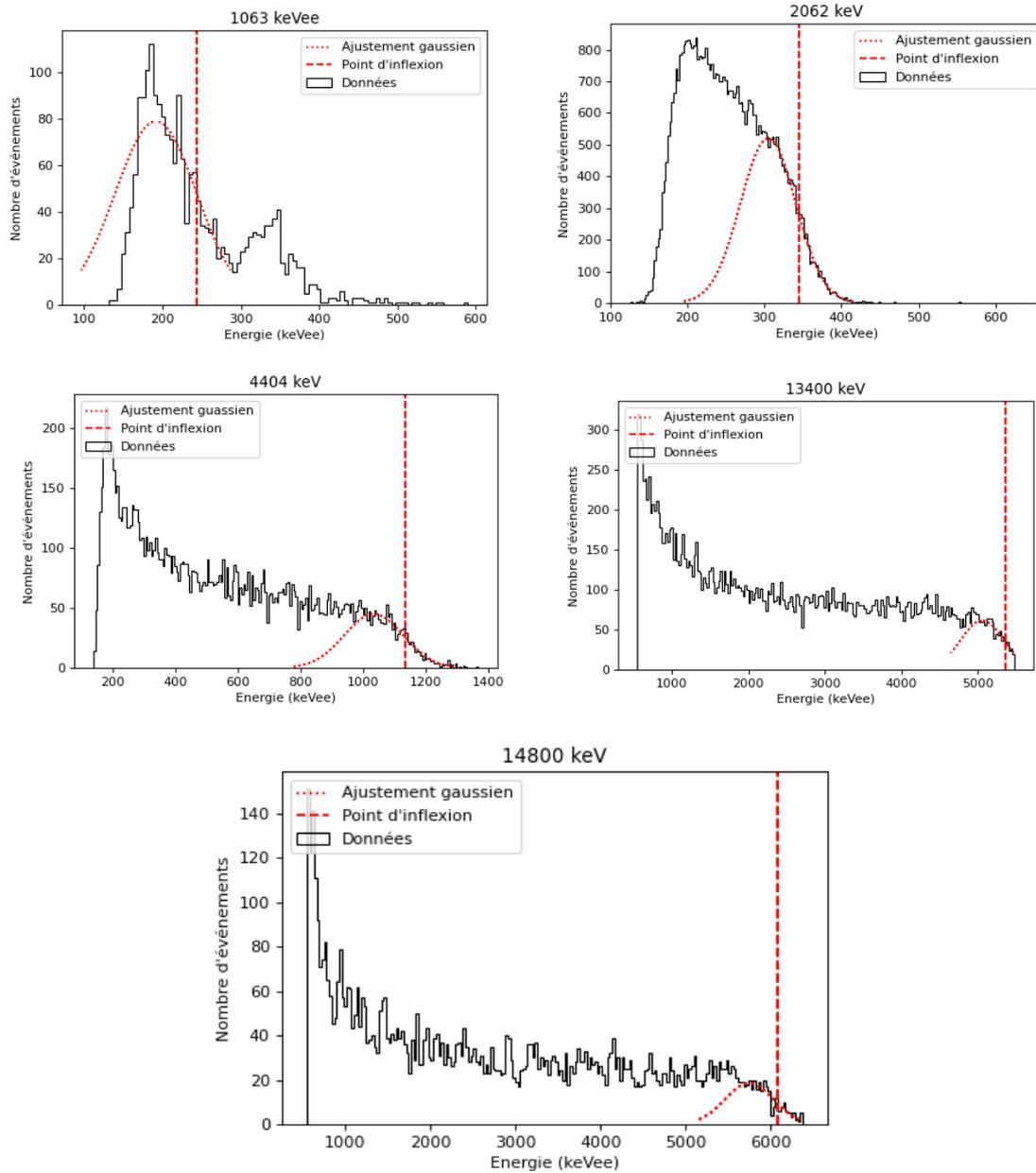


Figure III-31 Fonction de réponse mesurée du scintillateur plastique triple discriminant.

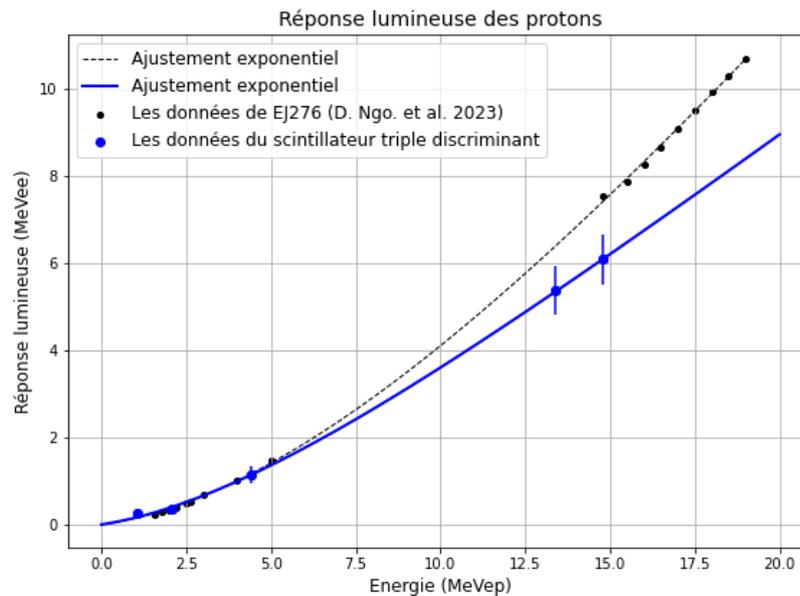


Figure III-32 Rendement lumineux en fonction de l'énergie déposée par les protons de recul dans le scintillateur triple discriminant de 2 cm³ en utilisant les données extraites de l'étalonnage réalisé avec le générateur de champs neutroniques (ligne bleue), comparé aux résultats rapportés dans [20] pour un scintillateur cylindrique EJ276 de diamètre 2,54 cm et de hauteur 2,54 cm (ligne noire).

Dans le paragraphe (III.3.1.2), nous montrerons les résultats obtenus en utilisant une deuxième méthode pour déterminer la relation entre le dépôt d'énergie par un proton (exprimée en MeVep) et la réponse lumineuse obtenue (exprimée en MeVee). Cette méthode est employée en ayant recours à un faisceau de protons mono-énergétiques.

III.3.1.2. Mesure de la réponse lumineuse des protons en utilisant le faisceau de protons mono-énergétiques

III.3.1.2.1. Présentation de la plateforme Cyréc

Le cyclotron Cyréc à Strasbourg (CYclotron pour la ReCherche et l'Enseignement) [21] a été mis en fonctionnement en 2018. C'est un accélérateur de protons de 24 MeV qui permet de produire des radio-isotopes pour l'étude du vivant, l'aide au diagnostic et l'évaluation de nouveaux médicaments. Le cyclotron TR24 montré sur la Figure III-33 permet de produire des protons d'énergie de 12 MeV à 25 MeV, avec une intensité réglable de quelques nA à 300 μ A. Il possède deux sorties : la première est dédiée à la production de radio-isotopes, la deuxième à l'irradiation par un faisceau de protons. Le spectre initial en énergie du faisceau de protons peut être diminué à l'aide d'écrans en aluminium de différentes épaisseurs.



Figure III-33 Photographie du cyclotron TR24 de la plateforme Cyréc.

III.3.1.2.2. Résultats expérimentaux de la campagne de mesures

Nous avons utilisé le faisceau de protons pour irradier le scintillateur triple discriminant. Il convient de noter que l'installation Cyréc offre une possibilité de collimation du faisceau à l'aide d'un système automatisé. Cela permet un contrôle précis sur la direction et la largeur du faisceau émis. Nous avons positionné le scintillateur face à un collimateur de 3 mm à travers duquel les protons sont émis, comme le montre la Figure III-34. L'énergie initiale du faisceau de protons peut être variée entre 25 MeV et 0,81 MeV à l'aide de dégradeurs en aluminium de différentes épaisseurs. Le scintillateur avait été exposé à neuf énergies de protons différentes : 0,81 MeV, 3 MeV, 3,92 MeV, 5,97 MeV, 7,24 MeV, 10 MeV, 13,7 MeV, 14,33 MeV et 19,97 MeV. Les spectres en énergie des protons de recul mesurés pour chaque énergie sont présentés sur la Figure III-35.



Figure III-34 Photographie montrant le montage expérimental avec la boîte à gauche où l'ensemble du prototype est placé, ainsi qu'un abri pour la lumière visible. À droite, une photographie rapprochée du scintillateur qui est positionné en face d'un collimateur de 3 mm à travers duquel les protons mono-énergétiques sont émis.

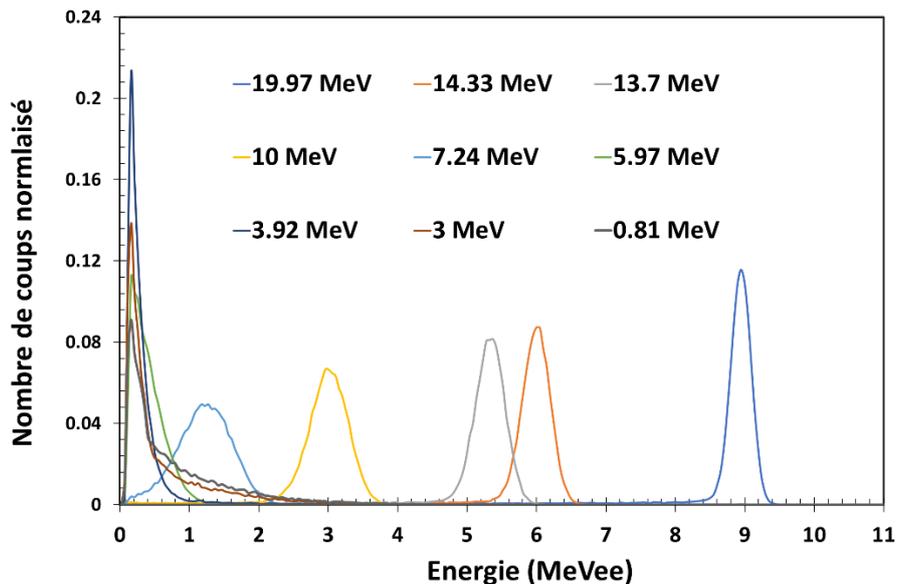


Figure III-35 Fonction de réponse du scintillateur triple discriminant mesurée en utilisant le faisceau de protons mono-énergétiques de l'installation Cyréc.

Parmi les énergies des protons émis, seuls les protons d'énergie supérieure à 5,97 MeV ont pu être détectés. En revanche, nous savons que le seuil bas de détection des neutrons (et donc des protons) est de 1 MeV, comme expliqué dans le paragraphe III.3.1.1.2. Le fait que des protons d'énergie inférieure à 5,97 MeV ne soient pas détectés sur Cyréc s'explique par la présence de couches de téflon et d'aluminium qui entourent le scintillateur et avec lesquelles les protons interagissent en déposant une partie de leur énergie avant d'atteindre le scintillateur. Ce phénomène réduit l'énergie des protons incidents, ce qui amène leur énergie sous le seuil bas de détection pour les énergies des protons inférieurs à 5,97 MeV. Pour les protons d'énergie supérieure à 5,97 MeV, ce phénomène rend leurs énergies inconnues à leur entrée dans le scintillateur. Pour cette raison, il est nécessaire d'étudier l'effet de la présence des matériaux entre le faisceau de protons et le scintillateur avant de reproduire la courbe d'étalonnage qui relie la réponse lumineuse (exprimée en MeVee) à l'énergie déposée par le proton (exprimée en MeVep).

III.3.1.2.3. Etude par simulation de l'effet de la présence des matériaux entre le scintillateur et le faisceau de protons

Nous avons utilisé le code de calcul MCNP6.2 pour réaliser des simulations visant à modéliser un scintillateur triple discriminant de dimensions 2 cm^3 . Pour étudier l'effet de la présence de couches de téflon et d'aluminium sur l'énergie des protons incidents sur le scintillateur, nous avons effectué une série de simulations en faisant varier les épaisseurs de ces matériaux. De plus, nous avons fait varier la distance entre le scintillateur et le faisceau afin d'étudier l'impact de la présence de l'air sur les protons. Les graphiques présentant l'énergie déposée par les protons en fonction de leur énergie incidente et des matériaux traversés sont illustrés dans la Figure III-36. Nous avons observé que l'aluminium, en tant que matériau le plus dense parmi les trois étudiés, a l'impact le plus significatif sur l'énergie moyenne déposée par les protons. De plus, nous avons constaté qu'une petite variation dans l'épaisseur des trois matériaux (0,1 mm pour le téflon et l'aluminium et 0,5 cm pour l'air) a un effet notable sur la quantité d'énergie moyenne déposée par les protons. Dans notre configuration de mesure, il existe 10 mm d'air, 0,1 mm de téflon et 0,07 mm d'aluminium entre le scintillateur et le

faisceau de protons. En prenant en compte l'impact de la présence de ces trois matériaux, l'énergie déposée par les protons dans ces matériaux, en commençant par l'air, suivi du téflon et enfin de l'aluminium, est présentée dans la Figure III-37. Les énergies des protons incidents sur le scintillateur sont répertoriées dans le Tableau III-5.

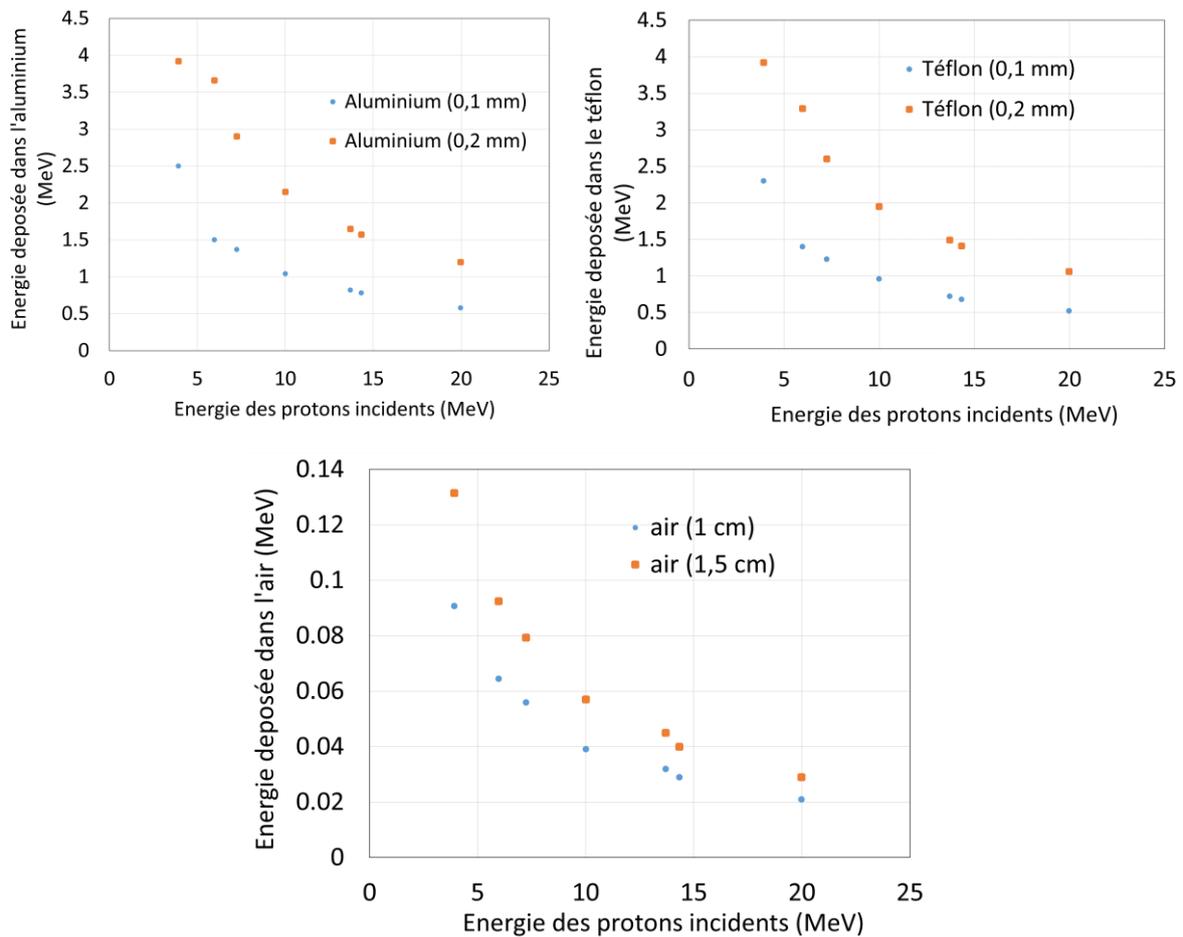


Figure III-36 Energie déposée en fonction de l'énergie des protons incidents dans les différents matériaux (aluminium, téflon, et air) qui entourent le scintillateur.

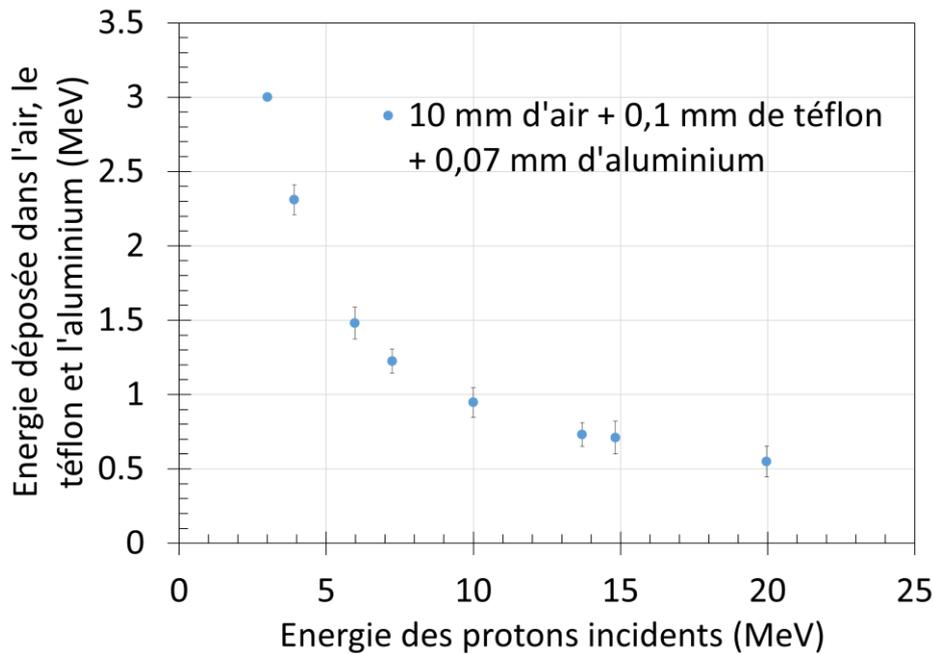


Figure III-37 Energie déposée dans l'air, le téflon et l'aluminium par les protons après avoir traversé 10 mm d'air, 0,1 mm de téflon et 0,07 mm d'aluminium.

L'énergie des protons émis par le faisceau (MeV)	3,00	3,92	5,97	7,24	10,00	13,70	14,83	19,97
L'énergie des protons incidents sur le scintillateur (MeV)	0	1,61 ± 0,1	4,49 ± 0,107	6,01 ± 1,08	9,05 ± 0,1	12,97 ± 0,08	14,12 ± 0,109	19,42 ± 0,104

Tableau III-5 Energie des protons incidents sur le scintillateur en fonction de l'énergie des protons principalement émis par le faisceau, après avoir interagi avec les trois matériaux suivants : l'air, le téflon et l'aluminium.

III.3.1.3. Comparaison entre les deux réponses lumineuses

En prenant en compte les énergies des protons incidents sur le scintillateur présentées dans le Tableau III-5 et les réponses lumineuses des protons montrées sur la Figure III-35, nous avons obtenu les points d'étalonnage qui décrivent la réponse lumineuse obtenue suite à un dépôt d'énergie par les protons. Ces points sont présentés par les points verts sur la Figure III-38. Nous remarquons que les points d'étalonnage obtenus en utilisant le faisceau de protons mono-énergétiques sont en bon accord avec la courbe d'étalonnage issue des données mesurées avec le générateur de champs neutroniques. Ce résultat est conforme aux attentes, puisque les neutrons interagissent en mettant en mouvement un noyau d'hydrogène (proton de recul) lors de leur interaction. Par conséquent, ces protons de recul ont des valeurs identiques de pouvoir d'arrêt (dE/dx) et de production de lumière tout au long de

leur trajet, par rapport à des protons incidents directement produits par un accélérateur à la même énergie. Ces résultats permettent de vérifier la possibilité d'utiliser un faisceau de protons pour déterminer directement la réponse lumineuse du proton dans le scintillateur.

Les principaux avantages de cette méthode, qui est une approche complémentaire par rapport à une étape d'étalonnage basée sur une source de neutrons mono-énergétiques, sont les suivants :

- La forme gaussienne de la réponse lumineuse qui facilite la détermination des points d'étalonnage et la résolution en énergie.
- L'absence des événements parasites tels que les rayonnements gamma ce qui permet une mesure plus précise des protons et ne nécessite pas de passer par une étape de discrimination entre protons et rayonnements gamma.
- La collimation automatique du faisceau est une fonctionnalité essentielle pour éventuellement étalonner le scintillateur pixellisé, dont la taille des pixels est de $3,6 \times 3,6 \times 3,6 \text{ mm}^3$. Des informations supplémentaires sur ce scintillateur pixellisé, qui constitue le cœur du spectro-imageur, sont présentées dans le chapitre suivant.
- La disponibilité de données d'étalonnage pour des énergies de protons comprises entre 5 MeV et 13 MeV, pour lesquelles la physique des générateurs de neutrons ne permet pas leur production.

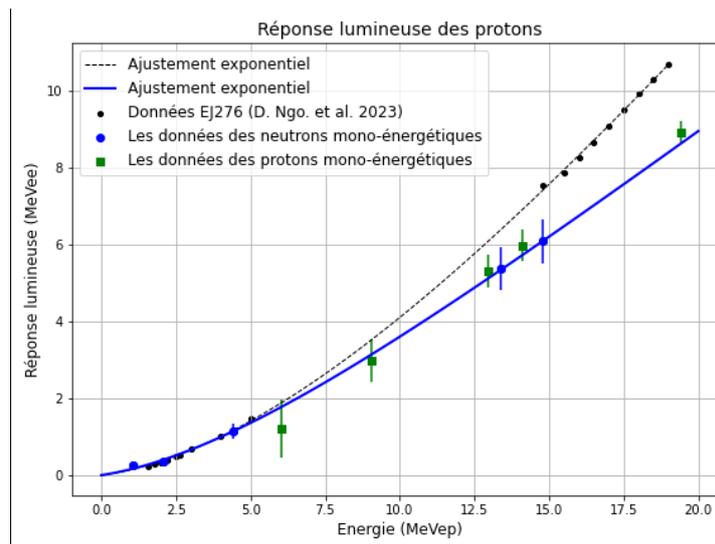


Figure III-38 Rendement lumineux en fonction de l'énergie déposée par les protons de recul dans le scintillateur triple discriminant de 2 cm^3 en utilisant les données extraites de l'étalonnage réalisé avec la source de neutrons mono-énergétiques (ligne bleue), comparé aux données extraites de l'étalonnage réalisé avec le faisceau de protons (points verts), et aux résultats rapportés dans [20] pour un scintillateur cylindrique EJ276 de $2,54 \text{ cm} \times 2,54 \text{ cm}$ (ligne noire).

III.3.2. Application des codes de déconvolution sur des données mesurées

Dans ce paragraphe, nous montrerons que le prototype formé de scintillateur triple discriminant de 2 cm^3 couplé à un SiPM peut être utilisé pour reconstruire le spectre en énergie du ^{252}Cf ainsi que ceux plus complexes, correspondant à des sources de neutrons (α, n). Nous montrerons également la reconstruction d'un spectre de neutrons mono-énergétiques mesuré lors de la campagne de mesures

à l'installation Amande. Ceci est réalisé en utilisant, dans l'algorithme MLEM, une fonction de réponse simulée optimisée par la fonction de réponse mesurée présentée sur la Figure III-30.

