



PH. CASSETTE

Étalonnage du débit d'émission de sources neutroniques par le bain de manganèse, utilisant une nouvelle méthode de mesure en ligne d'activité de ^{56}Mn par coïncidences Tcherenkov-gamma

Calibration of neutron sources emission rate with the manganese bath, using a new method for the on-line activity measurement of ^{56}Mn by Cerenkov-gamma coincidences

Philippe CASSETTE, Florestan OGHEARD et Cheick THIAM

CEA, LIST, Laboratoire national Henri Becquerel (LNE-LNHB), 91191 Gif-sur-Yvette Cedex, France, philippe.cassette@cea.fr

Résumé

La méthode de mesure de référence du débit d'émission de sources neutroniques se fonde sur la technique du bain de manganèse. Elle est destinée à étalonner des sources de neutrons utilisant des radionucléides, en termes de débit d'émission neutronique sous 4π sr. La source à mesurer est immergée dans une solution de sulfate de manganèse et les neutrons émis sont capturés par les constituants du bain. Dans une configuration classique, environ la moitié de ces neutrons conduisent à la création de ^{56}Mn par réaction (n, γ) sur du ^{55}Mn . Le radionucléide ^{56}Mn a une période radioactive d'environ 2,6 h et le bain de manganèse atteint son activité de saturation en ^{56}Mn quand le nombre d'atomes radioactifs créés par unité de temps devient égal au nombre d'atomes se désintégrant pendant ce même temps. Le débit d'émission de la source peut alors être déduit de l'activité de ^{56}Mn de la solution à saturation, via une modélisation ad hoc des réactions nucléaires se produisant dans le bain. Cette installation a été récemment rénovée afin de respecter les règles de sécurité et de radioprotection en vigueur. Cette rénovation a été l'occasion de moderniser et de remettre à niveau les méthodes de mesure et de modélisation du bain et d'entreprendre une étude sur le développement d'un détecteur original pour la mesure directe en ligne de l'activité du manganèse. Ce détecteur est fondé sur la méthode de mesure des coïncidences $4\pi\beta\text{-}\gamma$. La voie « bêta » est constituée de photomultiplicateurs permettant de détecter l'émission de lumière due à l'effet Tcherenkov et la voie « gamma » utilise un détecteur à scintillateur.

L'intérêt de cette méthode de mesure est qu'elle permet d'avoir accès à l'activité du bain sans nécessiter d'étalonnage préalable. Les mesures obtenues avec ce nouveau détecteur ont été comparées à celles données par une méthode primaire présente au laboratoire. Par ailleurs, des modélisations du bain de manganèse ont été effectuées avec trois codes de calcul stochastiques : GEANT4, MCNPX et FLUKA. Cette comparaison a permis d'identifier des disparités entre les résultats de simulation, ainsi que des facteurs d'incertitude liés à la modélisation de l'émission neutronique et au choix des sections efficaces.

MOTS CLÉS : SOURCES NEUTRONIQUES, DÉBIT D'ÉMISSION, BAIN DE MANGANÈSE, ^{56}Mn , GEANT4, FLUKA, MCNPX, COÏNCIDENCES TCHERENKOV-GAMMA.

Abstract

The manganese bath technique is the reference method for the calibration of neutron source emission rates. It is used to calibrate neutron sources using radionuclides in terms of neutron emission rate under 4π sr. The neutron source to be measured is immersed in a manganese sulphate solution where the emitted neutrons interact with the elements of the bath. In a typical configuration, approximately half of the neutrons lead to the creation of ^{56}Mn via the $^{55}\text{Mn}(n, \gamma)$ capture reaction. This radionuclide has a half-life of approximately 2.6 h and the

bath reaches saturation when the number of nuclei decaying is equal to the number of nuclei created per unit time. The neutron emission rate from the source can then be deduced from the ^{56}Mn activity at saturation, assuming proper modelling of the nuclear reactions occurring within the bath. The manganese bath facility has been recently refurbished in order to comply with appropriate safety and radioprotection regulations. This has led to the upgrading of both the measurement methodology and the modelling of the bath, and a study on the development of a new detector for the on-line measurement of the manganese activity was developed. This new detector uses the $4\pi\beta\text{-}\gamma$ coincidence measurement method. The beta channel consists of photomultiplier tubes for the detection of Cerenkov light, and the γ channel uses a scintillation detector. The advantage of this measurement method is that it allows the determination of the bath activity without any prior calibration. A detector has been built and the results obtained have been compared to those from a primary measurement method already in use at LNE-LNHB. Furthermore, a comparison of the Monte-Carlo simulation results using GEANT4, MCNPX and FLUKA has been undertaken. This comparison revealed some discrepancies between the codes and uncertainty factors, such as the modeling of the neutron emission and the choice of the cross-section library.

KEY WORDS: NEUTRON SOURCES EMISSION RATE, MANGANESE BATH, ^{56}Mn , GEANT4, FLUKA, MCNPX, CERENKOV-GAMMA COINCIDENCES.

1. Introduction

Les sources de neutrons sont utilisées dans une grande variété d'applications dont la prospection géologique (incluant la prospection gazière et pétrolière), la détection des explosifs ou des narcotiques, le contrôle non-destructif par neutronographie et les analyses de traces par activation neutronique. Ces sources neutroniques sont également utilisées pour le démarrage des réacteurs nucléaires, en particulier les réacteurs compacts utilisés dans les chaudières de propulsion navale. Enfin, l'étalonnage des appareils de contrôle dosimétrique nécessite l'utilisation de sources de neutrons bien caractérisées.

En général, la métrologie des rayonnements ionisants s'effectue à partir de détecteurs permettant de transformer ce rayonnement en signal physique quantifiable. Le principe de fonctionnement de ces détecteurs est fondé sur l'ionisation ou l'excitation de la matière, ou sur les effets thermiques des rayonnements. Les neutrons ne sont pas des particules directement ionisantes et leur métrologie passe par l'utilisation de réactions nucléaires. Les contraintes principales de la métrologie des neutrons découlent d'une part de la très grande gamme d'énergie couverte (de 1 meV à quelque 10 MeV) et d'autre part à la grande variété des réactions possibles entre les neutrons et la matière : diffusion, capture radiative, fission et spallation. Ces spécificités font que la métrologie des neutrons est un exercice particulièrement difficile. Nous expliquons dans cet article comment cette métrologie est abordée au LNE-LNHB, les méthodes mises en œuvre et leurs performances, ainsi que les problèmes restant à résoudre.

2. Sources neutroniques et mesurandes

Les sources de neutrons considérées utilisent des radionucléides et se divisent en deux catégories principales : les sources utilisant une réaction (α, n) (réaction

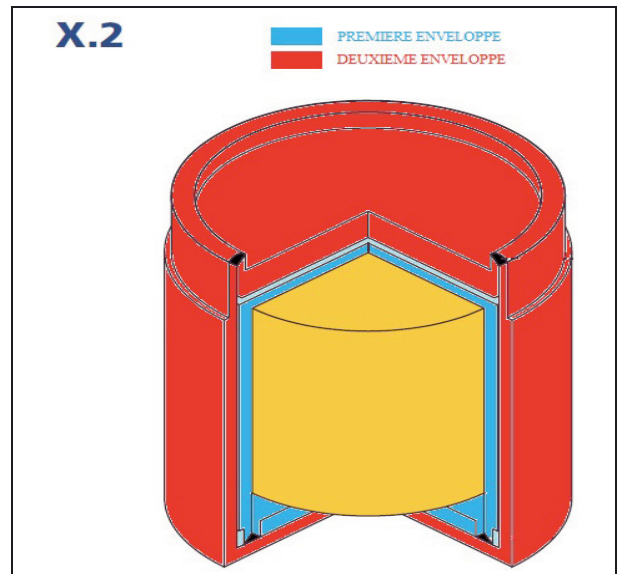


Fig. 1. – Vue en coupe d'une source AmBe.

nucléaire entre un noyau d'hélium, particule α , et un atome de béryllium conduisant à l'émission d'un neutron) et les sources de fission spontanée.

2.1. Sources (α, n)

Les sources (α, n) sont constituées d'un mélange intime d'un radionucléide se désintégrant par transition α et d'une cible constituée d'un élément de numéro atomique faible, tel que le béryllium, le lithium ou le carbone. Dans le cas du béryllium, les neutrons (n) sont produits par la réaction nucléaire (1) :



Les radionucléides principalement utilisés sont des actinides, tels que les divers isotopes du plutonium, du polonium, du curium et du radium. Ils sont utilisés sous forme d'oxydes ou sous forme métallique. Le choix du radionucléide se fait sur des critères de période, de disponibilité et de coût. Les radionucléides de courte période, comme le ^{210}Po présentent l'avantage de nécessiter peu de matière (plus la période est courte et moins il faut de matière pour une activité α donnée), mais aussi l'inconvénient d'avoir une durée de vie plus faible. Actuellement, le radionucléide le plus utilisé est ^{241}Am , qui a une période d'environ 450 ans, 1 g de ^{241}Am ayant une activité de $1,3 \times 10^{11}$ Bq. Le béryllium reste la principale cible utilisée, malgré sa métallurgie compliquée et sa toxicité. Les sources AmBe peuvent être sous la forme d'une céramique ou d'une poudre constituée d'un mélange d'oxyde d'américium et de béryllium métallique. L'ensemble est généralement confiné dans une double enveloppe en acier inoxydable, tel que cela apparaît en figure 1.

Le rendement de la réaction de production de neutrons est assez faible, la probabilité de création d'un neutron par particule α étant légèrement inférieure à 10^{-4} , et variant selon la technologie de la source. Cela implique

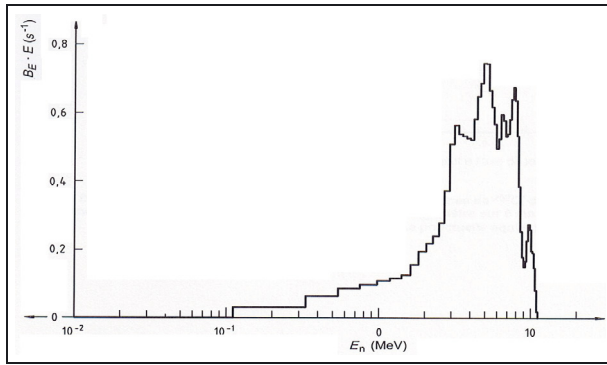


Fig. 2. – Distribution en énergie des neutrons émis par une source AmBe de petit volume.