III.3.2.1. Spectres de protons de recul mesurés pour les deux sources neutrons ^{252}Cf et AmBe

Nous avons effectué deux acquisitions de données à l'aide du scintillateur triple discriminant en utilisant les sources neutroniques ^{252}Cf et AmBe, dans le but d'appliquer la méthode de spectrométrie neutronique par déconvolution et de déterminer le spectre en énergie des neutrons incidents. La Figure III-39 présente les spectres de protons de recul obtenus à partir de ces deux sources de neutrons, ^{252}Cf et AmBe. Pour cette mesure, nous avons utilisé une méthode de discrimination neutron/gamma qui est différente de la méthode PSD utilisée pendant les essais à Amande. Cette méthode repose sur un modèle d'apprentissage basé sur la méthode de reconnaissance des signaux *WaveShape* [22]. Cette méthode est appliquée par Victor BURIDON ingénieur chercheur au CEA List, une description complète de sa méthodologie employée est fournie dans l'annexe. Le but de cette méthode est de diminuer le seuil bas en énergie pour la discrimination n/γ . La Figure III-40 illustre la comparaison entre le spectre de protons de recul mesuré, traité à l'aide de la méthode *WaveShape*, et le spectre de protons de recul simulé, ajusté en modifiant le facteur de *quenching* du paramètre PHL, comme expliqué en détails dans la suite (paragraphe III.3.2.2). Les deux spectres sont en bon accord pour les neutrons d'énergie supérieure à 164 keVee. Le désaccord entre les spectres aux énergies inférieure à 164 keVee est dû à la chute d'efficacité de la détection des neutrons à basse énergie dans le spectre mesuré. Nous rappelons que le seuil bas en énergie de détection des neutrons déterminé pendant l'irradiation du détecteur avec le faisceau d'Amande est autour de 1 MeV ce qui correspond à 158 keVee. D'autre part, une comparaison entre le spectre de protons de recul mesuré traité avec la méthode *WaveShape* et celui qui a été traité avec la méthode PSD pour une source ^{252}Cf , est montré sur la Figure III-40. Nous constatons que le seuil bas de discrimination en utilisant l'approche PSD est élevé 700 keVee, avec une erreur de classification de 5,1 %, contre 164 keVee en utilisant la méthode de *WaveShape*, avec une erreur de classification de 2 %. L'histogramme bi-paramétrique des rapports de charge, ainsi que l'histogramme de facteur de discrimination, obtenus avec la méthode de PSD pour le scintillateur plastique triple discriminant en utilisant la source ^{252}Cf , sont présentés sur la Figure III-41 et la Figure III-42.

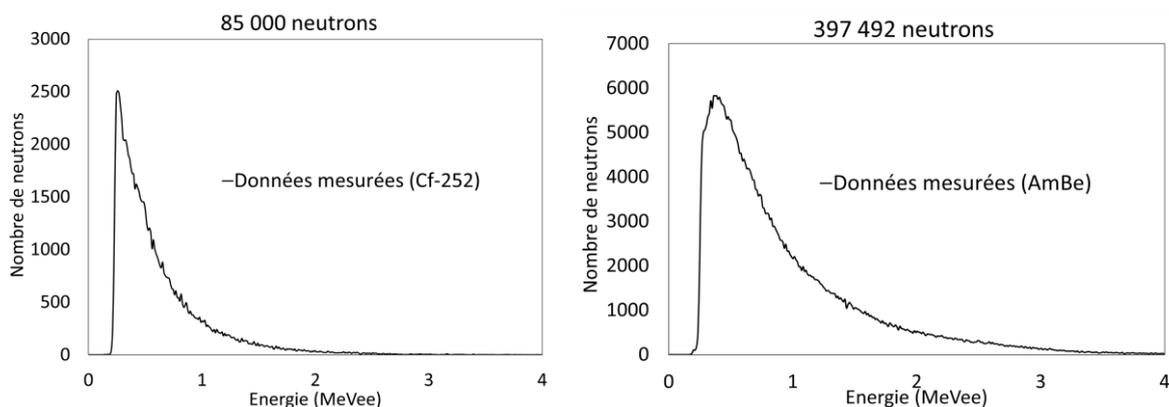


Figure III-39 Spectres de hauteur en impulsion mesurés à l'aide de sources neutroniques ^{252}Cf (à gauche) et AmBe (à droite). Un million d'événements ont été enregistrés lors de chaque acquisition et les valeurs en neutrons au-dessus des figures correspondent au nombre de neutrons enregistrés après la discrimination n/γ .

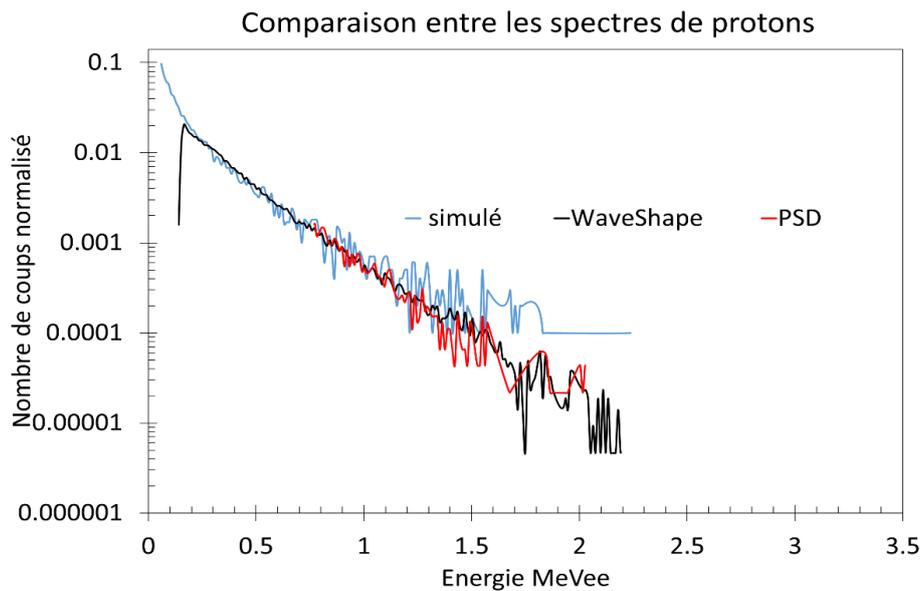


Figure III-40 Comparaison entre le spectre de protons de recul simulé (en bleu), le spectre de protons de recul mesuré et sur lequel est appliquée la méthode de discrimination WaveShape (en noir), et le spectre de protons de recul mesuré et sur lequel est appliquée la méthode de discrimination PSD (en rouge).

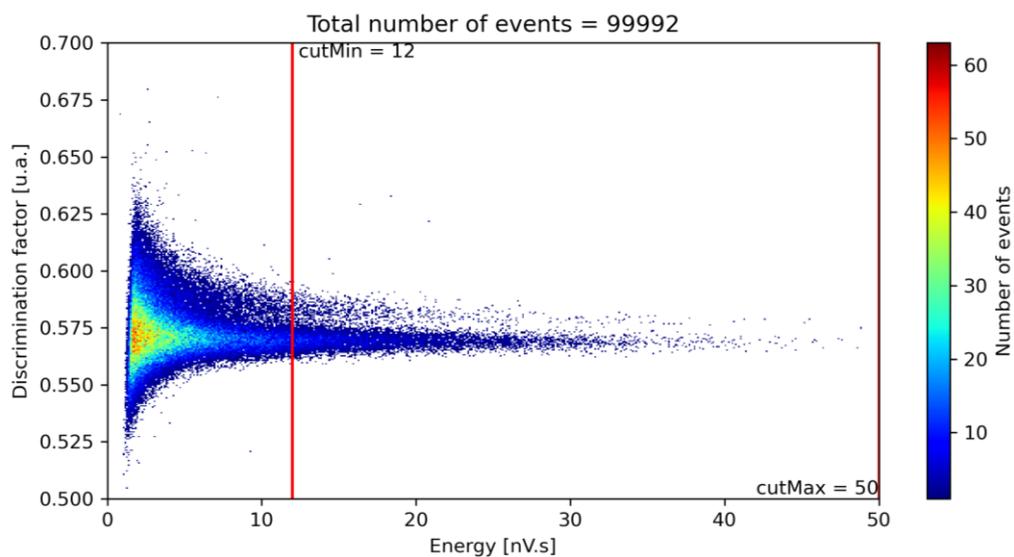


Figure III-41 Un histogramme bi-paramétrique des rapports de charge obtenu pour le scintillateur plastique triple discriminant en utilisant la source ^{252}Cf . Les barres rouges correspondent aux bornes de la gamme d'énergie [700 keVee ; 2 MeVee].

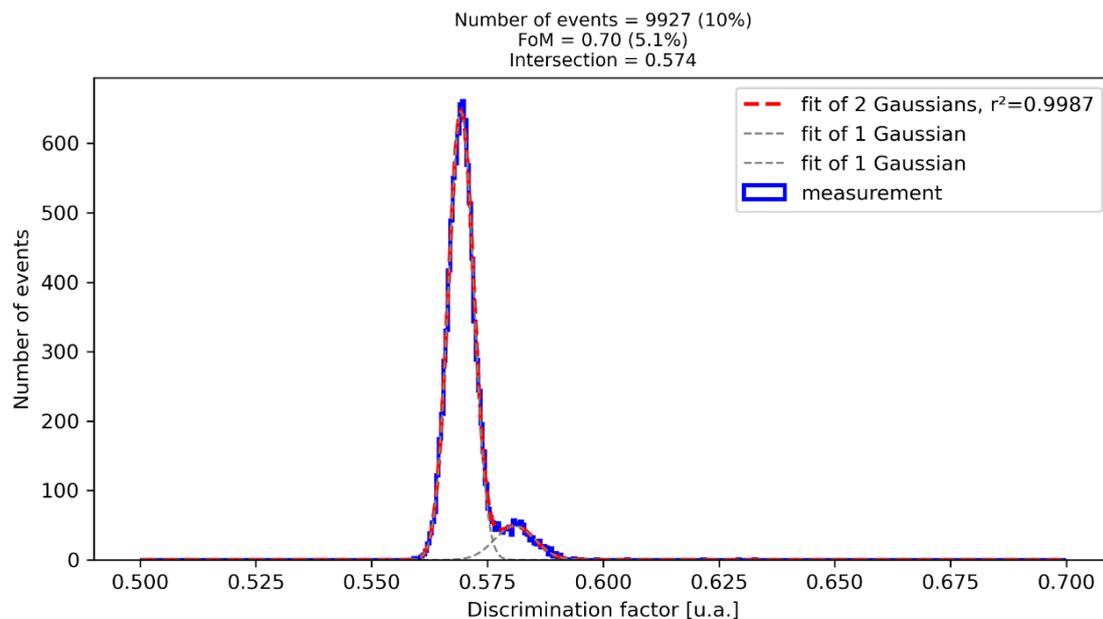


Figure III-42 Histogramme du facteur de discrimination obtenu à partir du scintillateur plastique triple discriminant en utilisant la source ^{252}Cf .

III.3.2.2. Construction de la fonction de réponse liée au scintillateur triple discriminant

Avant d'appliquer la méthode de déconvolution avec MLEM pour reconstruire le spectre en énergie des neutrons incidents à partir du spectre de hauteur en impulsion mesuré, nous devons construire par simulation MCNP6.2 la matrice de réponse (exprimée en MeVee) liée au scintillateur triple discriminant. Pour ce faire, nous avons utilisé le code de simulation décrit dans le paragraphe II.2.4.2 du chapitre 2, qui simule une fonction de réponse en utilisant la réponse lumineuse du scintillateur BC-400. En revanche, selon le manuel MCNP6.2 (page 239), l'utilisateur peut changer le facteur d'extinction (*quenching*) de la loi de Birks décrit par défaut dans le manuel pour le détecteur BC-400 « $4,6 \times 10^{-3} \text{ cm/MeV}$ » par un nouveau facteur en ajoutant une valeur d'extinction à côté du nom du détecteur (par exemple, BC4-1_4.6 $\times 10^{-3}$). Afin de trouver la valeur du facteur d'extinction qui correspond au scintillateur plastique triple discriminant, nous avons ajusté la fonction de réponse du BC-400 en faisant varier le facteur d'extinction (*quenching*) pour qu'elle corresponde au mieux à la fonction de réponse du scintillateur triple discriminant, qui a été déterminée expérimentalement. La nouvelle valeur du facteur d'extinction utilisée est égale à $1,85 \times 10^{-2} \text{ cm/MeV}$. Par ailleurs, nous avons ajouté l'option GEB en considérant les paramètres de la fonction GEB mentionnés dans le paragraphe III.2.4.2. Après avoir ajusté la fonction de réponse simulée avec celle mesurée, nous avons simulé une matrice de réponse de dimensions (602 \times 150). Les 150 colonnes correspondent aux 150 énergies de neutrons incidents, allant de 0,1 MeV à 15 MeV avec un pas de 0,1 MeV. Le nombre de lignes 602 correspond aux numéros d'intervalles du spectre de hauteur d'impulsion des protons de recul associés à chaque énergie de neutron. Ces spectres de hauteur d'impulsion ont des énergies comprises, après étalonnage en énergie, entre 1 keVee et 7 MeVee.

III.3.2.3. Application de l'algorithme MLEM sur les données mesurées

Ce paragraphe montre les résultats de la déconvolution avec MLEM des spectres en énergie des neutrons incidents du ^{252}Cf et de l'AmBe en utilisant les spectres de hauteur en impulsion mesurés et illustrés sur la Figure III-39 et la matrice de réponse décrite dans le paragraphe III.3.2.2. La Figure III-43 et la Figure III-44 montrent les spectres neutroniques du ^{252}Cf et de l'AmBe comparés à leurs spectres ISO de référence pour des neutrons d'énergie supérieure à 2 MeV. Les spectres déconvolués sont en bon accord avec les spectres de référence pour les énergies supérieures à 2 MeV en considérant les valeurs du coefficient de détermination pour le ^{252}Cf ($R^2=0,989$) et pour l'AmBe ($R^2=0,928$). Cependant, le désaccord entre les spectres déconvolués et les spectres de référence aux énergies inférieures à 2 MeV peut s'expliquer par le seuil de détection à basse énergie, approximativement égal à 1 MeV. Suite à l'observation de nombreux spectres mesurés et déconvolués dans la littérature en utilisant un scintillateur plastique relié à un SiPM, le spectromètre neutronique MIDAS [23] semble le plus proche de notre configuration de mesure, ce qui nous permet de comparer ses performances en matière de spectrométrie neutronique avec les nôtres. La Figure III-46 présente la comparaison entre les résultats de reconstruction du spectre du ^{252}Cf obtenu à l'aide de notre configuration de mesure et celui obtenu avec le spectromètre MIDAS qui est formé d'un scintillateur plastique de type EJ299-33 relié à un SiPM et de dimensions $7\times 7\times 7\text{ mm}^3$. Les résultats de reconstruction du spectre ^{252}Cf sont similaires.

D'autre part, nous avons également effectué la déconvolution du spectre de neutrons mono-énergétiques mesuré lors de la campagne de mesures à l'installation Amande. L'énergie du faisceau est de 5000 keV dans son axe principal, et de 4404 keV dans un angle de 40° par rapport à cet axe, là où se trouve le détecteur. La Figure III-45 montre le spectre en énergie déconvolué et comparé au spectre de référence pour des neutrons d'énergie supérieure à 2 MeV. Le spectre de référence est décrit par une distribution gaussienne d'énergie moyenne de 4404 keV avec une valeur d'écart type $\sigma=332\text{ keV}$. Le coefficient de détermination entre les deux spectres est $R^2=0,782$. Ces résultats montrent la capacité de ce spectromètre à reproduire le spectre de neutrons mono-énergétiques 4404 keV en ayant une distribution gaussienne d'énergie moyenne 4500 keV et un écart type 200 keV. L'écart entre le spectre de référence et le spectre reconstruit en ce qui concerne l'énergie moyenne et la largeur de la distribution gaussienne s'explique par le fait que l'intervalle en énergie des neutrons de la fonction de réponse n'est pas assez étroit (100 keV).

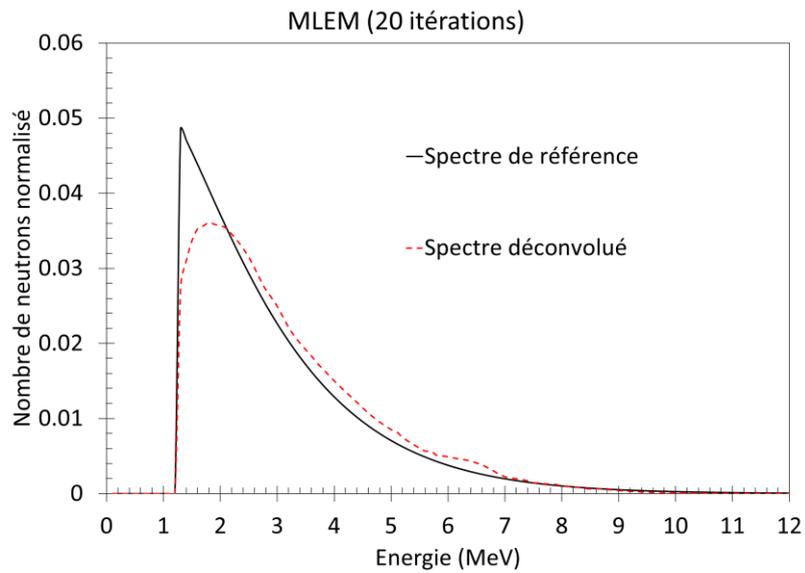


Figure III-43 Spectre en énergie reconstruit de la source ^{252}Cf comparé au spectre de référence.

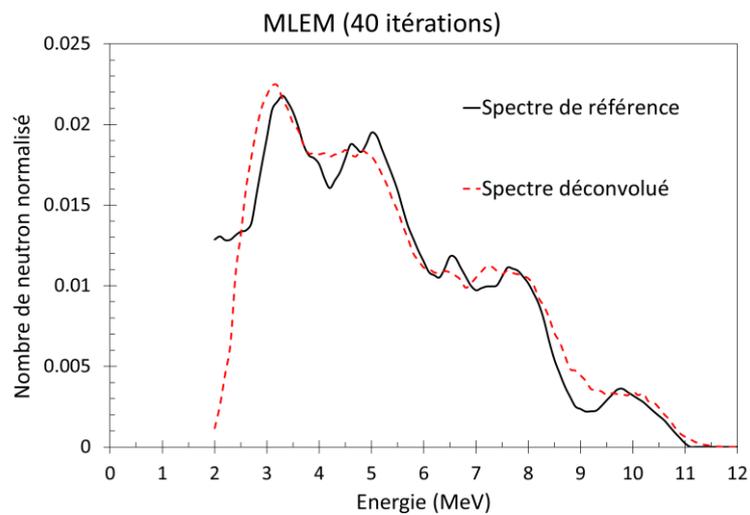


Figure III-44 Spectre en énergie reconstruit de la source AmBe comparé au spectre de référence.

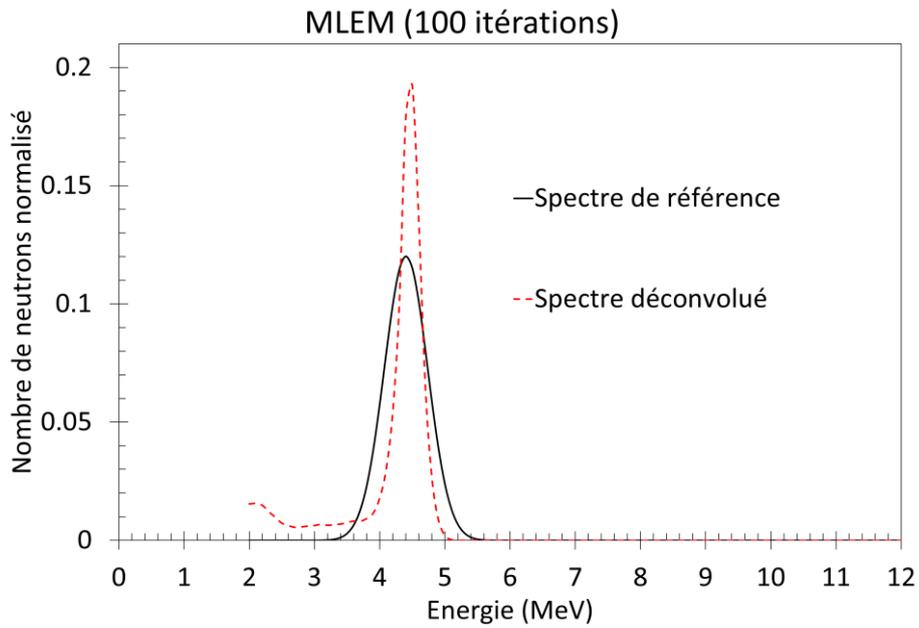


Figure III-45 Spectre en énergie reconstruit de la source de neutrons mono-énergétiques émettant des neutrons d'énergie 4404 keV, comparé au spectre de référence.

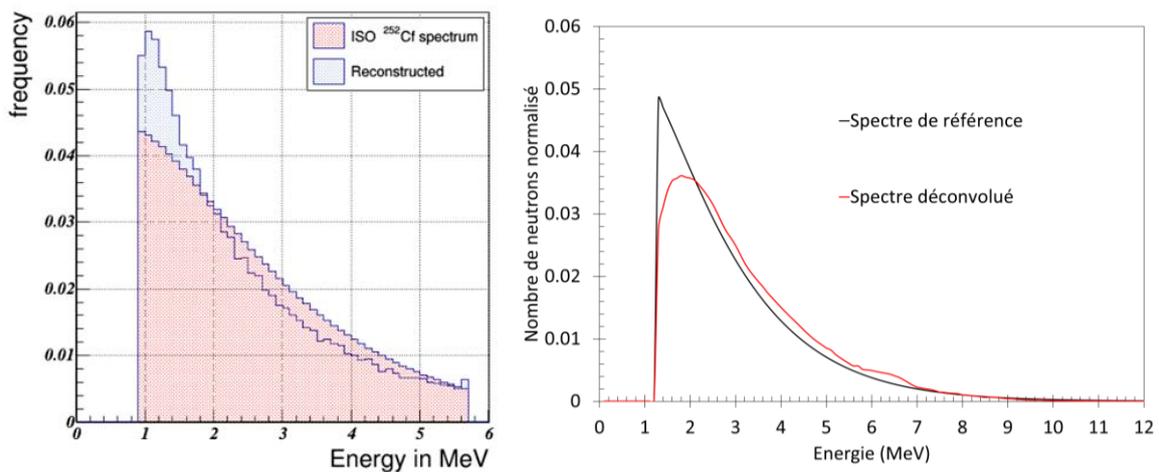


Figure III-46 Spectre en énergie de neutrons incidents du ^{252}Cf comparé au spectre de référence, obtenu avec le prototype MIDAS [23] (à gauche). Spectre en énergie de neutrons incidents du ^{252}Cf comparé au spectre de référence, obtenu avec notre configuration de mesure (à droite).

III.4. Synthèse du chapitre 3

Dans ce chapitre, nous avons fourni une description détaillée du prototype expérimental formé d'un scintillateur plastique couplé à une matrice de SiPM. Ensuite, nous avons présenté une méthode d'étalonnage utilisant des rayonnements gamma afin de déterminer la relation entre la charge totale mesurée et l'énergie exprimée en MeVee. Nous avons également effectué une étude sur la résolution en énergie du scintillateur.

Une fois ces premières étapes franchies, nous avons mesuré la réponse lumineuse des protons en utilisant des sources de neutrons et de protons mono-énergétiques, afin de déterminer la relation entre l'énergie équivalente en électrons (MeVee) et l'énergie équivalente en protons (MeVep). Cette étape est essentielle pour optimiser la fonction de réponse simulée en convertissant les spectres simulés de protons de recul de l'énergie MeVep en énergie MeVee.

En conclusion, nos résultats ont confirmé la capacité opérationnelle de cette configuration expérimentale, combinant le scintillateur triple discriminant de 2 cm³ avec un SiPM, pour une reconstruction précise des spectres en énergie des sources de type ²⁵²Cf, des sources de neutrons (α , n), ainsi que des sources de neutrons mono-énergétiques, pour des énergies dépassant 2 MeV. Cette opération est réalisée en combinant l'algorithme MLEM avec une fonction de réponse simulée optimisée par la fonction mesurée.

Cependant, l'efficacité de détection des neutrons par le système d'acquisition est actuellement restreinte en raison de sa limite de discrimination à basse énergie, qui est d'environ 1 MeV. Par conséquent, déterminer le spectre énergétique des neutrons d'énergie inférieure à 1 MeV constitue un défi majeur et nécessitera des améliorations tant au niveau du détecteur que du traitement des données.

Dans ce chapitre, nous avons donc réussi à caractériser le scintillateur plastique triple discriminant mis au point par le CEA List, et validé sa capacité à réaliser la spectrométrie neutronique à l'aide de la méthode que nous avons décrite dans ce chapitre. Dans le chapitre suivant, le même type de scintillateur sera utilisé mais en version pixellisée qui constituera le cœur du prototype du spectro-imageur neutronique.

III.5. Bibliographie du chapitre 3

- [1] P. Blanc, M. Hamel, L. Rocha, R.B. Pansu, F. Gobert, I. Lampre, S. Normand, Intrinsic evaluation of n/γ discrimination in plastic scintillators, *IEEE Trans Nucl Sci.* 61 (2014) 1995–2005. <https://doi.org/10.1109/TNS.2014.2327292>.
- [2] E. Montbarbon, Etude des phénomènes photophysiques de la discrimination entre neutrons rapides et photons gamma dans les scintillateurs plastiques, 2018. <https://theses.hal.science/tel-01685285>.
- [3] C. Frangville, M. Hamel, G. Bertrand, E. Montbarbon, C. Lynde, A. Grabowski, Large solubility of Lithium carboxylates reaching high rates of 6Li incorporation in polystyrene-based plastic scintillators for fast/thermal neutrons and gamma rays detection, *Mater Chem Front.* (2019).
- [4] onsemi, ARRAYC-SERIES - Silicon Photomultipliers (SiPM) 4-Side Scalable Arrays - ArrayC Series, 2023. www.onsemi.com.
- [5] Onsemi, Biasing and Readout of ON Semiconductor SiPM Sensors (AND9782/D), 2018. <https://www.onsemi.com/pub/Collateral/AND9782-D.PDF>.
- [6] CAEN Tools for Discovery, DT5743, (2023). <https://www.caen.it/products/dt5743/> (accessed July 27, 2023).
- [7] CAEN Tools for Discovery, WaveCatcher Oscilloscope Tool for 743 digitizer family, (2023). <https://www.caen.it/products/wavecatcher/> (accessed August 11, 2023).
- [8] CAEN Tools for Discovery, DT5485P, (2023). <https://www.caen.it/products/dt5485p/> (accessed August 11, 2023).
- [9] C. Lynde, Développement d'un imageur neutron portable, Thèse de doctorat, Université de Strasbourg, Ecole doctorale Physique et Chimie Physique 182, 2019. <https://www.theses.fr/2019STRAE006>.
- [10] A. Taheri, M.A. Lehdarboni, R. Gholipour, Determination of Gaussian energy broadening parameters for organic scintillators, *Journal of Instrumentation.* 11 (2016). <https://doi.org/10.1088/1748-0221/11/05/P05020>.
- [11] R.D. Evans, *The atomic nucleus*, TATA McGRW-HILL Publishing company, 1955.
- [12] L. Swiderski, M. Moszyński, W. Czarnacki, J. Iwanowska, A. Syntfeld-Kauch, T. Szczśniak, G. Pausch, C. Plettner, K. Roemer, Measurement of Compton edge position in low-Z scintillators, in: *Radiat Meas*, 2010: pp. 605–607. <https://doi.org/10.1016/j.radmeas.2009.10.015>.
- [13] LNHB Laboratoire National Henri Becquerel, Nucléide- Lara Library for gamma and alpha emissions, (n.d.).
- [14] G. Dietze, H. Klein, GAMMA-CALIBRATION OF NE 213 SCINTILLATION COUNTERS, *Nuclear Instruments and Methods.* 193 (1982) 549–556.
- [15] X. Li, Y. Wang, R. Zhou, C. Yan, Energy calibration for plastic scintillation detectors based on Compton scatterings of gamma rays, *Journal of Instrumentation.* 12 (2017). <https://doi.org/10.1088/1748-0221/12/12/P12025>.

- [16] C. Kim, Y. Kim, M. Moon, G. Cho, Iterative Monte Carlo simulation with the Compton kinematics-based GEB in a plastic scintillation detector, *Nucl Instrum Methods Phys Res A*. 795 (2015) 298–304. <https://doi.org/10.1016/j.nima.2015.06.007>.
- [17] V. Gressier, J.F. Guerre-Chaley, V. Lacoste, L. Lebreton, G. Pelcot, J.L. Pochat, T. Bolognese-Milstajn, D. Champion, AMANDE: A new facility for monoenergetic neutron fields production between 2 keV and 20 MeV, *Radiat Prot Dosimetry*. 110 (2004) 49–52. <https://doi.org/10.1093/rpd/nch185>.
- [18] C. Lynde, E. Montbarbon, M. Hamel, A. Grabowski, C. Frangville, G.H. V Bertrand, G. Galli, F. Carrel, V. Schoepff, Z. El Bitar, Optimization of the Charge Comparison Method for Multiradiation Field Using Various Measurement Systems, *IEEE Trans Nucl Sci*. 69 (2020) 679–687. <https://doi.org/10.1109/TNS.2020.2966886>.
- [19] R. Katz, S.C. Sharma, M. Homayoonfar, Detection of energetic heavy ions*, *Nuclear Instruments and Methods* 100. 100 (1971) 13–32.
- [20] K.D. Ngo, C. Cazzaniga, M. Paoletti, D. Rigamonti, M. Kastriotou, C. Frost, M. Tardocchi, J. Sykora, S. Mann, B. Lutz, R. Nolte, Fast neutron response characterization of an EJ-276 plastic scintillator for use as a neutron monitor, *Nucl Instrum Methods Phys Res A*. 1051 (2023). <https://doi.org/10.1016/j.nima.2023.168216>.
- [21] iPHC Institut Pluridisciplinaire Hubert Curien Strasbourg, Plateforme CYRCé, (2023). <https://cyrc.fr/> (accessed August 11, 2023).
- [22] K. Albertsson, S. Gleyzer, A. Hoecker, L. Moneta, P. Speckmayer, J. Stelzer, J. Therhaag, E. Von Toerne, H. Voss, S. Wunsch, K. Albertsson, S. Wunsch, M. Backes, A. Bagoly, A. Bevan, T. Carli, A. Carnes, O. Cohen, A. Christov, K. Danielowski, D. Dannheim, S. Henrot-Versilí, V. Ilievski, M. Jachowski, K. Kraszewski, A. Krasznahorkay, M. Kruk, Y. Mahalale, A. Moudgil, R. Ospanov, S. Pfreunds Schuh, X. Prudent, A. Robert, C. Rosemann, D. Schouten, R. Selvam, P. Seyfert, S. Shekhar, P. Speckmeyer, M. Stergiadis, T. Stevenson, F. Tegenfeldt, A. Voigt, K. Voss, M. Wolter, A. Zemla, O.Z. Mesa, J. Zhong, TMVA 4 Toolkit for Multivariate Data Analysis with ROOT Users Guide, 2020. <https://root.cern.ch/download/doc/tmva/TMVAUsersGuide.pdf> (accessed December 18, 2023).
- [23] C. Potiriadis, I. Kazas, C. Papadimitropoulos, C.P. Lambropoulos, Miniature neutron spectrometer for space, in: *Journal of Instrumentation* 14 C11029, Institute of Physics Publishing, 2019. <https://doi.org/10.1088/1748-0221/14/11/C11029>.

Chapitre IV. Imagerie et spectrométrie neutronique à l'aide d'un prototype dédié

Dans ce chapitre nous présentons le prototype du spectro-imageur neutronique principalement composé d'un scintillateur plastique pixellisé suivant une matrice de 12×12 pixels. L'objectif principal de notre travail est d'intégrer des mesures de spectrométrie neutronique dans ce prototype d'imageur, afin d'être capable de localiser les sources neutroniques et également de les identifier en analysant la répartition énergétique des neutrons émis. Tout d'abord, les performances de l'imageur neutronique telles que la sensibilité et la résolution angulaire vont être évaluées à partir de mesures de localisation réalisées en utilisant des sources gamma et neutroniques au laboratoire. Ensuite, les capacités de l'imagerie neutronique seront explorées à travers des mesures *in-situ* réalisées en utilisant la source de neutrons mono-énergétiques disponible sur l'installation Amande. En complément de ces résultats expérimentaux, nous présentons les résultats de simulations qui visent à vérifier la capacité du prototype d'imageur à fournir une information de spectrométrie neutronique. En parallèle, ce chapitre détaille les premiers essais expérimentaux d'étalonnage du scintillateur pixellisé, une étape cruciale pour permettre la réalisation expérimentale de mesures de spectrométrie neutronique avec l'imageur neutronique.

IV.1. Présentation de l'imageur neutronique existant

Le premier prototype d'imageur neutronique a été développé lors des travaux de thèse menés par Clément LYNDE de 2016 à 2019 et dont l'objectif était de développer un imageur neutronique portable compatible avec les besoins de l'industrie nucléaire, notamment ceux du démantèlement [1]. À l'issue de ces travaux de thèse, qui ont abouti aux publications [2,3], un nouvel imageur neutronique portable a été développé. Une photographie de l'imageur neutronique est présentée sur la Figure IV-1.

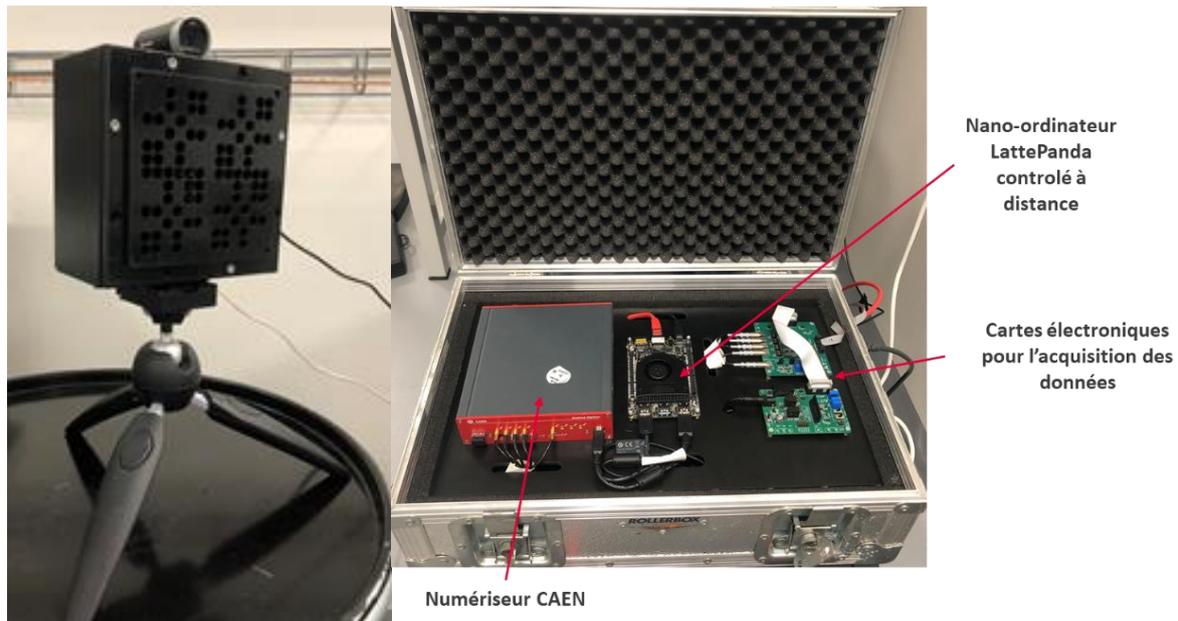


Figure IV-1 Photographie du prototype spectro-imageur neutronique (à gauche) et l'ensemble de l'électronique associé (à droite).

Le cœur du spectro-imageur est formé d'un scintillateur plastique double discriminant fabriqué au LCIM. Le scintillateur, présenté à gauche sur la Figure IV-2, est pixellisé en 12×12 pixels et les dimensions de chaque pixel sont respectivement de $3,6 \times 3,6 \times 3,6 \text{ mm}^3$. Les pixels sont séparés les uns des autres par une couche de PTFE d'épaisseur 0,6 mm, utilisée pour séparer la réponse lumineuse de chaque pixel. Ce scintillateur est capable de détecter les neutrons rapides en les discriminant des rayonnements gamma. La détection de la composante thermique des neutrons à l'aide du scintillateur pixellisé est également possible en incorporant du lithium-6 au sein du scintillateur. Les dimensions du scintillateur ont été choisies pour correspondre à celles du SiPM ArrayC-30035-144P d'Onsemi [4] présenté à droite sur la Figure IV-2. Ce SiPM est formé d'une matrice de 12×12 pixels de SiPM. Le détecteur est couplé à un masque codé de type MURA (rang 7) avec une surface de $11,4 \times 11,4 \text{ cm}^2$. Ce type de masque MURA rang 7 a été choisi car, d'après l'expérience en imagerie gamma [4], il offre le meilleur compromis entre une résolution spatiale satisfaisante, un temps de mesure relativement court et un faible bruit de reconstruction. Le masque codé, présenté sur la Figure IV-3, se compose de 10 mm de polyéthylène et 1 mm de plomb. Le choix d'utiliser du polyéthylène pour le masque codé découle des résultats d'une étude antérieure menée sur le rapport signal sur comptage (RSC) [1] pour divers matériaux de masque. Ce rapport représente la capacité du masque à encoder le flux de neutrons : plus le RSC est élevé, plus le nombre d'évènements participant à la localisation de la source est important par rapport au nombre total d'évènements donc plus rapide sera la localisation. Bien que le RSC d'un masque en polyéthylène soit inférieur à celui en tungstène, nous avons choisi le polyéthylène pour sa grande facilité d'accès et de fabrication par rapport au tungstène. L'ajout du masque en plomb a pour but de réduire le bruit de fond des rayonnements gamma tout en permettant de réaliser de l'imagerie gamma. Par ailleurs, ces composants ont été assemblés dans un boîtier de caméra en polyéthylène mesurant en extérieur $17 \text{ cm} \times 14 \text{ cm} \times 9 \text{ cm}$ (hauteur \times largeur \times profondeur) et pesant 800 g. Une caméra optique a été placée au-dessus de l'imageur, permettant de fournir l'image visible nécessaire lors de l'étape de superposition avec l'image de la radioactivité.

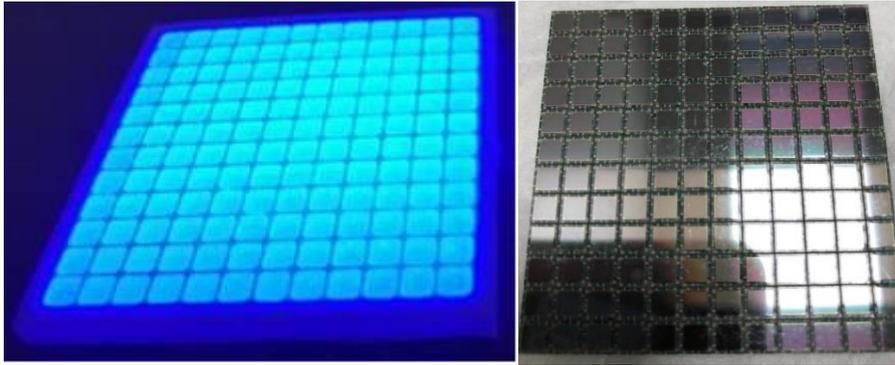


Figure IV-2 À gauche : Photographie de la matrice de scintillateur plastique pixellisé en 12×12 pixels. À droite : Photographie de la matrice de SiPM pixellisé en 12×12 pixels.

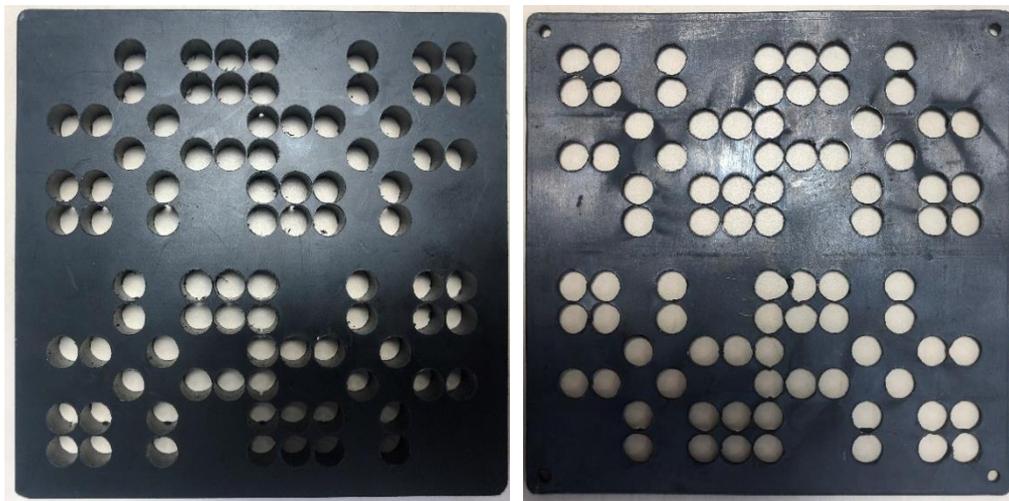


Figure IV-3 Photographie montrant la partie en polyéthylène (à gauche) et la partie en plomb (à droite) du masque codé.

IV.2. Campagnes d'essais d'imagerie neutronique et d'imagerie gamma

IV.2.1. Mesure d'imagerie neutronique en conditions de laboratoire

À l'aide du prototype de spectro-imageur précédemment décrit, nous avons cherché à réaliser une image neutronique d'une source de ^{252}Cf émettant $1,12 \times 10^5$ neutrons. s^{-1} . L'émission de cette source est équivalente à ~ 100 g de source ^{240}Pu , pouvant être rencontrée dans les chantiers nucléaires. La source est placée à 100 cm au centre du champ de vue du détecteur. Cette mesure a duré 270 min (135 min par positions : masque et anti-masque). La Figure IV-4 (a) montre une image de ^{252}Cf utilisant les événements gamma et neutroniques. La Figure IV-4 (b) montre une image neutronique de ^{252}Cf en excluant les événements gamma par la méthode de discrimination neutron/gamma (PSD). Nous observons que seulement 7,6% des événements détectés proviennent des neutrons contribuant à l'image neutronique. Ces résultats expérimentaux montrent la capacité du prototype d'imageur

neutronique pour localiser des sources neutroniques comme le ^{252}Cf dans un temps d'acquisition potentiellement compatible avec des opérations d'A&D.

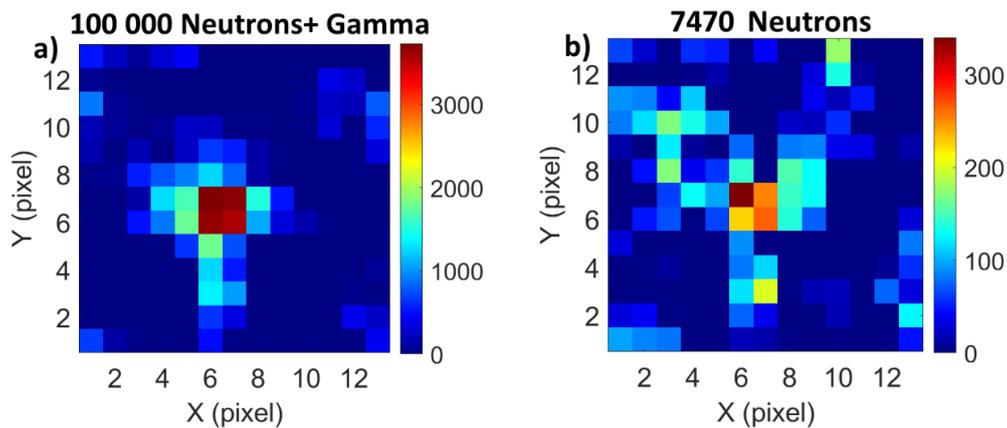


Figure IV-4 Images d'une source de ^{252}Cf : en utilisant les événements gamma et neutroniques (a) et en utilisant uniquement les événements neutroniques (b). L'échelle de couleurs correspond au nombre d'évènements reconstruits après déconvolution.

IV.2.2. Mesure d'imagerie gamma en conditions de laboratoire

Bien que les scintillateurs plastiques ne représentent pas le choix optimal pour l'imagerie gamma, nous mettons en évidence, dans ce paragraphe, la capacité de l'imageur à réaliser également l'imagerie gamma dans un temps relativement court (quelques minutes). Nous avons réalisé une mesure d'imagerie gamma à l'aide d'une source gamma ^{133}Ba ayant une activité de 12,3 MBq. La source a été positionnée à une distance de 100 cm du détecteur, à la même hauteur, mais décalée de 15 cm vers la gauche par rapport au centre du champ de vue. La Figure IV-5 a) présente l'image gamma de la source ^{133}Ba mesurée en 6 min (3 min par positions : masque et anti-masque). D'autre part, afin d'observer la sensibilité de l'imageur à la position spatiale de la source, nous avons déplacé la source symétriquement par rapport au centre du champ de vue du détecteur de 15 cm vers la droite. La Figure IV-5 b) présente l'image gamma résultant de cette nouvelle position de la source. En observant ces deux figures, nous remarquons que la position du point chaud varie en fonction de la position réelle de la source, et nous constatons que la résolution angulaire, étant l'équivalent en angle de la distance (30 cm) entre deux localisations différentes de la source gamma et suffisamment distinguables sur les images gamma, est inférieure à 17° .

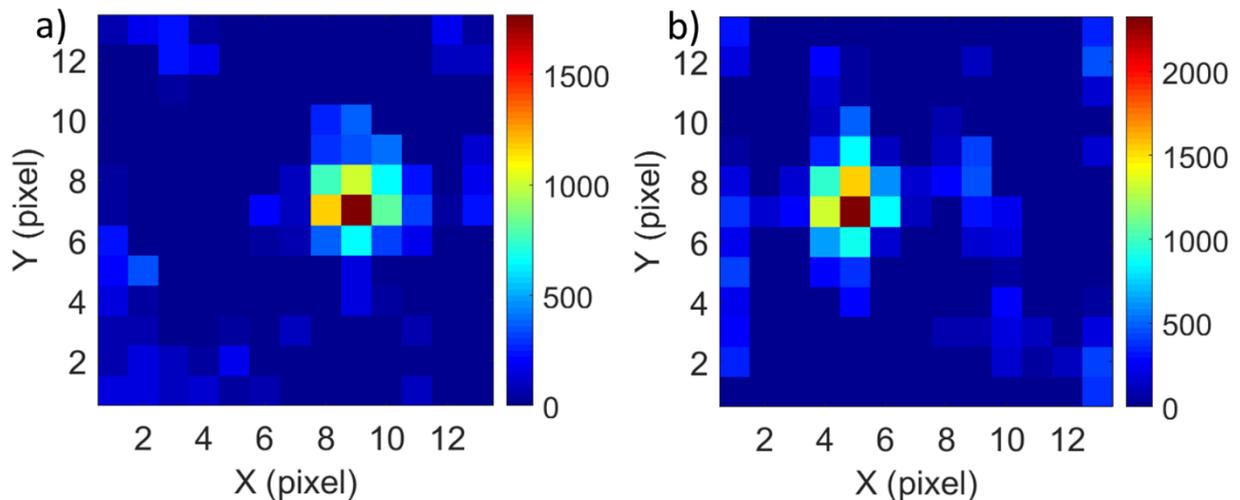


Figure IV-5 Images d'une source de ^{133}Ba placée à gauche (a) et à droite (b) du centre du champ de vue. L'échelle de couleurs correspond au nombre d'événements reconstruits après décodage.

IV.2.3. Mesure d'imagerie neutronique à l'installation Amande

Durant la campagne de mesures réalisée sur l'installation Amande (IRSN, site du CEA Cadarache) et décrite dans le chapitre 3, nous avons effectué, pour la première fois, une mesure d'imagerie devant le générateur de champs neutroniques mono-énergétiques. Le prototype du spectro-imageur a été positionné à 6 m du faisceau et placé à un angle de 10° par rapport à l'axe central du faisceau, comme le montre la Figure IV-6. Les neutrons d'énergie 2,4 MeV émis à une direction de 10° par rapport à l'axe du faisceau, ont une fluence 5×10^5 neutrons.cm $^{-2}$ au niveau du point d'émission du faisceau. Nous rappelons que le hall expérimental de l'installation Amande est optimisé pour réduire la quantité de neutrons diffusés. Le temps d'acquisition a duré 40 min (20 min par positions : masque et anti-masque). La Figure IV-7 a) montre une image du faisceau d'Amande en considérant l'ensemble des événements gamma et neutrons (33498 événements). La Figure IV-7 b) montre une image de la radioactivité du faisceau en prenant uniquement les événements neutroniques (10028 événements). Les points chauds se situent au centre des images, ce qui est compatible avec la position réelle du faisceau dont l'axe central est aligné avec le centre du détecteur.

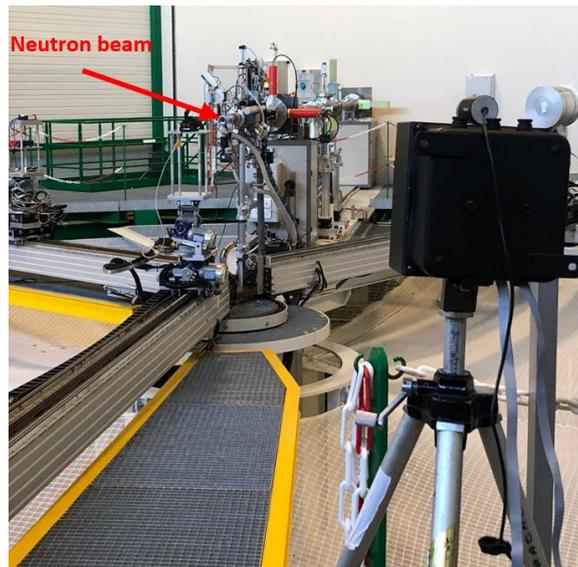


Figure IV-6 Configuration expérimentale de l'imageur neutronique sur l'installation AMANDE. L'imageur est placé à 6 m du faisceau et à la même hauteur que ce dernier.