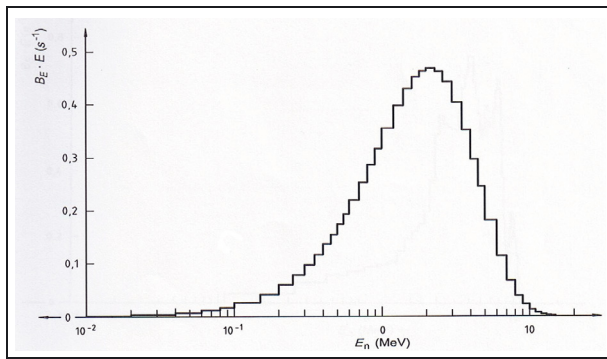


Fig. 3. – Distribution en énergie de l'émission d'une source de ^{252}Cf de petit volume.

qu'une source AmBe contenant 1 g de ^{241}Am produira environ 10^7 neutrons par seconde. La distribution en énergie typique des neutrons émis, tel que décrit dans la norme ISO 8529-1 [1] apparaît sur la figure 2.

2.2. Sources de fission spontanée

La plupart des radionucléides transuraniens de nombres de masse pairs peuvent se désintégrer par fission spontanée, en compétition avec d'autres modes de désintégration, chaque fission produisant plusieurs neutrons. La source la plus courante utilise le ^{252}Cf , radioisotope d'une période d'environ 2,7 ans. Le rendement d'émission de neutrons est d'environ 0,116 neutron par becquerel de ^{252}Cf , ce qui conduit à un débit d'émission neutronique massique d'environ $2,3 \times 10^6$ neutrons par seconde et par microgramme de ^{252}Cf . La distribution d'énergie typique d'émission, apparaissant sur la figure 3 [1], a une énergie moyenne un peu plus faible que celle des sources AmBe.

On trouve également des sources mixtes (fission- (α, n)), telles que les sources ^{244}Cm -Be, pour lesquelles l'émission neutronique (α, n) dominante est légèrement augmentée par l'émission neutronique due aux fissions spontanées du curium.

2.3. Autres sources

L'émission de neutrons est également possible avec des réactions nucléaires (γ, n) . L'excitation est faite par

un radionucléide émetteur de photons γ et les cibles sont soit du béryllium, soit du deutérium. Des sources de référence de ce type sont utilisées dans certains laboratoires nationaux de métrologie. Leur principal inconvénient est de nécessiter une très forte activité et de présenter une émission γ intense. Leur avantage principal est que, pour une énergie γ donnée, les neutrons produits sont monocinétiques.

2.4. Mesurande

Divers mesurandes peuvent être associés aux sources neutroniques, liés par exemple aux débits de fluence ou aux caractéristiques spectrales. Le périmètre attribué au LNHB dans le cadre de la métrologie française, se limite à la mesure du débit d'émission de ces sources et à la mesure de l'anisotropie relative d'émission. Les autres grandeurs métrologiques liées aux neutrons, notamment pour les applications dosimétriques, sont en charge de l'IRSN/SDOS, laboratoire associé au LNE dans le cadre du Réseau national de la métrologie française (RNMF).

Le débit d'émission, B , est défini comme le nombre de neutrons émis sous un angle solide de 4π sr par seconde. À une distance suffisante de la source, r , pour que celle-ci puisse être considérée comme ponctuelle, le débit de fluence moyen dans le vide, $\bar{\Phi}(r)$, peut être relié au débit d'émission neutronique par la relation (2) :

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

L'émission des neutrons n'étant en général pas isotrope, le facteur d'anisotropie dans une direction donnée faisant un angle θ par rapport à un axe de symétrie de la source, $F(\theta)$, est défini par la relation (3) :

$$F(\theta) = \frac{\Phi(\theta, r)}{\bar{\Phi}(r)} = \frac{\Phi(\theta, r) \cdot 4\pi r^2}{B}. \quad (3)$$

Où $\Phi(\theta, r)$ est le débit de fluence expérimental à un angle θ et à une distance r .

3. La méthode du bain de manganèse

Historiquement, plusieurs méthodes de mesure furent utilisées pour caractériser le débit d'émission des sources neutroniques, notamment l'activation de cibles métalliques solides, la calorimétrie ou le comptage de fragments de fission. Actuellement la méthode de référence est celle dite du bain de manganèse, qui est utilisée au LNHB (sous ses divers avatars historiques) depuis le début des années 1960.

La méthode du bain de manganèse fut inventée en 1942 par O'Neal et Scharf-Goldhaber [2]. Son principe consiste à immerger la source neutronique à mesurer au centre d'une sphère contenant un bain constitué d'une solution de sulfate de manganèse. Les neutrons émis par la source interagissent avec le bain et conduisent notamment à la création d'un isotope radioactif du manganèse,

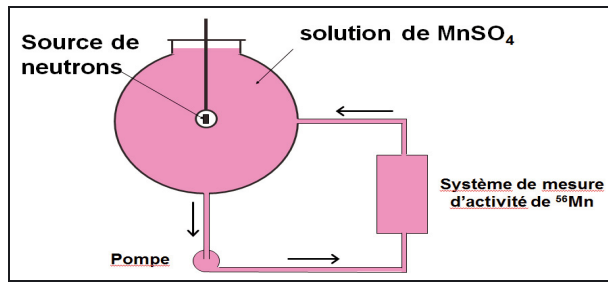


Fig. 4. – Principe de la mesure du débit d'émission de sources neutroniques par la méthode du bain de manganèse.