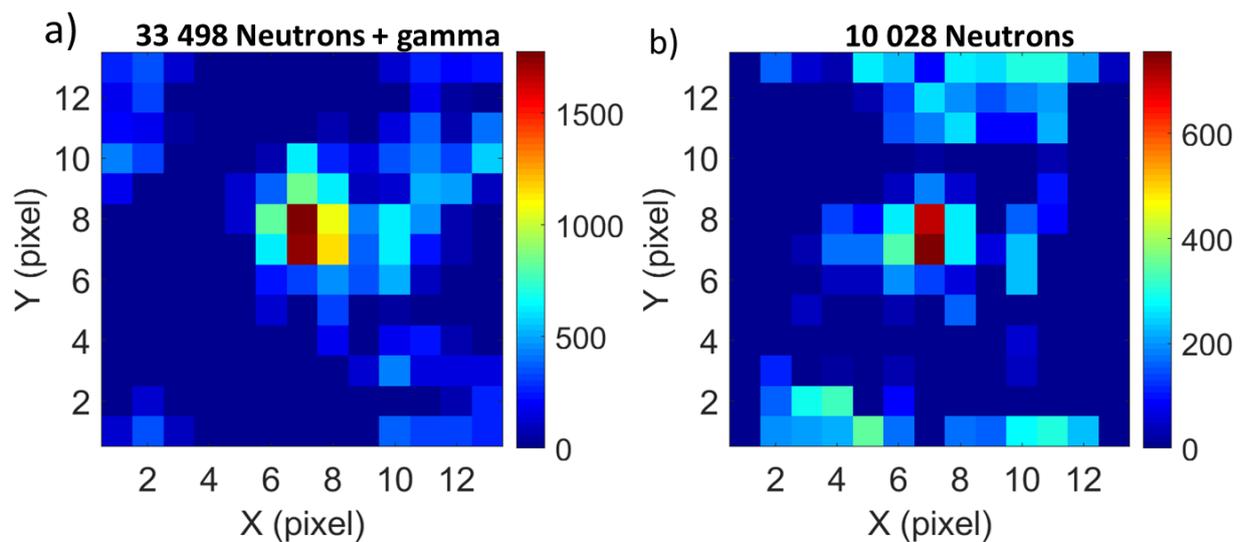


Figure IV-7 Images de la radioactivité du faisceau en utilisant les événements gamma et neutrons (a) et en utilisant uniquement les événements neutroniques (b). L'échelle de couleurs correspond au nombre d'évènements reconstruits après déconvolution.

IV.3. Simulation du spectro-imageur

IV.3.1. Modèle du prototype de spectro-imageur

Dans ce paragraphe, le modèle utilisé pour les simulations Monte Carlo du prototype de spectro-imageur, fondé sur des travaux précédents présentés dans [2], est présenté. L'objectif est de vérifier

la faisabilité d'intégrer au prototype la fonctionnalité de la spectrométrie neutronique, en vérifiant par simulation et à l'aide du code de déconvolution MLEM la capacité du spectro-imageur à reproduire le spectre en énergie d'une source neutronique (telle que ^{252}Cf et AmBe). Les résultats détaillés au chapitre 2 constitueront la base de cette étude et seront adaptés à l'utilisation d'un scintillateur pixellisé. En utilisant le code MCNP nous avons simulé la géométrie du spectro-imageur décrite dans le paragraphe IV.1. . La Figure IV-8 et la Figure IV-9 représentent l'illustration du modèle MCNP décrivant la matrice de scintillateur et le masque codé associé. Le masque a été placé à 5 cm du détecteur, de sorte que le champ de vue soit 68° .

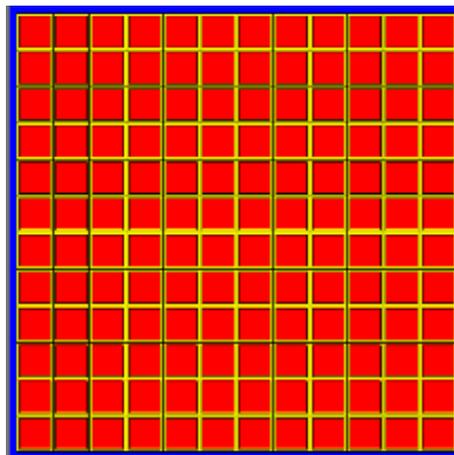


Figure IV-8 Vue frontale de la matrice de 12×12 pixels de scintillateurs.

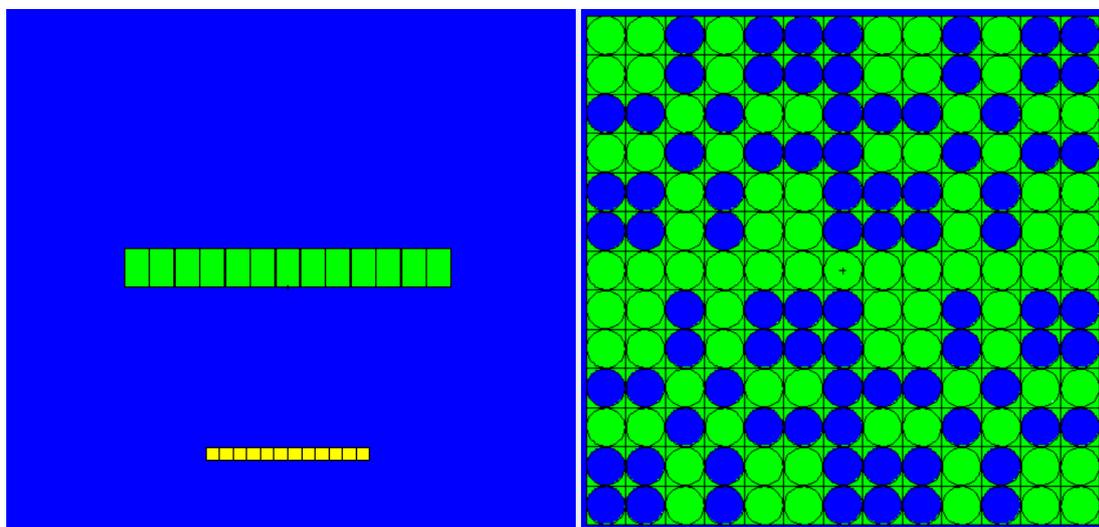


Figure IV-9 À gauche : vue latérale (plan xz) du masque codé (en vert) et du scintillateur (en jaune). À droite : vue frontale (plan xy) du masque codé, les pleins sont en vert et les trous sont en bleu.

IV.3.2. Simulation de l'imagerie neutronique à l'aide du prototype de spectro-imageur

Nous simulons une source ponctuelle de ^{252}Cf dont le point d'émission est placé à 100 cm face au centre du masque codé. En utilisant le *tally* F8, nous enregistrons le nombre de neutrons interagissant

dans chaque pixel du scintillateur en créant des protons de recul, et sachant que la limite basse en énergie des protons est 1 MeV. Les neutrons diffusés dans l'environnement ne sont pas pris en compte dans les simulations. La Figure IV-10 (a) montre la reconstruction de la projection du flux de neutrons à travers le masque codé en simulant 4×10^8 neutrons émis (NPS) et la Figure IV-10 (b) montre l'image neutronique en augmentant le nombre de particules simulées jusqu'au 2×10^9 . D'après les résultats obtenus, 1208 neutrons détectés parmi le nombre de particule simulées (NPS= 4×10^8) semblent suffisants pour avoir une image neutronique de bonne qualité. Cette dernière peut être définie par une image dans laquelle le bruit en dehors du point chaud reste inférieur à la moitié du comptage maximal dans la zone sensible. Ce NPS correspond à une durée d'acquisition de 60 min (en position masque puis anti-masque) pour une source ^{252}Cf de débit d'émission de $1,12 \times 10^5$ neutrons.s⁻¹. Cependant, nous constatons une différence notable avec la durée déterminée expérimentalement et montrée dans le paragraphe IV.2.1. Cette différence est due principalement aux bruits électroniques, aux neutrons diffusés dans l'environnement de l'imageur au seuil de détection pas parfaitement défini dans les simulations mais également au fait que la source mesurée n'était pas parfaitement centrée ni parfaitement ponctuelle. D'autre part, afin de quantifier la résolution angulaire de l'imageur, nous avons simulé deux sources de ^{252}Cf de même intensité, et placés à 100 cm du détecteur, à la même hauteur que le centre du masque, et qui s'éloignent au fur et à mesure. Les distances simulées entre les deux sources sont 12 cm, 20 cm, 30 cm, 40 cm, 50 cm, et 60 cm. La Figure IV-11 et la Figure IV-12 montrent pour chaque distance entre les deux sources, les images neutroniques en simulant 8×10^8 neutrons émis par les deux sources. À partir des résultats obtenus, nous constatons qu'à une distance de 20 cm entre les deux sources dont l'équivalent en angle est $11,42^\circ$, nous commençons à distinguer la localisation des deux sources de même intensité.

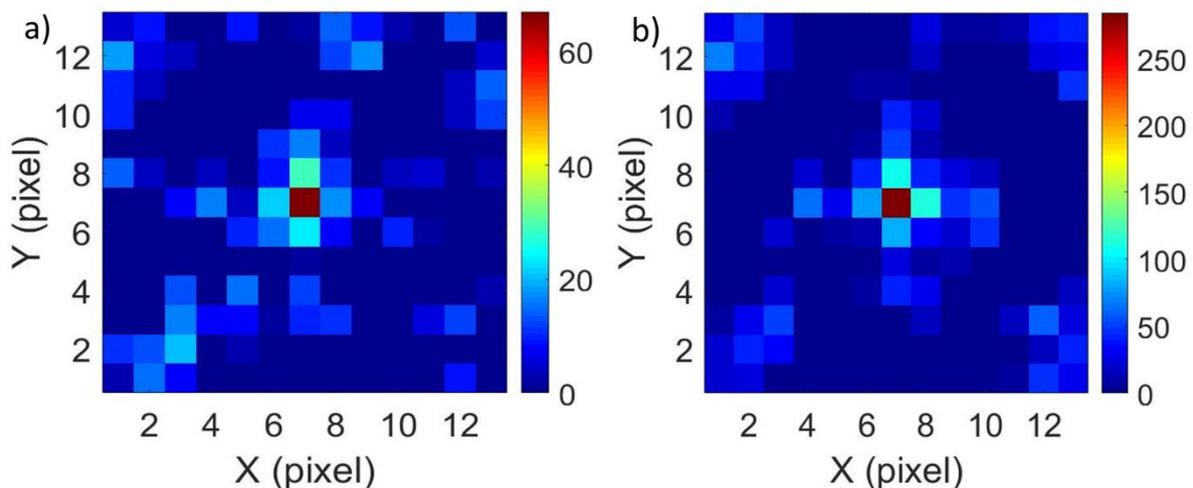


Figure IV-10 Images décodées simulées d'une source de neutrons ^{252}Cf placée à 100 cm. (a) avec NPS= 4×10^8 et (b) avec NPS= 2×10^9 (b). L'échelle de couleurs correspond au nombre d'évènements reconstruits après déconvolution.

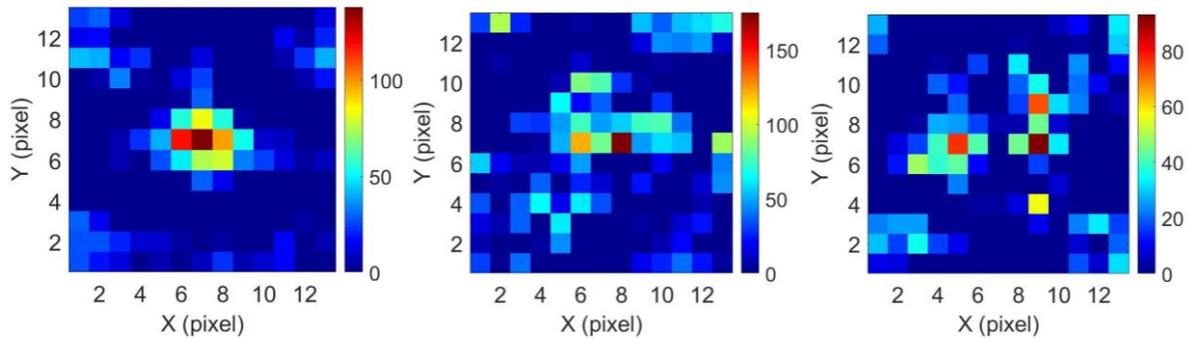


Figure IV-11 De gauche à droite : images décodées simulées de deux sources neutroniques ^{252}Cf placées à 100 cm et séparées par 12 cm, 20 cm, et 30 cm.

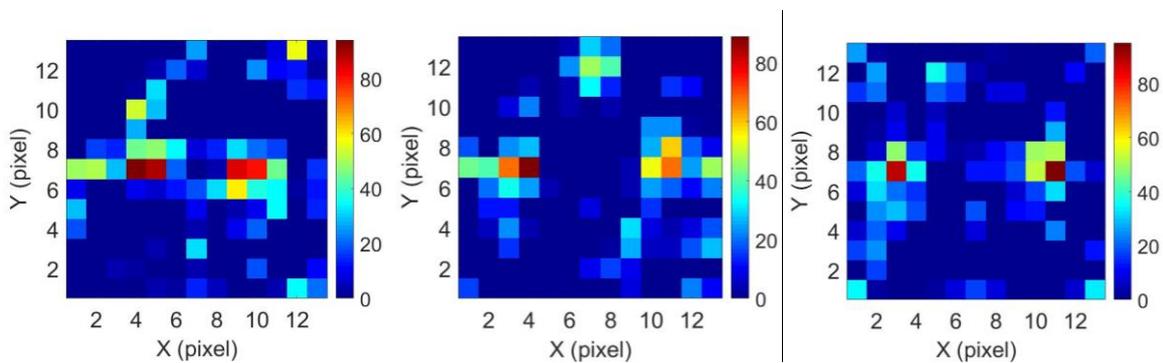


Figure IV-12 De gauche à droite : images décodées simulées de deux sources neutroniques ^{252}Cf placées à 100 cm et séparées de 40 cm, 50 cm, et 60 cm.

IV.3.3. Simulation de la spectrométrie neutronique à l'aide du prototype de spectro-imageur

Dans le chapitre 2, nous avons montré, à l'aide de simulation Monte Carlo, la faisabilité de la spectrométrie neutronique en utilisant un prototype de mesure formé d'un monobloc de scintillateur plastique de surface 1 cm^2 et de hauteur 2 cm. Dans ce paragraphe, nous allons appliquer la même méthode de spectrométrie neutronique mais sur des données obtenues avec le prototype du spectro-imageur, formé du scintillateur pixellisé de surface $5,6 \times 5,6\text{ cm}^2$ et de hauteur 0,5 cm et d'un masque codé. En passant du scintillateur plastique monobloc au scintillateur plastique pixellisé constituant le cœur du spectro-imageur, plusieurs facteurs peuvent influencer la qualité de la réponse en énergie et donc les performances de spectro-imagerie : l'épaisseur plus fine du scintillateur pixellisé (0,5 cm), la répartition de l'énergie des protons de recul dans plusieurs pixels, la présence de PTFE autour de chaque pixel du scintillateur et la présence du masque codé.

En utilisant le *tally* F8 ainsi que le *tally* F6 associée à l'option PHL, nous avons enregistré à la fois l'énergie déposée dans chaque pixel du scintillateur, et l'énergie totale dans l'ensemble du volume du scintillateur en appliquant le *tally* sur la cellule dans laquelle la matrice de scintillateur est construite. La Figure IV-13 présente le spectre de protons de recul obtenu à partir de l'ensemble du volume du scintillateur comparé à celui obtenu à partir d'un seul pixel du scintillateur, et en utilisant une source neutronique mono-énergétique de 5 MeV. Le nombre de particules simulés est égal à 10^8 neutrons et

les spectres ont été normalisés à la somme du nombre d'évènements dans le spectre. La valeur de la statistique de comptage sur un seul pixel est 2869, alors que sur le volume entier du scintillateur elle est égale à 411546. Les deux spectres sont en bon accord, cependant, les fluctuations dans le spectre d'un seul pixel sont plus importantes, en raison de la moindre statistique de comptage. Il convient de préciser que ce résultat est raisonnable dans le cadre d'une simulation idéale où tous les pixels présentent des réponses lumineuses identiques. Cependant, dans le contexte expérimental, cette situation différera de manière significative, dans la mesure où chaque pixel du détecteur présentera une réponse lumineuse différente et, par conséquent, nécessitera une courbe d'étalonnage différente.

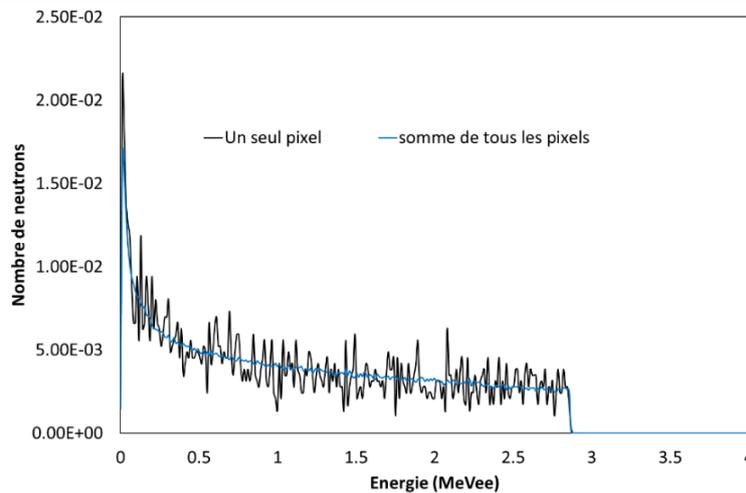


Figure IV-13 Comparaison entre les deux spectres en énergie de protons de recul (exprimée en MeV) avec une source neutronique d'énergie 5 MeV, obtenus avec un seul pixel (ligne noire) et avec l'ensemble du volume du scintillateur (ligne bleue).

Afin d'évaluer l'impact du masque codé sur les dépôts en énergie des protons de recul dans le spectro-imageur, nous avons simulé la réponse du volume total du scintillateur à une source de neutrons de 5 MeV, avec et sans la présence du masque codé. Cette comparaison est illustrée sur la Figure IV-14. D'après ces résultats, nous constatons que la présence du masque codé composé de 10 mm de polyéthylène et de 1 mm de plomb, n'entraîne aucune déformation significative du spectre. Le coefficient de détermination (R^2) entre les deux spectres est égal à 0,995.

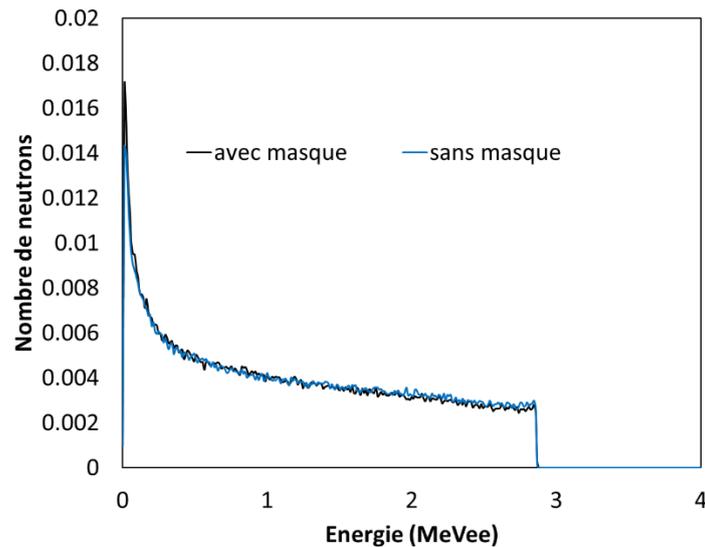


Figure IV-14 Comparaison entre les deux spectres en énergie de protons de recul (exprimé en MeVee) pour une source neutronique d'énergie 5 MeV, obtenue avec (ligne noire) et sans (ligne bleue) la présence du masque codé.

Afin de réaliser une mesure de spectrométrie neutronique à l'aide d'un code de déconvolution, nous avons simulé 10^8 neutrons incidents et nous avons enregistré la réponse en énergie du volume total du scintillateur afin d'avoir un nombre suffisant d'évènements. La matrice de réponse utilisée est de dimensions (1022 lignes \times 150 colonnes). Les 150 colonnes correspondent aux 150 énergies de neutrons incidents mono-énergétiques, qui sont comprises entre 0,1 MeV et 15 MeV avec un pas de 0,1 MeV. Les 1022 lignes correspondent aux nombres d'intervalles du spectre en énergie des protons de recul associé à chaque énergie de neutrons. Les spectres de protons de recul ont des énergies comprises entre 1 keVee et 12 MeVee. La Figure IV-15 donne quelques exemples de courbes de réponse simulées.

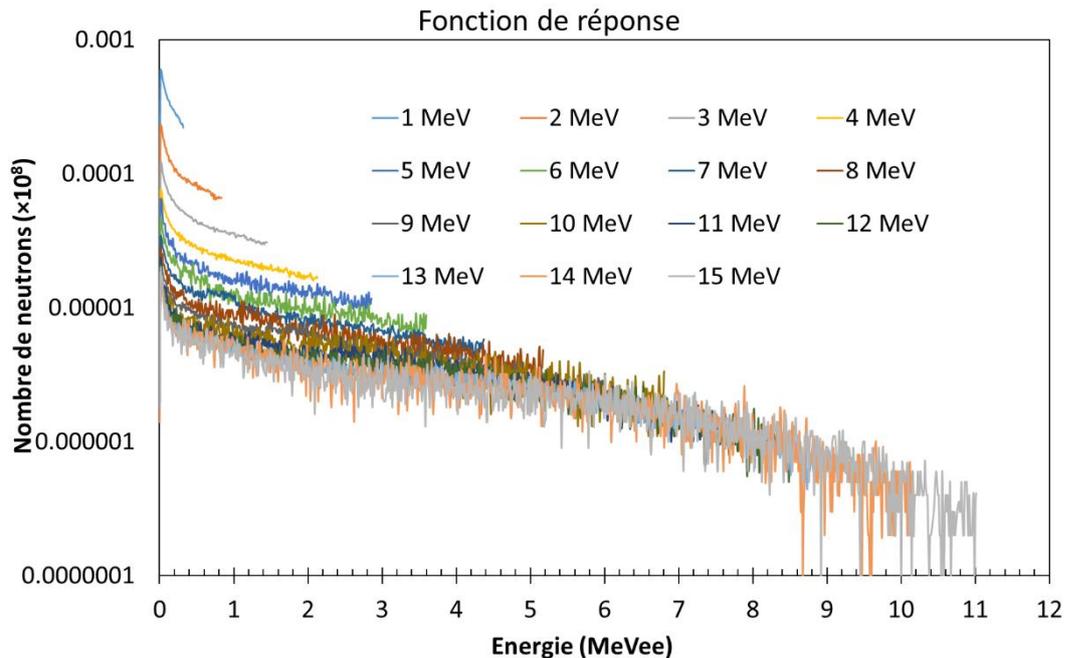


Figure IV-15 Spectres en énergie de protons de recul exprimés en MeVee extraits de la fonction de réponse simulée par le code Monte Carlo MCNP6.2 pour le scintillateur plastique pixellisé. L'axe des ordonnées est présenté sur une échelle logarithmique.

En utilisant l'algorithme de déconvolution MLEM et la fonction de réponse décrite dans le paragraphe précédent, nous avons déconvolué le spectre en énergie de protons de recul des sources neutroniques ^{252}Cf et AmBe. Le spectre initial utilisé est un spectre plat. La Figure IV-16 et la Figure IV-17 montrent les spectres en énergie de neutrons incidents des sources ^{252}Cf et AmBe reconstruits avec l'algorithme MLEM et comparés à leur spectre de référence. Une comparaison des valeurs d'erreur quadratique moyenne (EQM) obtenues entre source et par rapport au scintillateur monobloc est présentée dans le Tableau IV-1. Telle que déjà observé, la reconstruction du spectre en énergie de la source ^{252}Cf est plus fidèle que celle de l'AmBe ; les valeurs d'EQM obtenues pour ^{252}Cf et AmBe sont respectivement égales à $2,110 \times 10^{-7}$ et $6,333 \times 10^{-7}$. De plus, les spectres d'énergie des sources de ^{252}Cf et d'AmBe reconstruits avec MLEM se sont révélés de moindre qualité lorsque l'on utilise le scintillateur plastique pixellisé par rapport au scintillateur plastique monobloc ; cette dégradation étant surtout marquée pour l'AmBe. Cette différence de performance de spectrométrie neutronique entre le scintillateur pixellisé et le monobloc, peut potentiellement être attribuée à la présence de PTFE entre les pixels et/ou à l'impact de la présence du masque codé. Afin de comprendre l'origine de cette différence, il est important d'étudier de manière approfondie trois aspects : d'une part, l'épaisseur plus réduite d'un pixel de scintillateur (0,42 cm) par rapport au scintillateur monobloc (2 cm) et l'influence de PTFE entourant chaque pixel y compris les interactions entre les pixels voisins ; d'autre part, la présence du masque codé peut influencer la réponse en énergie de chaque pixel, suivant sa disposition dans le volume total du scintillateur, ainsi que sa position par rapport aux pleins et trous du masque codé. Ces aspects seront étudiés dans les perspectives des travaux de thèse.