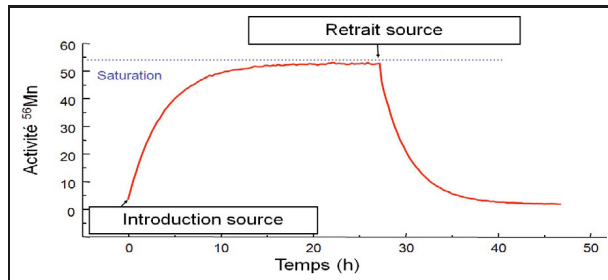


Fig. 5. – Cinétique d'évolution de l'activité du bain (unités arbitraires).

le ^{56}Mn , par capture radiative des neutrons sur le manganèse stable constituant le bain. Le ^{56}Mn se désintègre avec une période radioactive de 2,5 h en émettant des électrons et du rayonnement X et γ . Le principe de l'installation apparaît sur la figure 4.

Lors de l'introduction de la source dans le bain, l'activité en ^{56}Mn commence à croître jusqu'à un palier de saturation. Ce palier est atteint en environ 25 h, soit environ dix périodes de ^{56}Mn . Si la source est maintenue dans le bain, l'activité en ^{56}Mn reste stable, ce qui correspond à la situation où le nombre d'atome de ^{56}Mn créés par unité de temps est égal au nombre d'atomes se désintégrant par transition β pendant le même temps. Si la source est ensuite enlevée, l'activité du bain décroît exponentiellement. La cinétique d'évolution de l'activité du bain est représentée sur la figure 5.

A saturation, le débit d'émission neutronique de la source, Φ , peut être relié à l'activité totale en ^{56}Mn du bain, A , selon l'équation (4) :

$$\Phi = \frac{A}{R}, \quad (4)$$

où R est le rendement du bain, qui correspond à la probabilité de création d'un atome de ^{56}Mn par neutron sortant de la source. On voit donc que le débit d'émission va dépendre de deux termes, un terme mesuré qui est l'activité du bain et un terme calculé, qui est le rendement. Le poids de chacun de ces termes est équivalent dans l'équation (4) et leur contribution à l'incertitude globale de mesure sera donc équivalente.

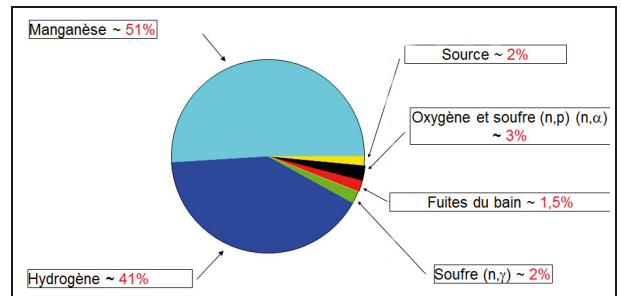


Fig. 6. – Exemple de l'importance relative des interactions des neutrons avec le bain pour une source AmBe.

4. Calcul du rendement du bain

Le rendement du bain, donc la probabilité de création d'un atome de ^{56}Mn par un neutron incident, va dépendre, d'une part, de la probabilité globale d'interaction des neutrons avec le bain et, d'autre part, de la fraction des réactions nucléaires avec le bain et conduisant à la capture radiative sur le manganèse de la solution, par rapport au total des réactions possibles. La figure 6 donne une estimation de la répartition des modes d'interaction des neutrons avec le bain dans le cas d'une source AmBe et dans nos conditions nominales de mesure.

4.1. Codes de calcul

On peut constater que les interactions se font principalement avec le manganèse et l'hydrogène, les probabilités d'interaction avec les autres éléments étant notablement plus faibles. Tout cela a conduit dans le passé à calculer le rendement du bain en utilisant des rapports de sections efficaces de capture du manganèse et de l'hydrogène à une énergie donnée, compte tenu d'un modèle simple d'évolution de ces sections efficaces en fonction de l'énergie, et en apportant des petites corrections dues à des résonances pour le manganèse et en considérant la contribution du soufre et de l'oxygène. Les fuites de neutrons hors du bain étaient évaluées grâce à des codes de transport de neutrons, comme le code APOLLO du CEA [3,4]. Nous ne détaillons pas ici cette approche qui est décrite dans plusieurs documents [5–9]. Elle garde cependant un intérêt historique et permet également de vérifier les ordres de grandeurs, mais de nos jours, l'emploi des méthodes de Monte-Carlo permet de calculer directement le rendement du bain en utilisant des modèles de calcul plus sophistiqués, notamment pour ce qui concerne les sections efficaces d'interaction des neutrons avec le bain, et en représentant finement les divers composants du système, y compris l'environnement de la sphère de mesure.

Plusieurs codes de calcul sont disponibles et, afin de choisir le plus pertinent, l'installation du LNHB a été modélisée à l'aide de trois codes de calcul Monte-Carlo : MCNPX, FLUKA, et GEANT4.