Sources de neutrons	Type du scintillateur	
	Scintillateur monobloc	Scintillateur pixellisé
^{252}Cf	$6,306 \times 10^{-8}$	$2,110 \times 10^{-7}$
AmBe	$2,398 \times 10^{-7}$	$6,333 \times 10^{-7}$

Tableau IV-1 Comparaison entre les valeurs de EQM obtenues avec les sources ^{252}Cf et AmBe par les deux types de scintillateur pixellisé et monobloc.

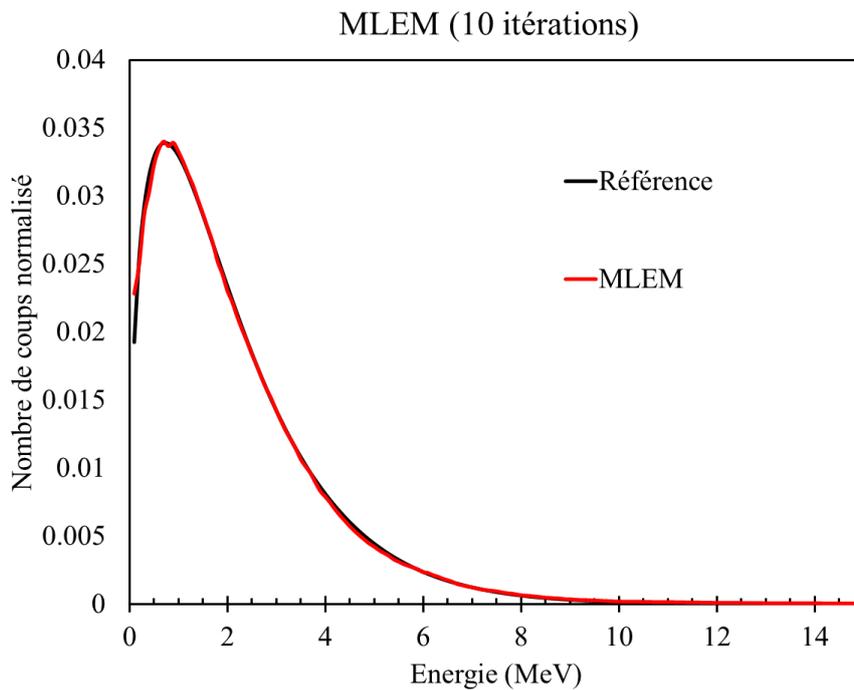


Figure IV-16 Comparaison entre le spectre en énergie de la source de ^{252}Cf reconstruit par MLEM et le spectre utilisé dans la simulation (spectre ISO).

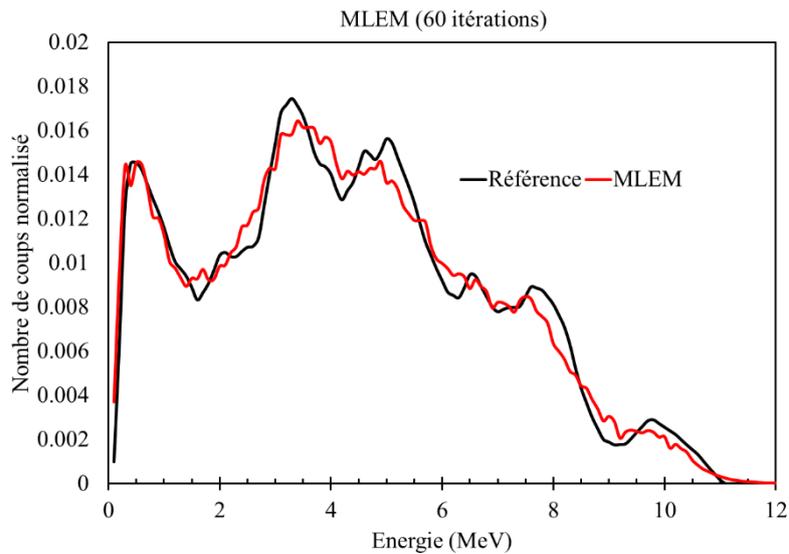


Figure IV-17 Comparaison entre le spectre en énergie de la source d'AmBe reconstruit par MLEM et le spectre utilisé dans la simulation (spectre ISO).

IV.4. Etalonnage du scintillateur pixellisé

IV.4.1. Etalonnage du scintillateur pixellisé 12×12

Dans le chapitre 3, nous avons montré l'importance de l'étalonnage en énergie des photons gamma (ou électrons) et neutrons (ou protons) du scintillateur plastique afin de réaliser une mesure de spectrométrie neutronique sur des données expérimentales. Pour cette raison, afin d'effectuer la spectrométrie neutronique avec le scintillateur pixellisé du prototype spectro-imageur, nous devons l'étalonner au préalable en énergie gamma et neutrons, comme cela a été fait précédemment pour le scintillateur monobloc. Toutefois, il est important de noter que l'étalonnage du scintillateur pixellisé exige une approche plus détaillée, nécessitant un étalonnage individuel pour chaque pixel. Cette exigence découle des variations dans les réponses observées au niveau de chaque pixel du scintillateur ainsi que de chaque SiPM de la matrice de photodétecteurs. En effet, chaque pixel du SiPM a un facteur de gain différent, ce qui entraîne une réponse énergétique différente [5]. La problématique de l'étalonnage en énergie par pixel du détecteur est également présente en imagerie gamma (cf. étalonnage des puces Timepix présentes dans la caméra Nanopix [5]).

Afin d'étalonner en énergie des photons le scintillateur plastique pixellisé, nous exposons ce dernier à une source gamma ^{137}Cs , à une distance de 10 cm, et sans intégrer le masque codé. Nous avons enregistré 3×10^5 événements. La Figure IV-18 présente le spectre en énergie pour chacun des 144 pixels du scintillateur. À partir de ces résultats, nous constatons que le nombre d'événements détectés dans chaque pixel n'est pas suffisant pour obtenir un spectre en énergie exploitable pour le ^{137}Cs . Par ailleurs, étant donné que les données sont enregistrées impulsion par impulsion, l'augmentation du nombre d'événements enregistrés compliquerait grandement le post-traitement des données. Par conséquent, nous avons opté pour l'utilisation d'un collimateur afin de limiter l'irradiation à un seul pixel et obtenir un nombre d'événements suffisant dans un pixel donné.

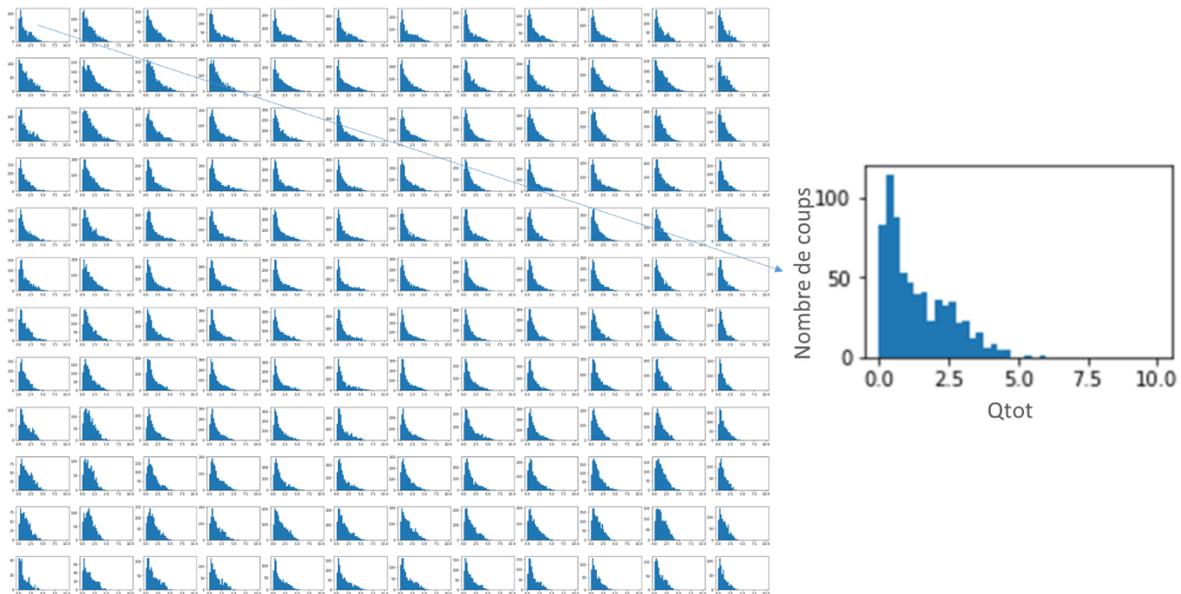


Figure IV-18 Illustration montrant le spectre en énergie mesuré de la source ^{137}Cs dans chaque pixel du scintillateur.

Nous avons utilisé le faisceau de rayons X mono-énergétiques du LNHB (Laboratoire National Henri Becquerel) au CEA Saclay. Il peut être important de rappeler que les rayons X et les photons gamma sont des rayonnements électromagnétiques et interagissent de manière similaire dans le scintillateur. Cependant, l'utilisation du faisceau de rayons X nous a permis non seulement d'obtenir des photons X mono-énergétiques, mais aussi d'étalonner le détecteur à basse énergie (<1 MeV). La Figure IV-19 présente le prototype de l'imageur, qui est placé dans un blindage en plomb lors de l'exposition au faisceau de rayons X. Le blindage a pour objectif d'éviter la détection des rayons X diffusés. Le détecteur est équipé d'un collimateur de 2 mm². Le nombre total d'événements enregistrés s'élève à 1×10^5 . La Figure IV-21 illustre la répartition des événements dans les pixels du scintillateur, mettant en évidence l'effet de la collimation qui se traduit par une accumulation des événements dans un pixel spécifique.

Les énergies de rayons X émis sont 70 keV, 125 keV, 170 keV et 240 keV. Les spectre en énergie pour ces rayons X sont présentés sur la Figure IV-20. La Figure IV-22 montre le spectre en énergie du pixel irradié pour chacune des quatre énergies de rayons X. Suite aux premières mesures réalisées à l'aide du faisceau de rayons X, nous avons remarqué qu'il n'existe pas de différences significatives entre les différentes réponses en énergie. Plusieurs facteurs pourraient contribuer à cette absence de décalage. Tout d'abord, les dimensions réduites du scintillateur pourraient jouer un rôle en limitant les effets de décalage d'énergie. De plus, la collimation du faisceau pourrait influencer l'énergie du rayonnement, car elle peut altérer la composition du faisceau lui-même. En outre, l'aspect de la pixellisation du détecteur ainsi que les effets liés aux parois du dispositif pourraient altérer la forme générale des spectres, ce qui pourrait potentiellement influencer la détection d'un décalage en énergie. Une compréhension plus détaillée de la configuration expérimentale, comportement du faisceau et du détecteur, aurait alors été nécessaire pour poursuivre l'étalonnage par pixel avec cette méthode.

En parallèle, nous avons suivi une démarche visant à étalonner en énergie de neutrons le scintillateur plastique pixellisé en utilisant le faisceau de protons mono-énergétiques. L'intérêt d'utiliser le faisceau de protons mono-énergétiques par rapport au générateur de champs neutroniques mono-énergétiques réside dans le fait qu'il est équipé d'un système de collimation bien maîtrisé, automatisé

et caractérisé, ce qui nous permet de réaliser un étalonnage pixel par pixel du scintillateur. Cependant, vu les défis rencontrés lors de l'étalonnage en énergie gamma du scintillateur plastique pixellisé 12×12, nous avons proposé d'utiliser une version simplifiée du scintillateur plastique pixellisé, en réduisant le nombre de pixels et en augmentant leur taille. Cette étude est détaillée dans le paragraphe suivant.



Figure IV-19 Photographie de la campagne de mesures réalisée au LNHB en irradiant le scintillateur pixellisé par un faisceau de rayons X mono-énergétiques.

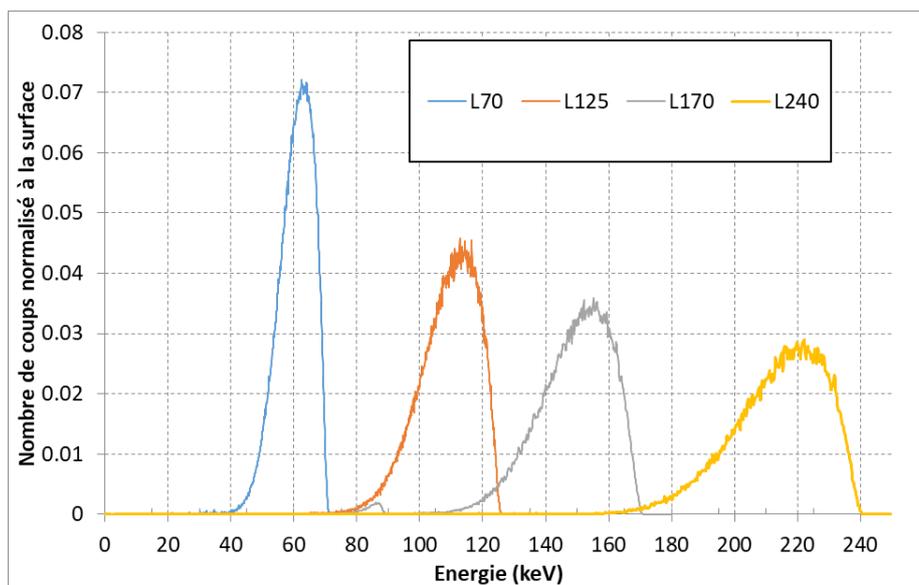


Figure IV-20 Les quatre spectres en énergie de rayons X émis par le faisceau L70, L125, L170 et L240.

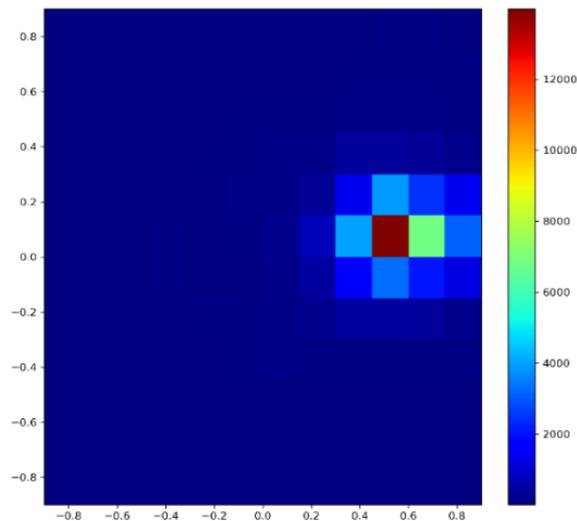


Figure IV-21 Illustration de la répartition des événements dans les pixels du scintillateur exposé au faisceau collimaté de rayons X.

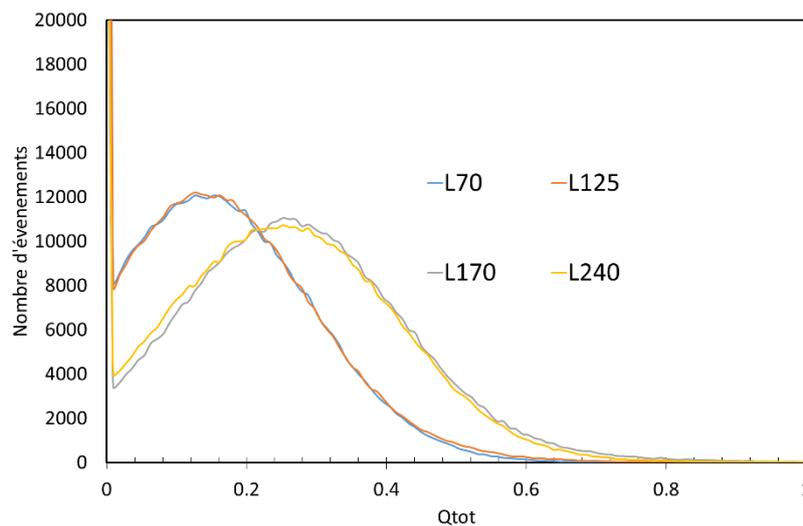


Figure IV-22 Spectres en énergie obtenus pour le pixel irradié pour les différentes énergies de rayons X.

IV.4.2. Etalonnage du scintillateur pixellisé 2 × 2

Avant d'étalonner le scintillateur pixellisé 12×12 avec le faisceau de protons mono-énergétiques de l'installation Cyréc, nous avons opté pour une configuration plus simple, en augmentant la taille des pixels, en réduisant leur nombre, et en augmentant l'épaisseur du couche de PTFE séparant deux pixels. À cette fin, nous avons utilisé un scintillateur pixellisé en une matrice de 2×2 pixels fabriqué par l'équipe de chimistes au laboratoire LCIM à partir d'un moule en PTFE, dont le modèle 3D est visible à gauche de la Figure IV-23. Chaque pixel est un cube de 6×6×8 mm³ (largeur × longueur × hauteur) et séparé de l'autre pixel par une couche de PTFE de 5 mm, présenté au milieu de la Figure IV-23. Cette nouvelle configuration du scintillateur plastique permet de mieux évaluer la réponse de chaque pixel en les espaçant pour s'affranchir de l'impact des pixels voisins (couche de PTFE de 5 mm séparant les

pixels contre 0,6 mm sur le scintillateur pixellisé 12×12). Le scintillateur pixellisé 2 × 2 est relié optiquement à une matrice de SiPM, montré à droite de la Figure IV-23, présentant la même surface et le même nombre de pixels. Pour cette nouvelle configuration du scintillateur, une carte électronique est conçue pour récupérer le signal de chaque pixel du SiPM individuellement.

Premièrement, nous avons étalonné par pixel le scintillateur plastique pixellisé (2 × 2) avec des sources gamma ^{22}Na et ^{137}Cs présentes au laboratoire. Les courbes d'étalonnages déterminées pour chacun des quatre pixels sont présentées sur la Figure IV-24. Les équations des courbes d'étalonnage de chaque pixel reliant la charge totale mesurée, Q_{tot} , à l'énergie, E , déposée par les photons gamma, sont les suivantes :

- Pixel 1 : $Q_{tot} = 0,036 E + 0.121$
- Pixel 2 : $Q_{tot} = 0,037 E - 0.377$
- Pixel 3 : $Q_{tot} = 0,036 E - 0.907$
- Pixel 4 : $Q_{tot} = 0,036 E - 0.630$

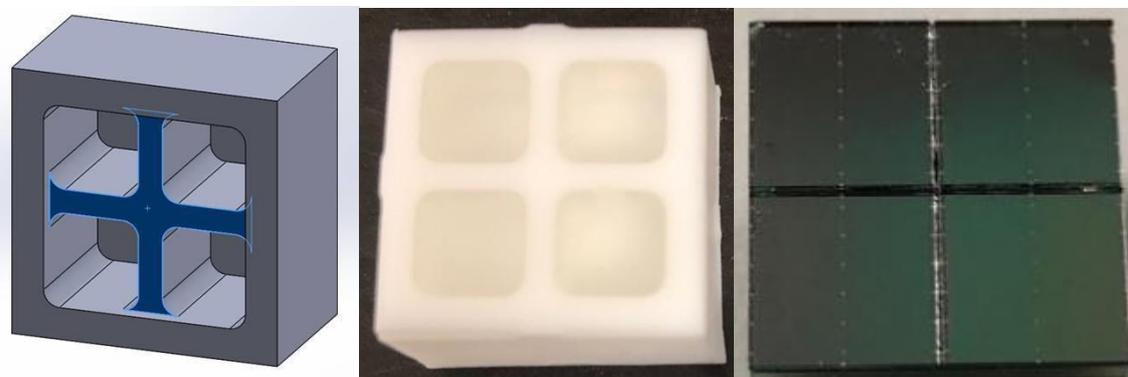


Figure IV-23 À gauche : Modèle 3D du moule en PTFE. Au milieu : photographie du scintillateur pixellisé en 2 × 2 pixels. À droite : photographie de la matrice SiPM formée de 2 × 2 pixels.

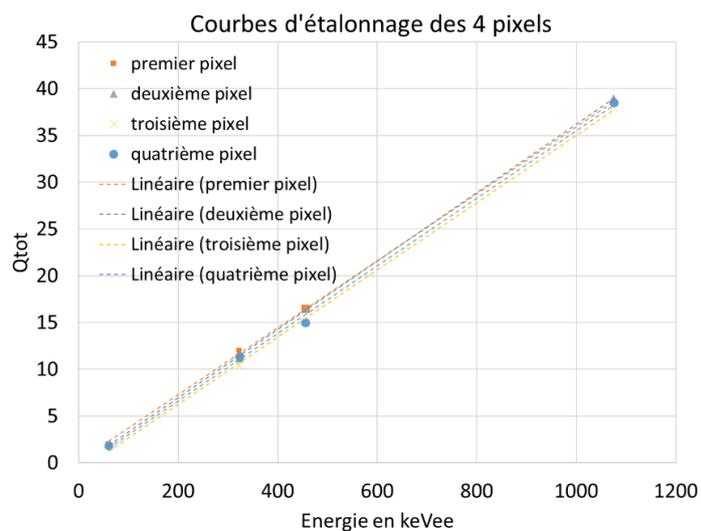


Figure IV-24 Les courbes d'étalonnage de chaque pixel du scintillateur pixellisé en 2 × 2 pixels, en utilisant les sources gamma ^{22}Na et ^{137}Cs .

Deuxièmement, pendant la campagne de mesures à l'installation Cyréc, nous avons étalonné le scintillateur pixellisé 2×2 à l'aide du faisceau de protons mono-énergétiques. Chaque pixel a été étalonné individuellement en utilisant un collimateur de 3 mm, pour diriger le faisceau sur un seul pixel du scintillateur, comme le montre la Figure IV-25. En plus, le détecteur était fixé sur un support, qui permet de déplacer le détecteur à distance dans le plan XY (Z étant la direction du faisceau). Les énergies de protons incidents sont 24,64 MeV, 24,01 MeV, 23,68 MeV et 23,37 MeV, 22,69 MeV et 22,03 MeV. La Figure IV-26 illustre les quatre fonctions de réponses correspondant aux quatre pixels. À partir des résultats obtenus, nous observons des différences significatives entre les courbes de réponse des quatre pixels irradiés. Cette observation est plutôt surprenante, car lors de l'étalonnage gamma, nous avons obtenu des courbes d'étalonnage gamma très similaires. En plus, nous remarquons la présence d'une caractéristique de double bosse, en particulier pour les pixels 3 et 4. Nous supposons que cette différence entre les fonctions de réponse des quatre pixels, résulte d'une erreur de collimation du faisceau, qui ne semble pas être correctement centré sur le pixel, mais plutôt dirigé vers les parois où le matériau PTFE est présent, avec un effet plus marqué dans le cas du pixel 1. Une autre hypothèse à considérer est que le fond du moule qui supporte les pixels du scintillateur n'est pas parfaitement lisse, ce qui entraîne une variation de l'épaisseur de PTFE traversée par le faisceau de protons avant d'atteindre le pixel de scintillateur. Cette variation d'épaisseur peut modifier l'énergie des protons atteignant le scintillateur, ce qui pourrait expliquer les réponses en énergie différentes observées pour un même pixel, contribuant ainsi à la présence de la double bosse, en particulier pour les pixels 3 et 4.

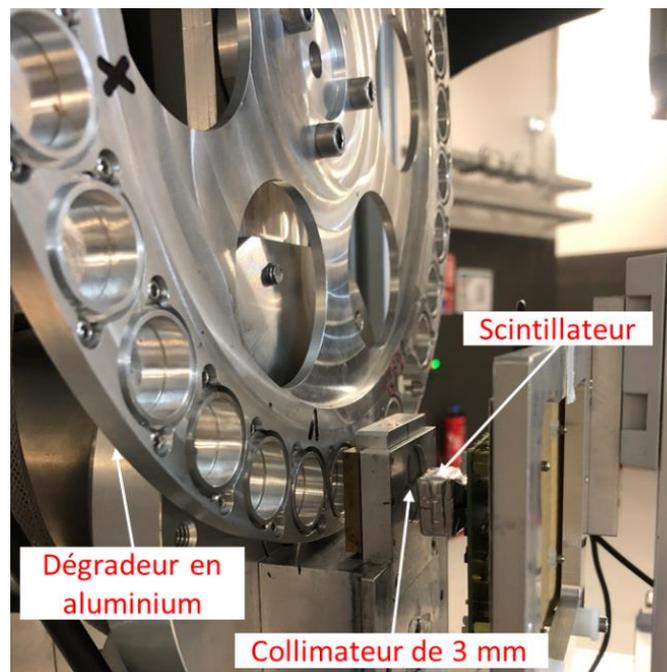


Figure IV-25 Photographie de la campagne de mesures réalisée à Cyréc, où un scintillateur plastique pixellisé en 2×2 pixels a été exposé à un faisceau de protons mono-énergétiques passant à travers un collimateur de 3 mm.

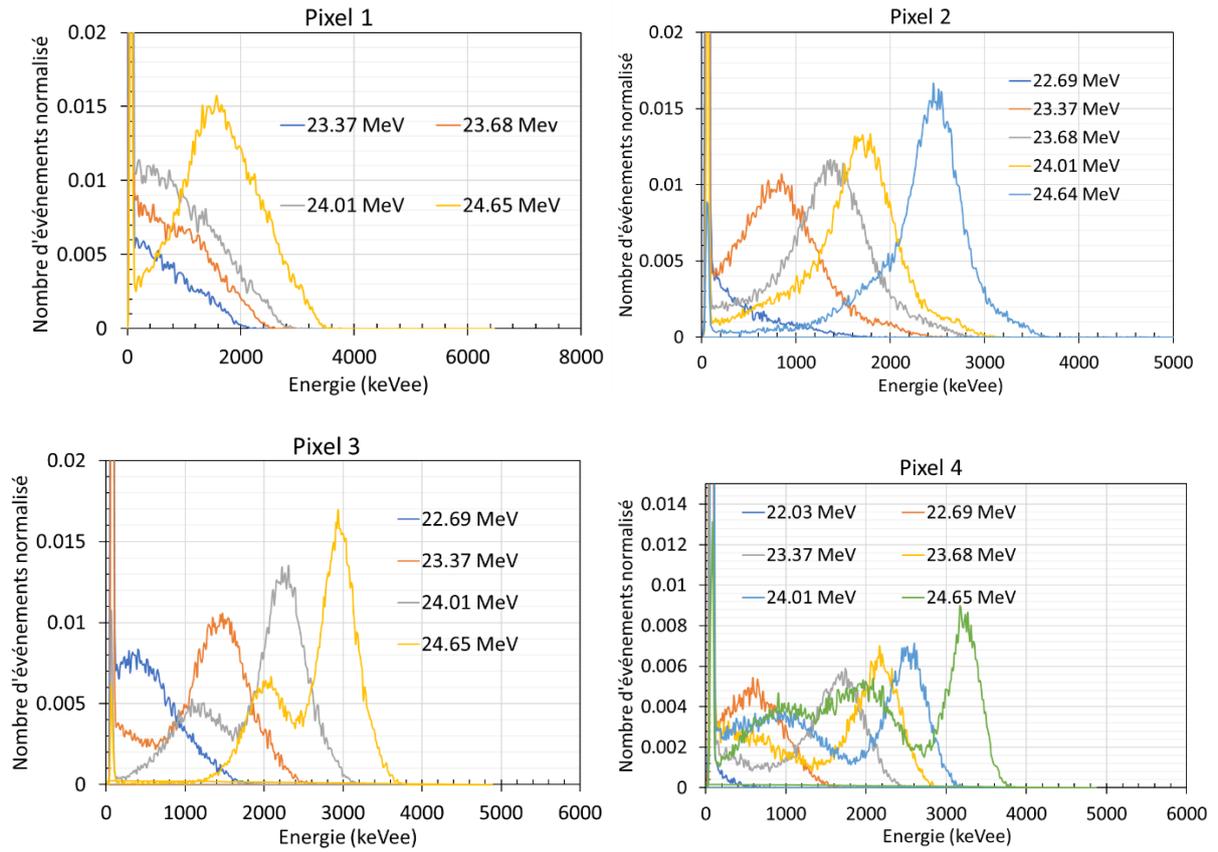


Figure IV-26 Fonction de réponse de chacun des quatre pixels du scintillateur pixellisé en 2x2 pixels.

IV.5. Synthèse du chapitre 4

Dans ce chapitre, nous avons présenté le prototype du spectro-imageur formé d'un scintillateur pixellisé en 12×12 pixels, couplé optiquement à une matrice de SiPM, et associé à un masque codé de type MURA. Avec ce prototype, une source de ^{252}Cf émettant $1,12 \times 10^5$ neutrons. s^{-1} placée à 100 cm du détecteur est localisée en 4,5 heures. D'autre part, les résultats expérimentaux obtenus lors de mesures *in-situ*, devant le générateur de champs neutroniques mono-énergétiques de l'installation Amande, démontrent que le prototype d'imageur de neutrons reste efficace même lorsque le détecteur est positionné loin de la source. Une image neutronique a été prise en 40 min du générateur de champs neutroniques mono-énergétiques émettant 5×10^5 neutrons. cm^{-2} et placé à 6 m du détecteur.

En plus, nous avons validé par simulation Monte Carlo la capacité du prototype du spectro-imageur à reproduire, avec un scintillateur pixellisé, les spectres en énergie pour des sources neutroniques tels que les sources ^{252}Cf et AmBe. Néanmoins, une dégradation est observée du spectre déconvolué avec le scintillateur pixellisé par comparaison au spectre déconvolué avec le scintillateur monobloc. Pour déterminer l'origine de cette différence, il est nécessaire de mener une étude approfondie de l'effet de l'aspect pixellisation et miniaturisation du scintillateur ainsi que la présence du masque codé sur la réponse en énergie du scintillateur.

D'autre part, dans ce chapitre, nous avons présenté les contraintes liées à l'étalonnage pixel par pixel du scintillateur pixellisé en 12×12 pixels. Les premiers essais d'étalonnage « global » à l'aide de sources gamma, et par pixel avec le faisceau de rayons X, n'ont pas abouti à des résultats permettant d'étalonner le scintillateur pixellisé (12×12). En conséquence, nous avons proposé dans la suite des travaux, d'étalonner le scintillateur pixellisé en 12×12 pixels avec des irradiateurs contenant des sources radioactives tels que l'irradiateur ^{137}Cs du LNHB. En plus, nous avons essayé également d'étalonner un scintillateur pixellisé présentant des pixels plus grands ($6 \times 6 \times 8 \text{ mm}^3$ au lieu de $3,6 \times 3,6 \times 3,6 \text{ mm}^3$) et moins de pixels (2×2 au lieu de 12×12). Pour ce faire, nous avons effectué un étalonnage par pixel en utilisant des rayonnements gamma, suivi d'un étalonnage par pixel en utilisant le faisceau de protons mono-énergétiques de l'installation Cyrcé. Les quatre pixels qui avaient des réponses similaires à une même énergie de rayonnements gamma, ont donné des réponses différentes en les irradiant avec la même énergie de faisceau de protons. Par conséquent, des études supplémentaires doivent être menées dans les perspectives de la thèse pour étudier l'effet de la configuration de mesure sur les protons incidents sur le scintillateur.

IV.6. Bibliographie du chapitre 4

- [1] C. Lynde, Développement d'un imageur neutron portable, Thèse de doctorat, Université de Strasbourg, Ecole doctorale Physique et Chimie Physique 182, 2019. <https://www.theses.fr/2019STRAE006>.
- [2] C. Lynde, C. Frangville, R. Woo, V. Schoepff, G.H.V. Bertrand, J.M. Bourbotte, M. Hamel, J. Dumazert, F. Carrel, On the Use of Pixelated Plastic Scintillator and Silicon Photomultipliers Array for Coded Aperture Gamma-Neutron Imaging, *IEEE Trans Nucl Sci.* 69 (2022) 731–737. <https://doi.org/10.1109/TNS.2022.3140601>.
- [3] C. Lynde, E. Montbarbon, M. Hamel, A. Grabowski, C. Frangville, G.H. V Bertrand, G. Galli, F. Carrel, V. Schoepff, Z. El Bitar, Optimization of the Charge Comparison Method for Multiradiation Field Using Various Measurement Systems, *IEEE Trans Nucl Sci.* 69 (2020) 679–687. <https://doi.org/10.1109/TNS.2020.2966886>.
- [4] H. Lemaire, Développement d'une caméra gamma de troisième génération, Thèse de doctorat, Université de Caen Basse-Normandie, École doctorale SIMEM, 2019. <https://hal.archives-ouvertes.fr/tel-02271784>.
- [5] G. Amoyal, Développement d'un imageur gamma hybride pour les applications de l'industrie nucléaire, thèse de doctorat, Université Caen Normandie, Ecole doctorale PSIME, 2020. <https://theses.hal.science/tel-02522908v2>.

Conclusion générale

Le sujet de thèse faisant l'objet du présent mémoire visait à développer un spectro-imageur neutronique à haute sensibilité de détection, permettant de réaliser simultanément la localisation et la spectrométrie des sources neutroniques. Ce prototype a pour vocation de permettre une cartographie radiologique plus complète des sites nucléaires durant les opérations d'A&D. Pour atteindre cet objectif, notre travail a été structuré autour de deux axes principaux : l'imagerie neutronique et la spectrométrie neutronique. Dans l'état de l'art, présenté au chapitre 1, nous avons identifié deux méthodes principales pour effectuer la spectrométrie neutronique dans le contexte applicatif spécifique de l'A&D : calcul du spectre en énergie des neutrons incidents à partir du spectre mesuré en utilisant un code de déconvolution et mesure de l'énergie des neutrons incidents en utilisant la technique du temps de vol des neutrons entre deux détecteurs. En ce qui concerne l'imagerie neutronique, il existe également deux approches principales : l'imagerie par encodage spatial (et/ou temporel) et l'imagerie par diffusion élastique entre deux ou plusieurs détecteurs. Les prototypes d'imageurs basés sur la diffusion élastique offrent un large champ de vue (pouvant atteindre 360°) mais une résolution angulaire faible (pouvant atteindre 10°). La plupart de ces prototypes intègrent également des mesures de spectrométrie neutronique. D'autre part, les imageurs par encodage spatial ont un champ de vue relativement restreint (pouvant atteindre 50°) et une résolution angulaire qui peut atteindre jusqu'à 1°. Il est important de noter que jusqu'à présent, aucun prototype d'imageur basé sur l'encodage spatial n'intègre la mesure de spectrométrie neutronique. Par conséquent, le but de la thèse était de développer un imageur neutronique par encodage spatial en lui intégrant la mesure de spectrométrie neutronique. Le cœur de ce prototype est formé d'un scintillateur plastique pixellisé en une matrice de 12×12 pixels et relié optiquement à une matrice 12×12 de SiPM. Cet imageur est associé à un masque codé de type MURA, offrant un champ de vue de 68° et une résolution angulaire de 7°.

Au niveau de l'axe de la spectrométrie neutronique, nous avons tout d'abord appliqué la méthode de déconvolution des spectres sur un monobloc de scintillateur plastique discriminant neutrons/gamma plutôt que sur le scintillateur plastique pixellisé qui forme le cœur de l'imageur, dans le but de simplifier la configuration du détecteur. Nous avons testé et comparé trois codes de déconvolution différents : MAXED, GRAVEL et MLEM, en utilisant des données simulées provenant d'un scintillateur monobloc. Les trois codes de déconvolution ont montré leur capacité à reproduire les spectres en énergies des sources ^{252}Cf et AmBe, en présentant un très bon accord avec leurs spectres de référence. Néanmoins, nous avons montré que l'algorithme MLEM était plus performant que les codes MAXED et GRAVEL pour reconstruire le spectre en énergie des sources ^{252}Cf et AmBe. Par conséquent, nous avons opté pour l'utilisation du MLEM pour la déconvolution des spectres dans la poursuite de nos travaux. Avant d'appliquer la spectrométrie par déconvolution des spectres sur des données mesurées, nous avons déterminé la fonction de réponse aux neutrons du scintillateur en effectuant des mesures avec deux types de sources : le générateur de champs neutroniques mono-énergétiques de l'installation Amande de l'IRSN sur le site CEA de Cadarache, et un faisceau de protons mono-énergétiques de l'installation Cyrcé, rattachée au CNRS à Strasbourg. Les deux fonctions de réponse obtenues grâce à ces deux méthodes étaient en bon accord sur la gamme d'énergie étudiée. Déterminer la fonction de réponse du scintillateur plastique en utilisant un faisceau de protons mono-énergétiques constitue ainsi une approche complémentaire par rapport à une étape d'étalonnage basée sur une source de champs neutroniques mono-énergétiques. Ensuite, nous avons évalué expérimentalement la performance de spectrométrie neutronique du prototype expérimental formé d'un monobloc de scintillateur plastique cubique de 2 cm³ relié à une matrice de 2×2 SiPM. À l'aide de

ce prototype, nous avons réussi à reconstruire avec précision et au-delà de 2 MeV les spectres en énergie des sources neutroniques ^{252}Cf et AmBe et le spectre de neutrons mono-énergétiques (4404 keV) émis par le faisceau d'Amande. Cependant, la détection de neutrons à basse énergie (< 1 MeV) reste limitée. Cet aspect découle principalement de la difficulté de détecter puis discriminer les neutrons des photons gamma pour de faibles énergies déposées.

Au niveau de l'imagerie neutronique, la performance du spectro-imageur a été évaluée à l'aide de mesures en conditions de laboratoire. Nous avons montré qu'une source de ^{252}Cf , émettant $1,12 \times 10^5$ neutrons. s^{-1} et placée à 100 cm du détecteur, pouvait être localisée en 270 min. D'autre part, des résultats expérimentaux ont également été obtenus lors d'une mesure *in-situ*, via l'utilisation du générateur de champs neutroniques mono-énergétiques de l'installation Amande, émettant 5×10^5 neutrons. cm^{-2} au niveau du point d'émission du faisceau. Le détecteur a été placé à 6 m du faisceau, et la durée totale de l'acquisition a été de 40 min. D'autre part, nous avons validé par simulation Monte Carlo la capacité du prototype de spectro-imageur, à reproduire les spectres en énergie des sources neutroniques de type ^{252}Cf et AmBe, en considérant l'utilisation d'un scintillateur pixellisé. Néanmoins, une dégradation des spectres déconvolués est observée en utilisant le scintillateur pixellisé par comparaison aux résultats obtenus à l'aide du scintillateur monobloc. Cette différence de performance de spectrométrie neutronique entre le scintillateur pixellisé et le monobloc pourrait être attribuée à la présence de téflon entre les pixels et/ou à l'impact de la présence du masque codé. Finalement, des difficultés ont été rencontrées lors de la phase d'étalonnage par pixel du scintillateur plastique pixellisé (12x12), via l'utilisation d'un faisceau de rayons X mono-énergétiques collimaté.

À la lumière de ces résultats, plusieurs perspectives majeures se dessinent. Au niveau de l'amélioration de la sensibilité du prototype du spectro-imageur, tout d'abord, il est envisagé d'optimiser par simulation Monte Carlo la sensibilité de l'imageur en changeant l'épaisseur du détecteur formé du scintillateur pixellisé, ainsi que le nombre et l'agencement spatial des pixels. Deuxièmement, l'amélioration de la sensibilité peut être réalisée également par le développement d'algorithmes permettant de discriminer plus efficacement les neutrons des rayonnements gamma. Une des options consisterait à remplacer la méthode de discrimination traditionnelle PSD par une méthode reposant sur l'intelligence artificielle permettant de discriminer les neutrons des photons gamma à de faibles énergies (<1 MeV). D'autre part, le passage de l'encodage spatial surfacique à volumétrique par le biais d'un masque codé en trois dimensions (par exemple masque spirale) serait susceptible d'améliorer le champ de vue. Au niveau de la spectro-imagerie, l'étalonnage par pixel du scintillateur plastique pixellisé reste à l'heure actuelle un verrou significatif. Pour cela, le laboratoire LCIM est en ce moment engagé, par le biais d'une thèse financée par le projet ANR (Agence Nationale de la Recherche) iNET (imageur Neutron Transportable), dans le développement d'une électronique de lecture des signaux issus des matrices de SiPM. L'objectif est de proposer une architecture matérielle permettant de gérer un ensemble de SiPM en réalisant des systèmes de lecture de signaux distribués de manière simple et efficace. Des études expérimentales seront également menées pour la mesure du gain intrinsèque des SiPMs au sein de la matrice et de leur dépendance en température afin d'égaliser leurs réponses.

Liste des abréviations

A&D : Assainissement et Démantèlement
ALARA : *As Low As Reasonably Achievable*
NR : Nucléaires et Radiologiques
MAXED : *Maximum Entropy Deconvolution*
MLEM : *Maximum Likelihood Expectation Maximization*
TEP : Tomographie par Emission de Positons
MCNP : *Monte-Carlo N-Particle transport code*
PHL : *Pulse Height Light*
ISO : *International Organization for Standardization*
EQM : Erreur Quadratique Moyenne
MeVee : *Mega Electron Volt Electron Equivalent*
MeVep : *Mega Electron Volt Proton Equivalent*
SiPM : PhotoMultiplificateurs en Silicium
GEB : *Gaussian Energy Broadening*
FWHM : *Full Width at Half Maximum*
IRSN : Institut de Radioprotection et de Sureté Nucléaire
PSD : *Pulse Shape Discrimination*
Cyrcé : CYclotron pour la ReCherche et l'Enseignement
PTFE : Polytétrafluoroéthylène
MURA : *Modified Uniformly Redundant Array*
RSC : Rapport Signal sur Comptage
LNHB : Laboratoire National Henri Becquerel
ANR : Agence Nationale de la Recherche
iNET : imageur Neutron Transportable

Annexe

Waveshape est une méthode de discrimination gamma/neutron, basée sur l'utilisation d'un algorithme de *Machine Learning* : *One-Dimensional Convolutional Neural Network* (1D-CNN). Cette méthode permet de classer les impulsions associées aux photons gamma et aux neutrons à travers l'allure de leurs signaux de sortie respectifs, corrigés de leur variation de ligne de base individuelle. Pour ce faire, cette méthode nécessite de passer par une phase d'apprentissage. A défaut d'avoir des jeux de données photons gamma et neutrons purs, la pré-classification se fait au moyen de la distribution d'une variable discriminante : IonA, sur laquelle une coupure est appliquée. Cette coupure permet de construire deux jeux de données pour l'entraînement du modèle : un pour les photons gamma et un pour les neutrons (Fig. 1). Cette distribution est obtenue à partir d'une source AmBe.

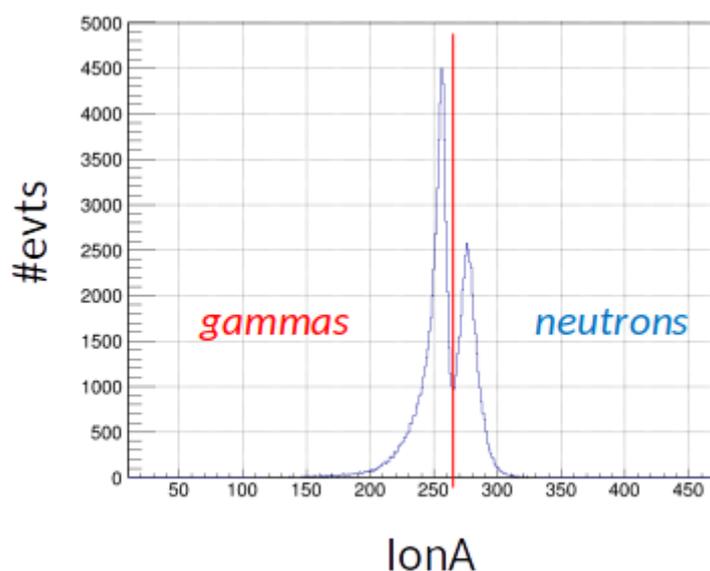


Fig. 1 : Pré-classification des évènements gamma et neutron, à partir de la distribution des IonA.

Pour chaque jeu de données, 2000 impulsions sont sélectionnées. 80% d'entre elles (soit 1600) sont utilisées pour la phase d'entraînement et 20% (soit 400) pour la phase de test. La phase d'apprentissage permet de construire le modèle de discrimination et la phase de test permet de vérifier si celui-ci est prédictible. Les deux phases se font en fonction d'un nombre d'itérations (ou nombre d'epochs), ici fixé à 200. Le nombre d'itérations est choisi de sorte à ce que le modèle discrimine suffisamment tout en restant toutefois prédictible.

La méthode est construite en utilisant la classe TMVA du logiciel ROOT, couplée avec la classe pyKeras Tensorflow de python.

Le schéma du modèle est le suivant (Fig. 2) :

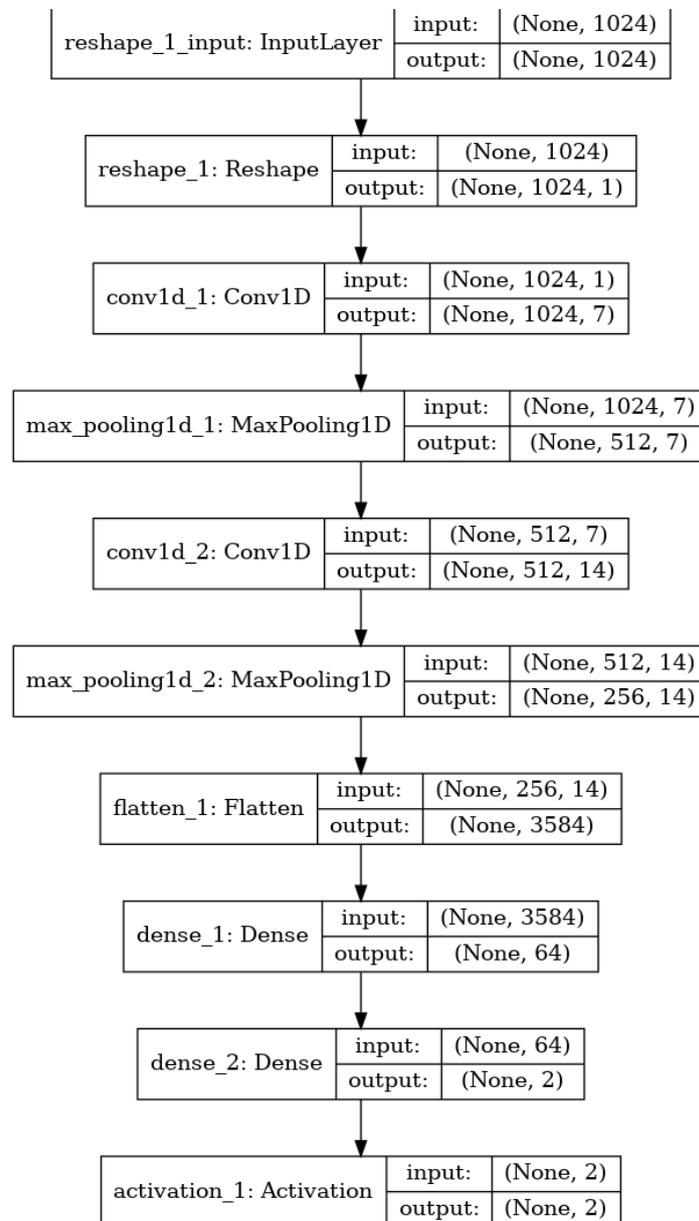


Fig. 2 : Modèle 1D-CNN utilisé pour la discrimination gamma/neutron

Ce modèle est constitué de deux couches de convolution. Ces couches permettent d'analyser le signal par zone, en vue d'apprendre des motifs ou des tendances. Deux étages de convolution sont utilisés : l'un pour l'apprentissage des petits motifs et l'autre pour l'apprentissage de motifs plus importants, basés sur les caractéristiques des premières couches. Ceci permet au modèle d'apprendre des motifs de plus en plus complexes et abstraits. A chaque couche de convolution est associée une couche dite

de MaxPooling, dont l'objectif est de réduire la quantité d'information pour ne garder que celle qui est la plus importante. La couche Flatten permet d'établir la connexion entre les couches de convolution et les couches de base. Parmi les couches de base figurent les couches denses ou couches de prédiction. Celles-ci permettent d'obtenir le label détecté par le modèle. La couche d'*activation* permet de classer les événements sur un nombre de classes données (dans notre cas deux) en fonction du label détecté.

L'entrée d'un modèle 1D-CNN requiert des signaux dont les valeurs sont comprises entre 0 et 1. C'est pourquoi, les signaux Wfs sont normalisés de la manière suivante :

$$Wfs' \rightarrow \left(\frac{Wfs - Offset - Amin}{Amax - Amin} \right) \quad [1]$$

où Amin est l'amplitude minimale du signal

Amax est l'amplitude maximale du signal

Offset est la valeur de la correction de la ligne de base

Wfs correspond aux amplitudes du signal

Comme mentionné précédemment, le modèle utilise 1600 événements en phase d'entraînement, 400 événements en phase de test et un nombre d'epochs de 200. Le modèle délivre un score en sortie associée à la nature de la particule détectée. Ce score est compris entre 0 (pur neutron) et 1 (pur gamma). La figure suivante montre les performances du modèle durant la phase d'entraînement et de test (Fig. 3).