MCNPX est une extension du code Monte-Carlo MCNP pour la simulation des interactions particule-matière [10]. C'est le principal code utilisé pour

modéliser le bain de manganèse dans la communauté métrologique internationale. Tous les paramètres nécessaires au calcul sont inclus dans un unique fichier d'entrée décrivant :

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

Une modélisation GEANT4 a également été développée. Ce code a pour avantages l'accessibilité de la physique implémentée, et la modification facilitée de tous les algorithmes du code [11]. GEANT4 est utilisé pour le transport de tout type de particules, et supporté par une large communauté d'utilisateurs dans le monde entier. Codé en langage C++, un programme GEANT4 consiste en plusieurs fichiers gérant chaque aspect de la simulation : géométrie, physique, détection d'évènement, etc.

Le troisième code Monte-Carlo utilisé est le logiciel FLUKA [12]. Ce code a été largement utilisé pour la caractérisation de protections neutroniques, et est similaire à MCNPX par le fait qu'un unique fichier d'entrée est nécessaire, avec un fichier optionnel pour des spécifications de sources particulières.

4.2. Choix de l'émission neutronique

La modélisation des sources neutroniques se fonde sur la norme ISO 8529-1 qui présente les spectres de référence pour des sources de $^{241}\text{AmBe}$ et de ^{252}Cf pour des sources relativement petites et « légèrement gainées » (sic) [1]. Ces caractéristiques peuvent mener à une certaine confusion lors de la modélisation de la source, à cause de l'omission des réactions de diffusion et de capture dans la source. En effet, pour une modélisation réaliste d'une source neutronique, la composition et la géométrie interne de la source doivent être prises en compte. Ainsi, afin de déterminer la configuration la plus pertinente, deux types d'émission neutronique limite, « surfacique » et « volumique », ont été considérés sous MCNPX, dans le cas d'une source de $^{241}\text{AmBe}$.

Dans le cas « surfacique », le spectre ISO est considéré comme étant le spectre émis en chaque point de la surface de la source selon une loi en cosinus. Dans le cas « volumique », le spectre ISO est le spectre primaire émis en chaque point du volume de la source en négligeant la diffusion dans le gainage en acier inoxydable. La position à la surface ou dans le volume, ainsi que la direction du neutron émis sont aléatoires.

Dans les deux cas, une géométrie simple a été modélisée : la source ($^{241}\text{AmBe}$ et gainage en acier inoxydable) est placée dans un volume vide et de dimensions

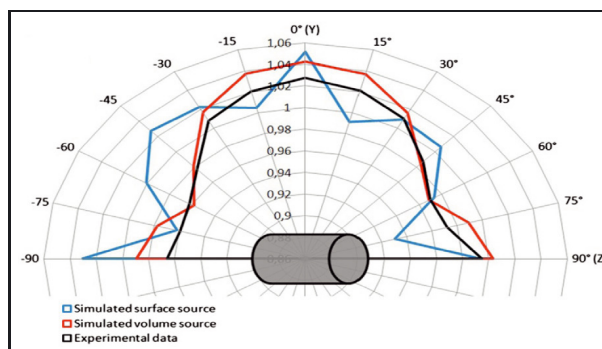


Fig. 7. – Facteurs d'anisotropie simulés et expérimentaux pour une source $^{241}\text{AmBe}$ de type X3.

infinies. Afin de comparer les deux configurations, les fluences neutroniques ont été calculées en différentes directions, allant de -90° à $+90^\circ$ par pas de 15° par rapport au plan médian de la source, et normalisées au cas isotrope, afin de comparer les facteurs d'anisotropie. Les facteurs d'anisotropie résultant de ces modélisations sont présentés dans la figure 7.

Le cas du facteur d'anisotropie d'une source d'émission surfacique présente plusieurs anomalies. Premièrement, des pics de fluence neutronique apparaissent sur les axes principaux de la source (axes Y et Z sur la figure). Cela peut s'expliquer par la façon dont les neutrons sont émis par l'algorithme d'émission de MCNPX : la direction pseudo-aléatoire de la particule émise suit en réalité une loi cosinus par rapport à la normale à la surface. La seconde anomalie pour l'émission surfacique est l'accroissement de la fluence neutronique pour les directions -45° et $+45^\circ$. Cela est dû à la forme cylindrique de la source. En effet, pour ces directions, les émissions neutroniques en bordure des disques et de la surface cylindrique sont additionnées.

Le second type d'émission modélisé, fondé sur un matériau radioactif homogène et sur une émission isotrope en chaque point du volume source, ne présente pas les anomalies précédemment observées. La diminution de la fluence neutronique aux directions -60° et $+60^\circ$ est due à la plus grande distance parcourue par le neutron émis à l'intérieur de la source, induisant plus de diffusion et d'absorption neutroniques en ces directions.