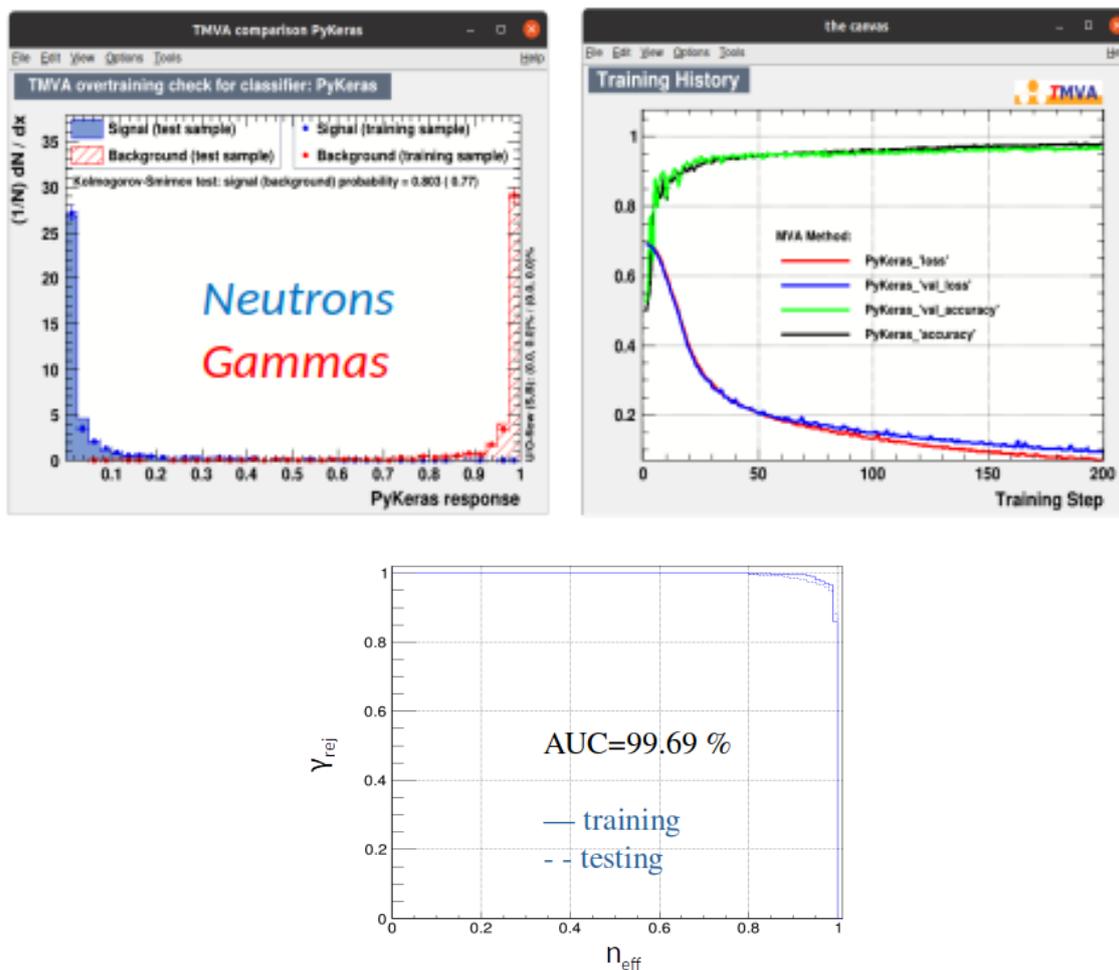


Fig. 3 : Distribution des scores correspondant aux photons gamma et aux neutrons (en haut à gauche), courbes de performances du modèle (en haut à droite), taux de réjection gamma en fonction de l'efficacité neutron (courbe ROC) (en bas).

Sur la figure 3 à gauche est représentée la distribution des scores associés aux photons gamma et aux neutrons pour la phase d'entraînement (point) et la phase de test (histogramme avec remplissage). On constate à travers cette figure que le pouvoir de discrimination est élevé et que les distributions associées à la phase d'entraînement et de test sont en bon accord, ce qui montre que le modèle est prédictible. Le critère pour mesurer le pouvoir de discrimination est déterminé à travers la courbe ROC (*Receiver Operating Characteristic*) (Fig. 3 en bas), qui permet pour chaque valeur de score d'évaluer le taux de réjection des photons gamma en fonction de l'efficacité neutron. Dans notre cas, cette courbe ROC a une AUC (*Area Under Curve*) de 99.69%, ce qui dénote un pouvoir de discrimination gamma/neutron important. Par ailleurs, la figure 3 à droite montre les performances du modèle durant la phase d'entraînement et de test. Deux critères sont pris en compte l'*accuracy* et le *loss*. L'*accuracy* indique le taux de prédiction correct, à travers la formule [2] suivante :

$$\text{accuracy} = \left(\frac{\text{TP} + \text{TN}}{\text{TP} + \text{TN} + \text{FP} + \text{FN}} \right) \quad [2]$$

avec TP = vrai positif

TN = vrai négatif

FP = faux positif

FN = faux négatif

Nous constatons que, dans notre cas, cette grandeur croît et atteint, à la fin de l'étape d'apprentissage, une valeur supérieure à 95%. Par ailleurs, les tendances sont proches entre la courbe d'entraînement et la courbe de test associées à cette grandeur, ce qui dénote que le modèle a un bon pouvoir de discrimination et est prédictible. Le *loss* est plus difficile à interpréter car, contrairement à l'*accuracy*, cette grandeur n'est pas exprimée comme un pourcentage. Il prend en compte l'incertitude d'une prédiction en fonction de l'écart entre la prédiction et la valeur réelle. Il est utilisé pour trouver les meilleurs paramètres (poids dans le 1D-CNN) du modèle. Le but est de minimiser cette valeur. Nous constatons que cette grandeur décroît tout au long de la phase d'apprentissage, pour atteindre une valeur proche de 0. De plus, la tendance est la même entre la courbe d'entraînement et la courbe de test, ce qui dénote une nouvelle fois que le modèle a un bon pouvoir de discrimination et est prédictible.

Une fois le modèle mis en place, nous passons à la phase d'*inférence*. Celle-ci consiste à tester le modèle sur l'ensemble des données mises à disposition (dans notre cas 1000000 d'impulsions). Cette étape va nous permettre de déterminer la proportion de photons gamma et de neutrons, comme le montre la figure 4 en haut.

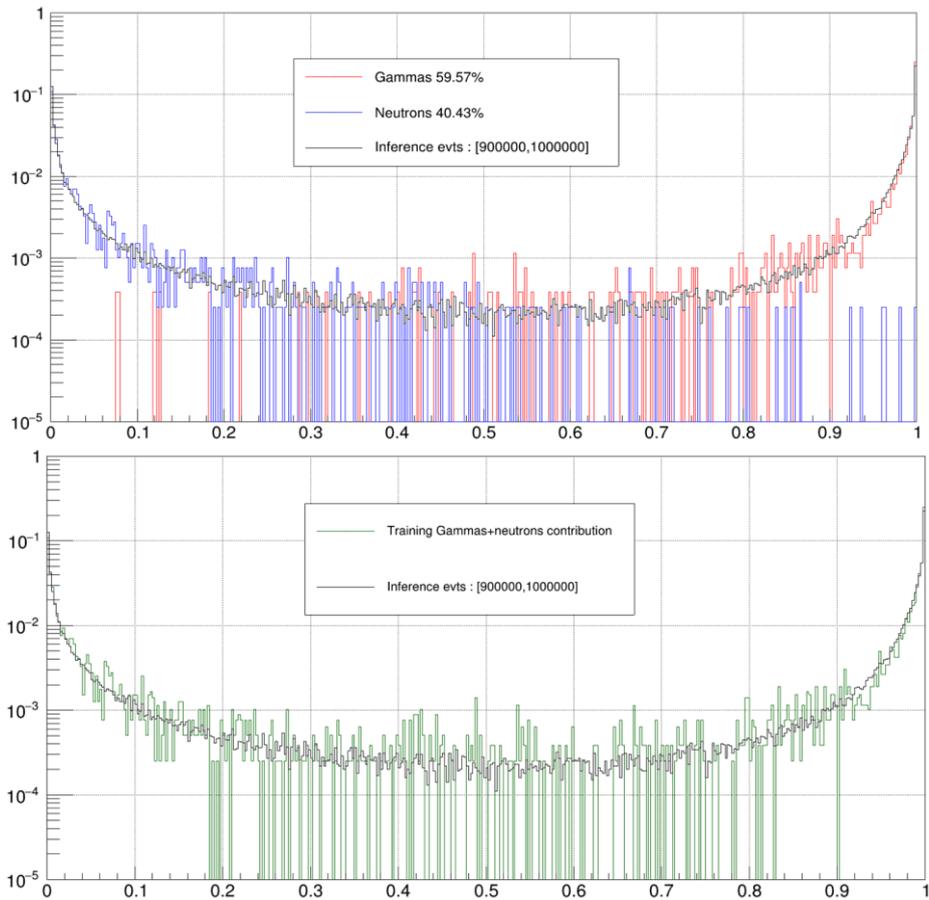


Fig. 4 : Estimation de la proportion neutron/gamma (en haut), ajustement de la distribution de score obtenue par la phase d'entraînement, contribution gamma + neutron (vert) par celle obtenue après inférence (noir) (en bas).

La proportion est déterminée via la méthode de la conservation de la moyenne [3] :

$$p \times M_{neutron} + (1 - p)M_{gamma} = M_{inférence}$$

$$p = \frac{M_{inférence} - M_{gamma}}{M_{neutron} - M_{gamma}} \quad [3]$$

avec p : la proportion neutron

$M_{neutron}$: la valeur moyenne de la distribution des scores neutrons

M_{gamma} : la valeur moyenne de la distribution des scores photons gamma

$M_{inférence}$: la valeur moyenne de la distribution des scores obtenue par inférence.

La figure 4 en bas permet de comparer la distribution des scores (gamma+neutron) obtenues lors de la phase d'*entraînement* et celle obtenue lors de la phase d'*inférence*. Cette figure permet de justifier que le modèle est bien prédictible car les deux courbes s'ajustent bien entre elles.

L'évaluation des proportions est importante quant à la détermination de la coupure à appliquer sur le score pour optimiser (maximiser) la *significance* donnée par le ratio :

$$\frac{S}{\sqrt{S+B}} \quad [4]$$

avec S : signal correspondant au nombre d'évènements neutrons

B : bruit de fond correspondant au nombre d'évènements photons gamma

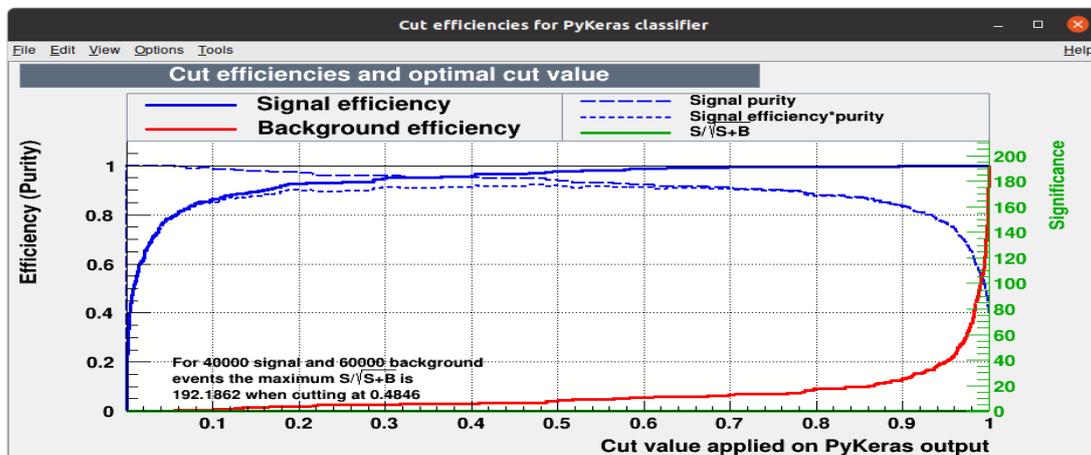


Fig. 5 : Optimisation de la coupure sur le score

La figure 5 montre l'évolution de l'efficacité neutron (bleu en trait plein), l'efficacité gamma (rouge en trait plein), la pureté neutron (bleu en tiret large) et la pureté x efficacité neutron (bleu en trait fin) en fonction de la coupure appliquée sur le score.

- Les efficacités sont définies de la manière suivante :

$$Efficacité = \frac{\int_0^{\text{score appliqué}} \text{Distribution.score}_i(x) dx}{\int_0^1 \text{Distribution.score}_i(x) dx} \quad [5]$$

avec i la nature de la particule : gamma ou neutron

- La pureté est définie de la manière suivante :

$$Pureté = \frac{\int_0^{\text{score appliqué}} \text{Distribution score neutron}(x) dx}{\int_0^{\text{score appliqué}} \text{Distribution score gamma+ neutron}(x) dx} \quad [6]$$

L'optimisation de la coupure à appliquer est donnée à travers le maximum de *significance* calculé par l'algorithme. Dans notre cas, ce maximum est atteint lorsque la valeur de coupure à appliquer sur le score vaut 0,4846. Cette valeur correspond également à la valeur de coupure à appliquer pour laquelle la courbe efficacité x pureté atteint également son maximum. Le tableau récapitulatif (Tab. 1) résume les caractéristiques liées au choix de la coupure optimisée sur le score.

Classifier	(#signal, #backgr.)	Optimal-cut	S/sqrt(S+B)	NSig	NBkg	EffSig	EffBkg
PyKeras:	(40000, 60000)	0.4846	192.186	38900	2068.966	0.9725	0.03448

Tab. 1 : Résumé des caractéristiques liées au choix de la coupure optimisée sur le score

Ce tableau montre qu'en sélectionnant les événements avec un score inférieur ou égal à 0,4846, on obtient une efficacité neutrons de 97,25% et une efficacité photons gamma de l'ordre de 3,45%. Ce tableau nous donne également une information sur le taux de contamination photons gamma. Celui-ci est évalué à travers le ratio suivant :

$$Contamination = \frac{NBkg}{NBkg + Nsig} = \frac{2068,966}{2068,966 + 38900} = 5,05\%$$

A travers ces différentes informations, le spectre d'énergie neutron peut être extrait du spectre d'énergie totale (neutron+gamma) de l'AmBe (Fig. 6).

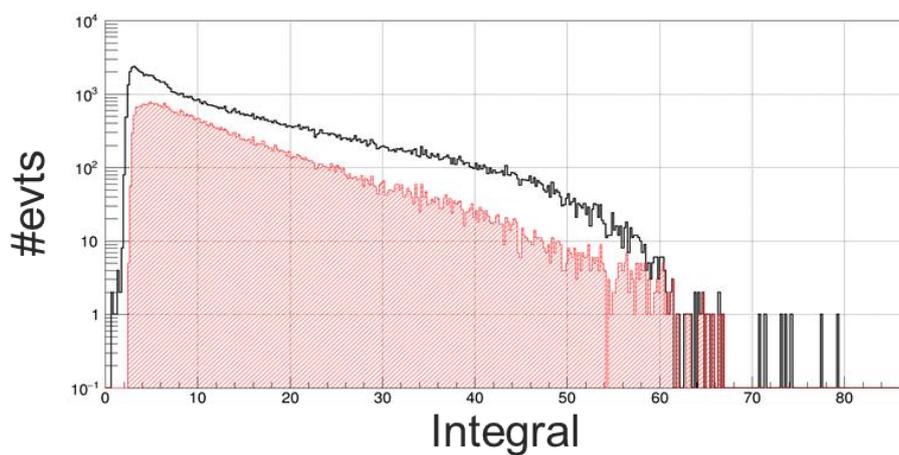


Fig. 6 : Spectre d'AmBe entier (noir), contribution de la partie neutron après application de la coupure optimisée sur le score (rouge).

Liste des figures

Figure I-1 À gauche : Site de Three Mile Island [1]. Au milieu : Centrale de Tchernobyl en 1986 juste après l'explosion du coeur [1]. À droite : la centrale électrique de Fukushima Dai-ichi avant et après le tsunami dévastateur au Japon en 2011 [6].	7
Figure I-2 À gauche : la caméra gamma iPIX-NID. À droite : exemple de mesure d'imagerie gamma pour le contrôle de contamination dans une boîte à gants [19].	8
Figure I-3 Les spectres énergétiques de l'émission neutronique pour différents isotopes du plutonium, pour des réactions de fission spontanée et des réactions (α , n) sur la forme chimique oxyde. Ces résultats sont issus de calculs de modélisation [22].	10
Figure I-4 Spectres en énergie des neutrons émis par fission induite du ^{239}Pu (ligne en pointillés) et par fission spontanée du ^{252}Cf (ligne pleine).	11
Figure I-5 Spectre en énergie de la source neutronique AmBe mesurée dans [29].	12
Figure I-6 Schéma de diffusion élastique des neutrons dans le système de coordonnées de laboratoire.	13
Figure I-7 À gauche : Schéma de principe de fonctionnement des détecteurs à gaz [37]. À droite : les différents modes de fonctionnement des détecteurs à gaz [36] (b).	16
Figure I-8 Principe de l'imagerie neutronique par diffusion élastique [43].	18
Figure I-9 Prototype d'imageur neutronique par diffusion élastique formé de deux plans de scintillateurs liquides [45].	19
Figure I-10 À gauche : image neutronique d'une source ^{252}Cf placée à ($x=-12$, $z=36$ et $\phi-\theta=18^\circ$). À droite : image neutronique d'une source ^{252}Cf placée à ($x=20$, $z=36$ et $\phi-\theta=29^\circ$) [45].	20
Figure I-11 L'instrument NSPECT. Le plan D1 est à gauche [49].	20
Figure I-12 À gauche : image neutronique d'une source ^{252}Cf placé à 2 m dans l'axe. Au milieu : image d'une source ^{252}Cf placée à 2 m dans l'axe et excentrée de 1 m. À droite : image de deux sources ^{252}Cf séparées de 2 m et placée à 2 m dans l'axe [49].	21
Figure I-13 Mesure du spectre en énergie d'une source ^{252}Cf placée à deux positions différentes [49].	21
Figure I-14 À gauche : photographie du système de détection MINER. À droite : photographie de l'intérieur du système de détection MINER [50].	22
Figure I-15 Affichage fourni par le programme LabVIEW à la fin d'une mesure effectuée avec une source ^{252}Cf placée à $\theta = 90^\circ$ et $\phi = 0^\circ$ et une source gamma de ^{60}Co placée à $\theta = 90^\circ$ directement au-dessus de l'imageur [50].	22
Figure I-16 Les spectres en énergie mesurés des quatre sources : plutonium métallique, oxyde de plutonium, ^{252}Cf et AmBe.	23
Figure I-17 À gauche : schéma montrant le principe d'interaction d'un événement neutronique dans le SVSC. Au milieu : image neutronique de la source ^{252}Cf , la croix noire représente la localisation de la source simulée. À droite : spectre en énergie du ^{252}Cf obtenu par les événements reconstruits (rouge) comparé à celui obtenu en utilisant les vrais paramètres de position et de temps des deux premières diffusions élastiques de protons (noir) et le spectre en énergie du neutron incidents (bleu) [52].	24
Figure I-18 À gauche : Schéma montrant le cube de scintillateur plastique entouré sur les 6 côtés par des MCP-PMT et l'électronique de numérisation. À droite : Le vecteur directionnel moyen simulé (noir) est comparé au vecteur directionnel moyen ajusté (vert) [53].	25
Figure I-19 Photographie de la caméra neutron [54].	25
Figure I-20 Quatre images neutroniques d'une source AmBe ($5,9 \times 10^5$ neutrons/s) placée à 1,1 m et à quatre positions angulaires différentes.	26

Figure I-21 Prototype de l'imageur gamma/neutron compact formé par (a) deux matrices de SiPM SensL C-Series (b) huit scintillateurs de stilbène, et (c) 2 planches de circuit imprimés [55].	26
Figure I-22 Spectre en énergie de neutrons émis obtenu à partir d'une mesure de 30 minutes d'une source ^{252}Cf d'émission neutronique $1,2 \times 10^7$ neutrons/s à une distance de 58,4 cm [55].	27
Figure I-23 Image neutron pour une source de ^{252}Cf de $1,2 \times 10^7$ neutrons/s mesurée en 30 minutes (1453 cônes avec 27 itérations de LM-MLEM appliquées à l'image) à 58,4 cm du détecteur.	27
Figure I-24 À gauche : Image gamma de la boule BeRP (12352 cônes avec 41 itérations de LM-MLEM). À droite : Image gamma d'une sphère de neptunium mesurée en 45 minutes (7441 cônes avec 180 itérations de LM-MLEM) à une distance de 55 cm du centre du détecteur.	28
Figure I-25 Image neutronique d'une source de plutonium de qualité militaire (cercle noir) dont l'émission neutronique est $8,4 \times 10^5$ neutrons/s et une source de dioxyde de plutonium (rectangle blanc), mesurée en 15,3 heures. Les sources sont placées à une distance de 57 cm du détecteur et séparées par 50 cm (1283 cônes avec 31 itérations de LM-MLEM).	28
Figure I-26 Une photographie de la caméra neutron tridimensionnelle [56].	29
Figure I-27 Image neutronique d'une source ponctuelle (point rouge) située à $(224^\circ, 75^\circ)$ en utilisant un vecteur d'estimation initial (point noir) qui pointe vers $(208^\circ, 95^\circ)$. La durée de la mesure ainsi que la distance entre la source et le détecteur ne sont pas précisées [56].	29
Figure I-28 Illustration du concept du sténopé [57].	31
Figure I-29 Schéma de la configuration expérimentale de l'imagerie neutronique en utilisant un compteur proportionnel linéaire [58].	31
Figure I-30 Images neutroniques d'un accélérateur linéaire d'électrons irradiant une cible de tungstène en émettant des neutrons à basse énergie [58].	32
Figure I-31 Schéma de la configuration expérimentale de l'imagerie neutronique en utilisant un compteur proportionnel à deux dimensions [58].	32
Figure I-32 Des images neutroniques d'un accélérateur linéaire de deutérium irradiant une cible de titane en émettent des neutrons de 14 MeV.	33
Figure I-33 Géométrie d'un imageur à ouverture pénombrale.	33
Figure I-34 Image codée de la cible (a), image déconvoluée de la cible (b, c) [59].	34
Figure I-35 Illustration de la localisation de sources radioactives par la technique d'imagerie à masque codé [61].	34
Figure I-36 Photographie des masques codés MURA. (a) Rang 7, (b) rang 11, (c) rang 13 [65].	35
Figure I-37 À gauche : Schéma présentant le prototype d'imageur par encodage spatial. Au milieu : image neutronique d'une source ^{252}Cf placée dans un cylindre de polyéthylène. À droite : image neutronique d'une source ^{252}Cf placée entre deux blocs de polyéthylène, séparés par une distance de 40 cm [66].	36
Figure I-38 À gauche : vue latérale d'un scintillateur en plastique pixellisé. Au milieu : le guide de lumière. À droite : schéma montrant comment le guide de lumière segmenté manipule la répartition de la lumière [68].	36
Figure I-39 À gauche : Image neutron-gamma mesurée en 40 min pour une source de plutonium émettant $3,33 \times 10^5$ neutrons/s placée sur la table. À droite : image gamma-neutron mesurée en 90 min pour la même source plutonium placée derrière le mur par terre [67].	37
Figure I-40 À gauche : photographie de la configuration de mesure. À droite : image neutronique mesurée en 1 h pour 96 g de plutonium d'émission neutronique 10^5 neutrons/s (la distance de mesure n'est pas indiquée) [69].	37
Figure I-41 Le système CLYC-Radcam-2 [71].	38
Figure I-42 À gauche : image neutronique d'une source ^{252}Cf ($1,7 \times 10^5$ neutrons/s) placée à 30 cm. À droite : image neutronique d'une source AmBe ($6,8 \times 10^5$ neutrons/s). Les sources ont été placées à environ 30 cm du détecteur et la durée d'acquisition est de deux jours [71].	38