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

La troisième courbe de la figure 7 présente les valeurs expérimentales obtenues pour une source de $^{241}\text{AmBe}$, tirées d'un rapport du NPL [13]. Même si la différence entre les géométries simulées et mesurées ne permet pas de comparer numériquement les fluences, la forme générale obtenue pour une source volumique est en bon accord

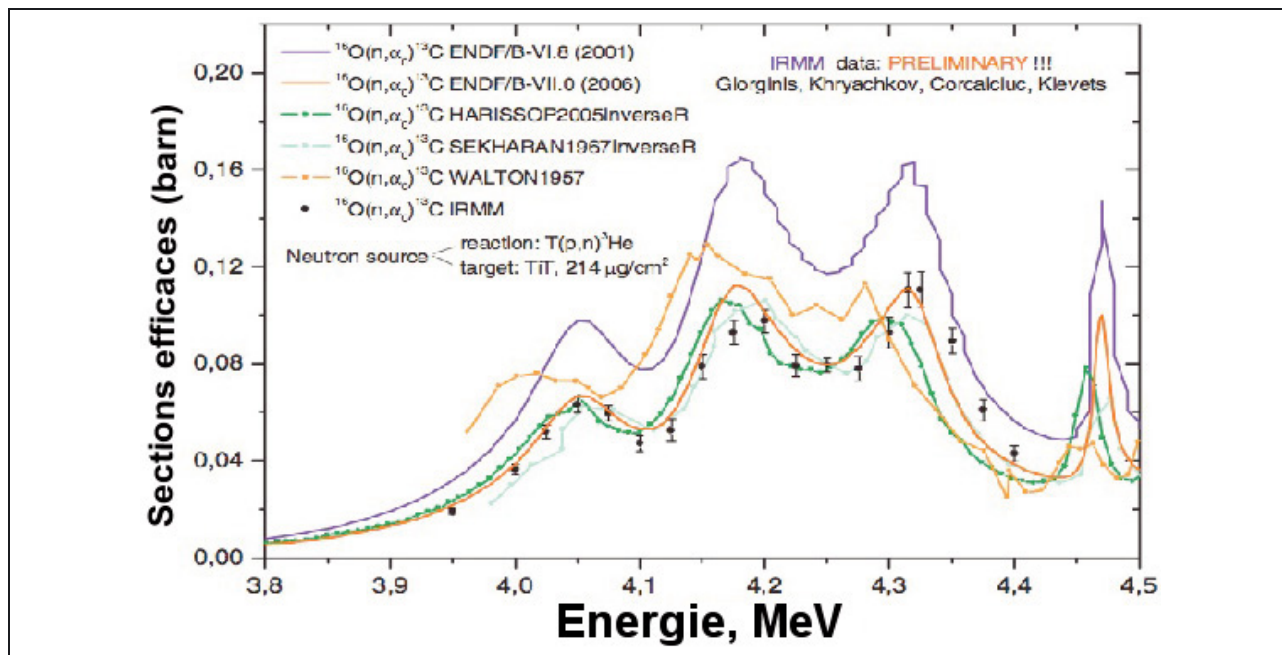


Fig. 8. – Comparaison des sections efficaces de capture neutronique sur l'oxygène [16] (1 barn = 10^{-24} cm²).

avec les données expérimentales. Considérant également l'absence d'anomalies pour le cas volumique, une émission à l'intérieur du matériau a donc été choisie, afin d'obtenir un comportement plus réaliste de la source simulée. Ces résultats sont en accord avec ceux présentés dans le rapport du NPL pour lequel les données expérimentales avaient également été comparées à une modélisation MCNP reprenant les mêmes caractéristiques (émission volumique selon la norme ISO 8529-1). Néanmoins, une révision de la norme ISO 8529-1 semble nécessaire afin de clarifier et normaliser les approches dans le cas de sources neutroniques non ponctuelles.

4.3. Choix des sections efficaces

Comme dans chaque code Monte-Carlo impliquant des interactions entre des hadrons et la matière, il est nécessaire d'utiliser des sections efficaces correspondant à la probabilité d'interaction entre un neutron et un atome cible. Il existe neuf sections efficaces d'interaction neutronique définies comme étalons « absolus » par l'AIEA en 1987 et réévaluées de 2002 à 2006 [14]. Ces étalons permettent de déterminer les sections efficaces des autres nucléides par mesures relatives et/ou calculs, et de rassembler ainsi les sections efficaces en banques de données. Cependant, dans un grand nombre de cas, la validité et la pertinence de ces bibliothèques ne peuvent pas être complètement assurées, par manque d'information. De plus, lors de modélisation de systèmes tels que le bain de manganèse, la complexité s'accroît rapidement compte tenu des différents éléments, composés, états de la matière et interactions neutron-matière mis en jeu. En effet, la plupart des sections efficaces nécessaires pour cette application sont relatives, y compris celle de l'interaction (n, γ) sur le manganèse, qui est la plus critique. Une étude précédente, concernant la modélisation

du bain, montra que dans le cas de l'oxygène le choix d'une certaine bibliothèque de sections efficaces plutôt qu'une autre pouvait induire un biais relatif allant jusqu'à 0,5 % sur le rendement du bain [15]. En effet, comme le montre la figure 8, de grandes disparités peuvent être relevées sur les sections efficaces d'interaction neutronique avec l'oxygène, selon les évaluations. Le choix de la bibliothèque de sections efficaces a donc un impact non négligeable sur le bilan global des incertitudes et il est donc important de choisir la bibliothèque la plus adéquate. Lors de cette sélection, certaines ont été volontairement ignorées par manque d'information sur leur validité.

Pour des raisons d'homogénéité dans les comparaisons de codes, nous avons utilisé la même bibliothèque de sections efficaces pour chaque code Monte-Carlo, la bibliothèque ENDF/B-VII.0 (*Evaluated Nuclear Data Files* version VII.0) publiée par le CSEWG américain (*Cross Section Evaluation Working Group*) en décembre 2006. Cette bibliothèque contient les données expérimentales ou calculées correspondant aux interactions entre neutrons, protons, photons et plus de 400 isotopes [17]. Chaque sous-bibliothèque, et en particulier celle concernant les interactions neutroniques, suit une méthode d'évaluation spécifique et détaillée. La bibliothèque ENDF/B-VII.0 est régulièrement mise à jour et testée. Cependant des doutes subsistent, en particulier sur les sections efficaces de réaction (n, p) sur l'oxygène dont les valeurs semblent diverger par rapport aux données expérimentales pour des énergies supérieures à 6,4 MeV [16]. Cette bibliothèque contient également des sous-bibliothèques correspondant aux sections efficaces de diffusion thermique. Pour l'hydrogène dans l'eau, ces sections efficaces prennent en compte le mouvement de la molécule H₂O en fonction de la température. Dans le polyméthacrylate (PMMA, présent dans le porte-source),

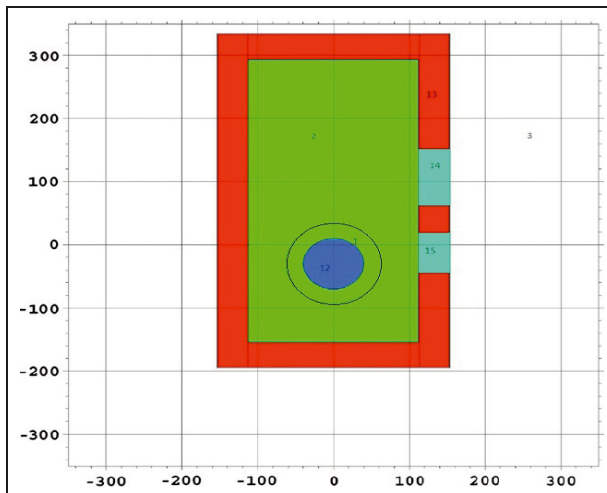


Fig. 9. – Vue de dessus en coupe de la géométrie modélisée sous MCNPX, les dimensions sont en centimètres.

l'hydrogène est considéré comme similaire à l'hydrogène du groupement CH_2 .

4.4. Comparaison des codes de calcul

4.4.1. MCNPX

La figure 9 montre le système modélisé sous MCNPX, vu de dessus et en coupe. La sphère remplie de sulfate de manganèse (volume 12) est placée dans une casemate dont les murs sont conçus pour absorber les neutrons. Ils se composent de béton boré de type PNT7 d'épaisseur 40 cm, et de deux couches d'acier inoxydable d'épaisseur 1 cm de chaque côté du béton. Le volume 2 représente l'air à l'intérieur de la casemate. Les hublots sont modélisés par les volumes 14 et 15.

Le cercle externe concentrique au volume 12 représente une sphère virtuelle de 70 cm de rayon permettant de contrôler la fluence de fuite neutronique en dehors de la sphère en acier inoxydable, d'un diamètre de 1 m et d'une épaisseur de 2,5 mm. L'assemblage source et porte-source, placé au centre de la sphère et maintenu en position par deux tiges en acier inoxydable, apparaît sur la figure 10. Cet assemblage est composé du matériau radioactif ($\text{AmO}_2 + \text{Be}$, volume 4), l'enveloppe en acier inoxydable (volume 5), l'air entre la source et le porte-source (volume 6), et le porte-source (volumes 7 à 9).

4.4.2. GEANT4

La géométrie modélisée sous GEANT4 est similaire à celle modélisée sous MCNPX.

La description des processus physiques possibles lors de la simulation du modèle GEANT4 inclut la gestion des sections efficaces extraites de ENDF/B-VII.0. Plusieurs anomalies dans la conversion de ces sections efficaces (en un format exploitable par GEANT4) ont été trouvées et corrigées et l'ensemble de ces anomalies a été communiqué à l'équipe de développement de GEANT4.

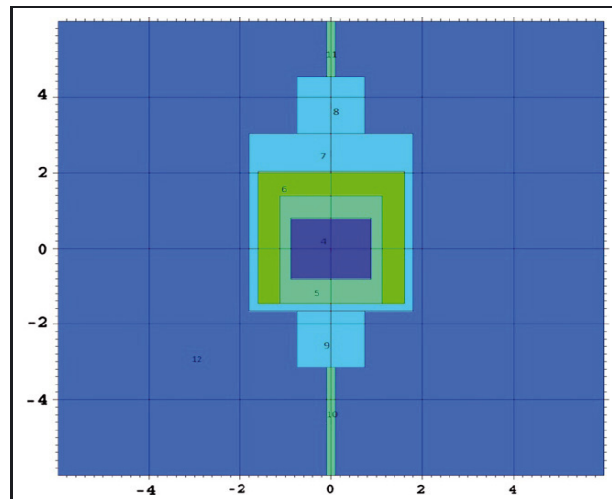


Fig. 10. – Vue en coupe de l'assemblage porte-source modélisé sous MCNPX, les dimensions sont exprimées en centimètres.