Figure I-43 À gauche : matrice pixellisée de scintillateurs plastiques de type EJ-276. À droite : 13×13 MPPC dont l'aire de chaque pixel est 6×6 mm ²	39
Figure I-44 À gauche : image gamma pour une source ¹³⁷ Cs (370 MBq). À droite : image neutrons pour une source d'AmBe (5,9×10 ⁵ neutrons/s).	40
Figure I-45 À gauche : Le scintillateur en stilbène pixellisé en 12×12, les dimensions de chaque pixel sont (4×4×20 mm ³). À droite : une matrice de SiPM avec la même surface et nombre de pixels [77].	40
Figure I-46 À gauche : une image gamma pour tester la séparation angulaire entre les deux sources ¹³⁷ Cs et ²⁵² Cf séparées par un angle de 6,8°. À droite : une image neutronique, prise en présence de la source ¹³⁷ Cs, pour la source ²⁵² Cf qui émet 3,5 × 10 ⁵ neutrons/s et placée à 75 cm du détecteur. Le temps de mesure pour reconstruire les évènements provenant des neutrons est de 4 min [77].	41
Figure I-47 Prototype expérimental de l'imageur neutronique [78].	41
Figure I-48 À gauche : image gamma d'une source ¹³³ Ba (19 MBq) placée à 50 cm et mesurée en 4 min. À droite : image neutronique d'une source ²⁵² Cf (6,5×10 ⁴ neutrons/s) placée à 50 cm et mesurée en 440 min (~7,3 h) [78].	42
Figure I-49 À gauche : représentation schématique du compteur proportionnel. À droite : résultats de comptage en exposant chaque détecteur à des sources de neutrons mono-énergétiques.	44
Figure I-50 Vue d'ensemble du système ROSPEC [102].	47
Figure I-51 Domaines d'énergie auxquels sont sensibles les différents compteurs du ROSPEC [102].	47
Figure I-52 À gauche : spectres du ²⁵² Cf mesurés avec le compteur SP2-1. À droite : spectres du ²⁵² Cf mesurés avec le compteur SP2-4. Les spectres en magenta sont les spectres déconvolués avec SPEC4, en bleu sont les spectres déconvolués avec MAXED (spectre de départ est un spectre plat), en rouge spectres déconvolués avec MAXED (spectre de départ = SPEC4) et en noir le spectre de référence ISO.	47
Figure I-53 À gauche : spectres du ²⁵² Cf mesurés avec le compteur SP2-10. À droite : spectres du ²⁵² Cf mesurés avec le compteur SP6. Les spectres en magenta sont les spectres déconvolués avec SPEC4, en bleu sont les spectres déconvolués avec MAXED (spectre de départ est un spectre plat), en rouge spectres déconvolués avec MAXED (spectre de départ = SPEC4), en vert spectre déconvolué avec MAXED (spectre de départ est un spectre plat modifié) et en noir le spectre de référence ISO.	48
Figure I-54 À gauche : fonction de réponse basée sur les mesures de Verbinski [104] pour un scintillateur organique liquide de 4,60×4,65 cm, obtenue à l'aide de simulations, d'interpolations et d'extrapolations. À droite : représentation isométrique de la matrice de réponse de neutrons de l'Illinois [103].	49
Figure I-55 De gauche à droite : spectres en énergie des neutrons incidents déconvolués des sources PuBe, d-t et ²⁵² Cf [103]. Les courbes en haut des trois figures, intitulées FWHM correspondent à la largeur à mi-hauteur de la gaussienne utilisée par FORIST pour lisser le spectre déconvolué.	49
Figure I-56 Spectres en hauteur d'impulsion extraits de la fonction de réponse simulée. Chaque spectre de la fonction de réponse correspond à une énergie incidente différente.	50
Figure I-57 Les spectres en énergies calculés par le code FORIST pour des sources de neutrons simulées (neutrons mono-énergétiques de 14 MeV, neutrons d'énergie 14 MeV et 4 MeV, ²⁵² Cf, et AmBe)....	51
Figure I-58 Déconvolution pour une source de ²⁵² Cf à partir de données expérimentales.	51
Figure I-59 Résultats de déconvolution de trois faisceaux de neutrons mono-énergétiques simulés.	52
Figure I-60 À gauche : déconvolution de la source ²⁵² Cf simulée. Au milieu : déconvolution de la source Am-Li simulée. À droite : déconvolution de la source AmBe simulée. Le nombre d'itérations utilisé pour les trois sources de neutrons est 1000.	53
Figure I-61 Déconvolution en utilisant le code GRAVEL de la source neutron AmBe mesurée (à gauche) et de la source neutron mono-énergétique (d-t) mesurée (à droite).	54
Figure I-62 Les quatre courbes de gauche : exemples de spectres déconvolués en utilisant la source AmBe. Les quatre courbes de droite : exemples de spectres déconvolués en utilisant la source ²⁵² Cf.	54

Figure I-63 À gauche : schéma du prototype MIDAS. À droite : schéma présentant l'architecture et les différents composants du détecteur MIDAS.....	55
Figure I-64 Reconstruction du spectre ^{252}Cf mesuré.....	56
Figure I-65 À gauche : Fonction de réponse du détecteur mesuré. À droite : courbe d'étalonnage en énergie estimée par rapport à l'énergie obtenue du détecteur SCD, déduit d'un ajustement du pic du $^{12}\text{C}(n, \alpha)^9\text{Be}[120]$	57
Figure I-66 Schéma (a) et image (b) d'un spectromètre neutronique basé sur une matrice en diamant de 12 pixels.....	57
Figure I-67 Spectre en énergie déposée des neutrons mono-énergétiques de 14 MeV (a). La ligne verticale en pointillés est le seuil d'énergie appliqué pour ne compter que les événements du pic (n, α). Le même spectre pour $7 \text{ MeV} < E_{\text{dep}} < 14 \text{ MeV}$ est présenté en échelle logarithmique avec un ajustement gaussien au pic (n, α) (b) [121].....	58
Figure I-68 Montage expérimental de la caméra neutrons à base de diamant (à gauche), spectre de neutrons reconstruit comparé au spectre de référence de la source PuBe (à droite).	58
Figure II-1 Photographie du scintillateur plastique utilisé.	78
Figure II-2 Le spectre en énergie des protons de recul produit par des neutrons mono-énergétiques dans un milieu hydrogéné [14].....	79
Figure II-3 À gauche : La fonction de réponse calculée pour un scintillateur organique cylindrique de type stilbène à des neutrons d'énergie 2,6 MeV. Les différentes composants de cette réponse sont : (a) la diffusion élastique simple sur l'hydrogène, (b) la diffusion élastique double sur l'hydrogène, (c) la somme de (a) et (b), (d) les protons de recul induits par des neutrons diffusés par le carbone, (e) la somme de (c) et (d). À droite : le spectre en énergie mesuré pour le même scintillateur et en utilisant la même énergie de neutrons incidents (2,6 MeV) [15].	80
Figure II-4 En haut : spectre en énergies déposées par les particules secondaires suite à une interaction au sein du scintillateur NE-213 (forme cylindrique 6 cm×6 cm) avec des neutrons d'énergie 14,3 MeV [16]. En bas : sections efficaces de différents processus d'interaction des neutrons avec le carbone et l'hydrogène en fonction de l'énergie de neutrons [17].	80
Figure II-5 Comparaison entre les réponses théoriques (les tirets) et expérimentales (les traits pleins) de scintillation d'un cristal d'anthracène aux électrons, protons et particules alpha [14].	82
Figure II-6 À gauche : spectre en énergie de protons de recul de la source de neutrons ^{252}Cf exprimé en MeVep. À droite : spectre en énergie de protons de recul de la source de neutrons ^{252}Cf exprimé en MeVee en utilisant l'option PHL.....	85
Figure II-7 Spectres en énergie de protons de recul exprimés en MeVee extraits de la fonction de réponse simulée par le code Monte Carlo MCNP6.2 pour le scintillateur plastique triple discriminant de 2 cm ³ . L'axe des ordonnées est présenté sur une échelle logarithmique.	86
Figure II-8 Une comparaison entre le spectre de protons de recul simulé et le spectre calculé par MAXED à la première itération (figure en haut, courbe rouge) et après 1750 itérations (figure en bas, courbe rouge).	88
Figure II-9 Comparaison entre le spectre en énergie ^{252}Cf reconstruit par MAXED et le spectre utilisé dans la simulation (spectre ISO).	88
Figure II-10 Comparaison entre le spectre de protons de recul simulé et le spectre calculé par GRAVEL après une seule itération (figure en haut, courbe rouge) et après 25 itérations (figure en bas, courbe rouge).	89
Figure II-11 Comparaison entre le spectre en énergie ^{252}Cf reconstruit par GRAVEL et le spectre utilisé dans la simulation Monte Carlo (spectre ISO).	90
Figure II-12 Comparaison entre le spectre en énergie ^{252}Cf reconstruit par MLEM et le spectre utilisé dans la simulation Monte Carlo (spectre ISO).	90

Figure II-13 Comparaison entre le spectre de Watt utilisé comme spectre d'entrée (ligne pointillée) et le spectre de fission ^{252}Cf ISO, utilisé comme spectre d'entrée dans les simulations Monte Carlo (ligne continue).	91
Figure II-14 Déconvolution des spectres simulés de ^{252}Cf en utilisant MAXED (gauche), GRAVEL (milieu), et MLEM (droite). Le spectre d'entrée est un spectre de Watt.	92
Figure II-15 Déconvolution de spectres simulés d'AmBe en utilisant MAXED (à gauche), GRAVEL (au milieu) et MLEM (à droite). Le spectre d'entrée est un spectre plat.	93
Figure II-16 Déconvolution de spectres simulés d'AmBe en utilisant MAXED (à gauche), GRAVEL (au milieu) et MLEM (à droite). Le spectre d'entrée est un spectre de Watt.	93
Figure III-1 Photographie de la chaîne d'acquisition.	98
Figure III-2 À gauche photographie du scintillateur cylindrique double discriminant. À droite photographie du scintillateur cubique triple discriminant.	99
Figure III-3 Schéma de l'électronique de mesure. Le SiPM est symbolisé par la photodiode.	100
Figure III-4 Montage expérimental de mesure pour la matrice de SiPM	100
Figure III-5 Carte électronique conçue pour une matrice SiPM (2x2).....	100
Figure III-6 Régulateur haute tension DT5485 commercialisé par CAEN [8]	101
Figure III-7 Interactions entre rayonnement gamma et matière en fonction du numéro atomique Z et de l'énergie des photons [11].	102
Figure III-8 Spectre gamma mesuré pour le scintillateur liquide BC501A exposé à une source de ^{137}Cs [12].	102
Figure III-9 À gauche : spectre de hauteur en impulsion mesuré en utilisant la source ^{22}Na . À droite : spectre de hauteur en impulsion mesuré en utilisant la source ^{137}Cs	104
Figure III-10 Spectre de hauteur en impulsion mesuré en utilisant la source ^{241}Am	104
Figure III-11 De gauche à droite : spectres gamma mesurés en utilisant les sources ^{133}Ba , ^{60}Co et ^{152}Eu	105
Figure III-12 De gauche à droite : spectre de dépôt d'énergie des sources ^{22}Na , ^{137}Cs , et ^{241}Am , sans prendre en compte la fonction GEB.	105
Figure III-13 De gauche à droite : spectre de dépôt d'énergie des sources ^{60}Co , ^{133}Ba , et ^{152}Eu , sans prendre en compte la fonction GEB.	106
Figure III-14 Méthode itérative Monte Carlo visant à déterminer les paramètres optimaux de la GEB.	107
Figure III-15 De gauche à droite : spectres en énergie simulés pour le scintillateur plastique exposé aux sources ^{22}Na , ^{137}Cs et ^{241}Am	108
Figure III-16 De gauche à droite : spectres en énergie simulés pour le scintillateur plastique exposé aux sources ^{60}Co , ^{133}Ba , et ^{152}Eu	108
Figure III-17 Courbe d'étalonnage en équivalent électron issue de la comparaison entre les Q_{tot} mesurés et les spectres en énergie simulés.	109
Figure III-18 De gauche à droite : spectres en énergie mesurés pour le scintillateur plastique exposé aux sources ^{22}Na , ^{137}Cs , et ^{241}Am	109
Figure III-19 De gauche à droite : spectres en énergie mesurés pour le scintillateur plastique exposé aux sources ^{60}Co , ^{133}Ba , et ^{152}Eu	110
Figure III-20 Distribution de la largeur à mi-hauteur obtenue par le scintillateur en fonction de l'énergie des rayonnements gamma	110
Figure III-21 Courbe d'étalonnage finale en équivalent électron issue de la comparaison entre les Q_{tot} mesurés et les spectres en énergie simulés	111
Figure III-22 Comparaison entre les spectres en énergie du ^{22}Na mesuré et simulé	111
Figure III-23 Comparaison entre les spectres en énergie du ^{137}Cs mesuré et simulé	112
Figure III-24 Comparaison entre les spectres en énergie de ^{241}Am mesuré et simulé	112

Figure III-25 Vue d'ensemble du hall d'irradiation. © IRSN	114
Figure III-26 Histogrammes bidimensionnels présentant la distribution du nombre d'évènements en fonction de l'énergie et du facteur de discrimination (Q_{tail}/Q_{tot}) pour la gamme d'énergie des neutrons incidents comprise entre 191 et 480 keV. Ces données sont obtenues avec le scintillateur double discriminant.....	115
Figure III-27 Histogrammes bidimensionnels présentant la distribution du nombre d'évènements en fonction de l'énergie et du facteur de discrimination (Q_{tail}/Q_{tot}) pour la gamme en énergie des neutrons incidents comprise entre 953 et 14800 keV. Ces données sont obtenues avec le scintillateur double discriminant.....	116
Figure III-28 Histogrammes bidimensionnels présentant la distribution du nombre d'évènements en fonction de l'énergie et du facteur de discrimination (Q_{tail}/Q_{tot}) pour la gamme d'énergie des neutrons incidents comprise entre 191 et 953 keV. Ces données sont obtenues avec le scintillateur triple discriminant.....	117
Figure III-29 Histogrammes bidimensionnels présentant la distribution du nombre d'évènements en fonction de l'énergie et du facteur de discrimination (Q_{tail}/Q_{tot}) pour la gamme d'énergie des neutrons incidents comprise entre 1063 et 14800 keV. Ces données sont obtenues avec le scintillateur triple discriminant.....	118
Figure III-30 Matrice de réponse mesurée à l'installation Amande avec le générateur de neutrons mono-énergétiques pour un scintillateur plastique de 2 cm ³ double discriminant (à gauche) et pour un scintillateur de 2 cm ³ triple discriminant (à droite).	118
Figure III-31 Fonction de réponse mesurée du scintillateur plastique triple discriminant.	120
Figure III-32 Rendement lumineux en fonction de l'énergie déposée par les protons de recul dans le scintillateur triple discriminant de 2 cm ³ en utilisant les données extraites de l'étalonnage réalisé avec le générateur de champs neutroniques (ligne bleue), comparé aux résultats rapportés dans [20] pour un scintillateur cylindrique EJ276 de diamètre 2,54 cm et de hauteur 2,54 cm (ligne noire).	121
Figure III-33 Photographie du cyclotron TR24 de la plateforme Cyréc.	122
Figure III-34 Photographie montrant le montage expérimental avec la boîte à gauche où l'ensemble du prototype est placé, ainsi qu'un abri pour la lumière visible. À droite, une photographie rapprochée du scintillateur qui est positionné en face d'un collimateur de 3 mm à travers duquel les protons mono-énergétiques sont émis.	122
Figure III-35 Fonction de réponse du scintillateur triple discriminant mesurée en utilisant le faisceau de protons mono-énergétiques de l'installation Cyréc.....	123
Figure III-36 Energie déposée en fonction de l'énergie des protons incidents dans les différents matériaux (aluminium, téflon, et air) qui entourent le scintillateur.	124
Figure III-37 Energie déposée dans l'air, le téflon et l'aluminium par les protons après avoir traversé 10 mm d'air, 0,1 mm de téflon et 0,07 mm d'aluminium.	125
Figure III-38 Rendement lumineux en fonction de l'énergie déposée par les protons de recul dans le scintillateur triple discriminant de 2 cm ³ en utilisant les données extraites de l'étalonnage réalisé avec la source de neutrons mono-énergétiques (ligne bleue), comparé aux données extraites de l'étalonnage réalisé avec le faisceau de protons (points verts), et aux résultats rapportés dans [20] pour un scintillateur cylindrique EJ276 de 2,54 cm x 2,54 cm (ligne noire).	126
Figure III-39 Spectres de hauteur en impulsion mesurés à l'aide de sources neutroniques ²⁵² Cf (à gauche) et AmBe (à droite). Un million d'évènements ont été enregistrés lors de chaque acquisition et les valeurs en neutrons au-dessus des figures correspondent au nombre de neutrons enregistrés après la discrimination n/γ	127
Figure III-40 Comparaison entre le spectre de protons de recul simulé (en bleu), le spectre de protons de recul mesuré et sur lequel est appliqué la méthode de discrimination WaveShape (en noir), et le	

spectre de protons de recul mesuré et sur lequel est appliqué la méthode de discrimination PSD (en rouge).	128
Figure III-41 Un histogramme bi-paramétrique des rapports de charge obtenu pour le scintillateur plastique triple discriminant en utilisant la source ^{252}Cf . Les barres rouges correspondent aux bornes de la gamme d'énergie [700 keV ; 2 MeV].	128
Figure III-42 Histogramme du facteur de discrimination obtenu à partir du scintillateur plastique triple discriminant en utilisant la source ^{252}Cf	129
Figure III-43 Spectre en énergie reconstruit de la source ^{252}Cf comparé au spectre de référence. ...	131
Figure III-44 Spectre en énergie reconstruit de la source AmBe comparé au spectre de référence. .	131
Figure III-45 Spectre en énergie reconstruit de la source de neutrons mono-énergétiques émettant des neutrons d'énergie 4404 keV, comparé au spectre de référence.	132
Figure III-46 Spectre en énergie de neutrons incidents du ^{252}Cf comparé au spectre de référence, obtenu avec le prototype MIDAS [23] (à gauche). Spectre en énergie de neutrons incidents du ^{252}Cf comparé au spectre de référence, obtenu avec notre configuration de mesure (à droite).	132
Figure IV-1 Photographie du prototype spectro-imageur neutronique (à gauche) et l'ensemble de l'électronique associé (à droite).	137
Figure IV-2 À gauche : Photographie de la matrice de scintillateur plastique pixellisé en 12×12 pixels. À droite : Photographie de la matrice de SiPM pixellisé en 12×12 pixels.	138
Figure IV-3 Photographie montrant la partie en polyéthylène (à gauche) et la partie en plomb (à droite) du masque codé.	138
Figure IV-4 Images d'une source de ^{252}Cf : en utilisant les événements gamma et neutroniques (a) et en utilisant uniquement les événements neutroniques (b). L'échelle de couleurs correspond au nombre d'évènements reconstruits après déconvolution.	139
Figure IV-5 Images d'une source de ^{133}Ba placée à gauche (a) et à droite (b) du centre du champ de vue. L'échelle de couleurs correspond au nombre d'évènements reconstruits après décodage.	140
Figure IV-6 Configuration expérimentale de l'imageur neutronique sur l'installation AMANDE. L'imageur est placé à 6 m du faisceau et à la même hauteur que ce dernier.	141
Figure IV-7 Images de la radioactivité du faisceau en utilisant les événements gamma et neutrons (a) et en utilisant uniquement les événements neutroniques (b). L'échelle de couleurs correspond au nombre d'évènements reconstruits après déconvolution.	141
Figure IV-8 Vue frontale de la matrice de 12×12 pixels de scintillateurs.	142
Figure IV-9 À gauche : vue latérale (plan xz) du masque codé (en vert) et du scintillateur (en jaune). À droite : vue frontale (plan xy) du masque codé, les pleins sont en vert et les trous sont en bleu.	142
Figure IV-10 Images décodées simulées d'une source de neutrons ^{252}Cf placée à 100 cm. (a) avec $\text{NPS} = 4 \times 10^8$ et (b) avec $\text{NPS} = 2 \times 10^9$. L'échelle de couleurs correspond au nombre d'évènements reconstruits après déconvolution.	143
Figure IV-11 De gauche à droite : images décodées simulées de deux sources neutroniques ^{252}Cf placées à 100 cm et séparées par 12 cm, 20 cm, et 30 cm.	144
Figure IV-12 De gauche à droite : images décodées simulées de deux sources neutroniques ^{252}Cf placées à 100 cm et séparées de 40 cm, 50 cm, et 60 cm.	144
Figure IV-13 Comparaison entre les deux spectres en énergie de protons de recul (exprimée en MeV) avec une source neutronique d'énergie 5 MeV, obtenus avec un seul pixel (ligne noir) et avec l'ensemble du volume du scintillateur (ligne bleue).	145
Figure IV-14 Comparaison entre les deux spectres en énergie de protons de recul (exprimé en MeV) pour une source neutronique d'énergie 5 MeV, obtenue avec (ligne noir) et sans (ligne bleu) la présence du masque codé.	146

Figure IV-15 Spectres en énergie de protons de recul exprimés en MeVee extraits de la fonction de réponse simulée par le code Monte Carlo MCNP6.2 pour le scintillateur plastique pixellisé. L'axe des ordonnées est présenté sur une échelle logarithmique. 147

Figure IV-16 Comparaison entre le spectre en énergie de la source de ^{252}Cf reconstruit par MLEM et le spectre utilisé dans la simulation (spectre ISO). 148

Figure IV-17 Comparaison entre le spectre en énergie de la source d'AmBe reconstruit par MLEM et le spectre utilisé dans la simulation (spectre ISO). 149

Figure IV-18 Illustration montrant le spectre en énergie mesuré de la source ^{137}Cs dans chaque pixel du scintillateur. 150

Figure IV-19 Photographie de la campagne de mesures réalisée au LNHB en irradiant le scintillateur pixellisé par un faisceau de rayons X mono-énergétiques. 151

Figure IV-20 Les quatre spectres en énergie de rayons X émis par le faisceau L70, L125, L170 et L240. 151

Figure IV-21 Illustration de la répartition des événements dans les pixels du scintillateur exposé au faisceau collimaté de rayons X. 152

Figure IV-22 Spectres en énergie obtenus pour le pixel irradié pour les différentes énergies de rayons X. 152

Figure IV-23 À gauche : Modèle 3D du moule en PTFE. Au milieu : photographie du scintillateur pixellisé en 2×2 pixels. À droite : photographie de la matrice SiPM formée de 2×2 pixels. 153

Figure IV-24 Les courbes d'étalonnage de chaque pixel du scintillateur pixellisé en 2×2 pixels, en utilisant les sources gamma ^{22}Na et ^{137}Cs 153

Figure IV-25 Photographie de la campagne de mesures réalisée à Cyrcé, où un scintillateur plastique pixellisé en 2×2 pixels a été exposé à un faisceau de protons mono-énergétiques passant à travers un collimateur de 3 mm. 154

Figure IV-26 Fonction de réponse de chacun des quatre pixels du scintillateur pixellisé en 2×2 pixels. 155

Liste des tableaux

Tableau I-1 Débit d'émission neutronique des principaux isotopes sous différentes formes chimiques [22].	10
Tableau I-2 Récapitulatif des imageurs neutroniques par diffusion élastique développés en 2005 et de 2012 jusqu'au 2020. Les imageurs neutroniques modélisés par simulation MC ne sont pas inclus. ...	30
Tableau I-3 Récapitulatif des performances des imageurs neutroniques par encodage spatial couvrant la période de 1995 à 2013, ainsi que les développements notables en 2021 et 2022.	43
Tableau I-4 La performance de déconvolution (valeur de SAM moyenne) en fonction du nombre des évènements. Les valeurs entre parenthèses représentent les écarts types associés aux valeurs de SAM.	55
Tableau II-1 Composition chimique du scintillateur plastique triple discriminant développé par le CEA List.	78
Tableau II-2 Synthèse des critères de performance de MAXED, GRAVEL et MLEM pour reconstruire le spectre de la source ^{252}Cf .	92
Tableau II-3 Synthèse des critères de performance de MAXED, GRAVEL et MLEM pour reconstruire le spectre de la source AmBe.	93
Tableau III-1 Composition chimique des scintillateurs plastiques double et triple discriminant développés par le CEA List.	99
Tableau III-2 Energies principales des rayonnements gamma émis par les radionucléides ^{22}Na , ^{137}Cs , ^{241}Am , ^{60}Co , ^{133}Ba , et ^{152}Eu classées par intensité d'émission décroissante [13].	103
Tableau III-3 Les réactions nucléaires permettant de créer des champs neutroniques mono-énergétiques sur l'installation Amande avec le domaine en énergie associé pour ces champs dans l'axe du faisceau d'ions. © IRSN	114
Tableau III-4 Energies des neutrons incidents émis dans l'axe du faisceau (en rouge) et énergies des neutrons incidents sur le détecteur positionné aux différents angles (en noir).	115
Tableau III-5 Energie des protons incidents sur le scintillateur en fonction de l'énergie des protons principalement émis par le faisceau, après avoir interagi avec les trois matériaux suivants : l'air, le téflon et l'aluminium.	125
Tableau IV-1 Comparaison entre les valeurs de EQM obtenues avec les sources ^{252}Cf et AmBe par les deux types de scintillateur pixellisé et monobloc.	148