La définition des matériaux et des compositions, ainsi que les caractéristiques de la source ont également été copiées du modèle MCNPX. Ces dernières sont intégrées à un module complémentaire, le « *General Particle Source Macro System* » [18]. Le comptage par logiciel des captures neutroniques sur les éléments d'intérêt a été programmé séparément et intégré à l'algorithme de détection des événements. Cet algorithme inclut la détection des neutrons s'échappant de la sphère, et permet une analyse de la distribution en énergie des neutrons issus de chacune des interactions ayant lieu dans le système. Le comptage des captures neutroniques est vérifié en comptant les émissions γ résultant de la désintégration de ^{56}Mn et de la capture radiative sur chaque élément du bain. Les résultats sont normalisés à un neutron émis par la source.

4.4.3. FLUKA

La modélisation développée sous FLUKA est identique à celles développées sous MCNPX et GEANT4. Les indicateurs permettant le comptage des éléments activés sont de type « RESNUCLEI », qui permet d'obtenir un fichier de sortie dédié à la quantification des éléments activés. Ainsi, le pourcentage de capture neutronique pour chaque élément est aisément obtenu. Un fichier supplémentaire a été nécessaire afin d'ajouter à la source ses caractéristiques géométriques, d'isotropie, et d'émission suivant la norme ISO 8529-1. Comme pour les précédentes simulations, la bibliothèque de sections efficaces ENDF/B-VII.0 a été utilisée pour toutes les interactions neutron-matière.

4.4.4. Simulations et comparaisons des résultats

Trois modélisations du bain de manganèse du LNE-LNHB ont été effectuées via MCNPX, GEANT4, et FLUKA selon les descriptions géométriques exposées précédemment. Les temps de simulations furent de 2, 4 et 5 jours respectivement pour 10^8 , 10^7 et 10^6 neutrons primaires émis. Les techniques de réduction de variance

Tableau 1

Calcul des probabilités d'interaction (exprimées en %).

Code	Mn	H	S	O
MCNPX	42,715(7)	51,000(7)	2,167(2)	1,620(2)
GEANT4	45,25(02)	48,66(2)	3,071(6)	1,400(4)
FLUKA	43,47(7)	51,92(7)	1,65(1)	0,90(1)

Tableau 2

Fluences totales simulées, normalisées sur la surface de la sphère.

Code	Fluence totale de fuite (cm ⁻²)
MCNPX	(7,45 ± 0,01) %
GEANT4	(9,53 ± 0,02) %
FLUKA	(7,32 ± 0,01) %

n'ont pas été appliquées. Le tableau 1 présente les résultats donnés en pourcentage de capture neutronique par le manganèse, l'hydrogène, le soufre et l'oxygène. Les incertitudes associées correspondent uniquement aux fluctuations statistiques des tirages Monte-Carlo.

Les écarts entre ces valeurs sont significatifs, atteignant 6 % en relatif, pour le manganèse. Pour le soufre et l'oxygène, les écarts relatifs sont encore plus grands. Par le passé, quelques publications seulement ont traité de la comparaison entre les codes MCNPX, GEANT4 et FLUKA. Dans la plupart d'entre elles, les écarts peuvent atteindre 20 % [18, 19]. Une précédente étude, où l'ancien bain de manganèse du LNHB fut modélisé en utilisant diverses versions de MCNP et TRIPOLI montra un accord entre les résultats de 0,8 % [15, 19].

Afin d'identifier la ou les causes de ces écarts, les fuites neutroniques simulées par les trois codes ont été comparées. La fluence de fuite (neutrons s'échappant de la sphère) a été étudiée dans le but de vérifier la forme du spectre en énergie des neutrons après diffusion et thermalisation, et de contrôler ainsi le comportement des codes en fonction de l'énergie des neutrons. Le tableau 2 présente les fluences de fuite calculées et normalisées sur la totalité de la surface de la sphère. On peut constater un fort écart relatif (environ 28 %) entre GEANT4 et les autres codes.

L'écart relatif entre FLUKA et MCNPX est plus faible (environ 1,8 %). Afin de cerner l'origine de ces écarts, des modélisations complémentaires modifiant la complexité du modèle ont été réalisées : un modèle simple a été développé pour analyser les problèmes liés à la distribution en énergie de la source et une source mono-énergétique a également été simulée.

La géométrie simplifiée consiste en une source ponctuelle, avec une émission isotrope (suivant la distribution en énergie définie dans la norme ISO 8529-1), placée au centre d'une sphère d'un mètre de diamètre constituée d'une solution aqueuse de sulfate de manganèse. La sphère est placée à l'intérieur d'un volume vide de dimensions infinies. L'influence des différents moyens de modéliser l'émission neutronique a également été

Tableau 3

Calcul des probabilités d'interaction (exprimées en %) avec géométrie simplifiée.

Code	Mn	H	S	O
MCNPX	42,510(7)	50,760(7)	2,230(2)	1,09(1)
GEANT4	45,20(2)	48,71(2)	1,560(4)	1,730(4)
FLUKA	43,790(7)	52,140(7)	1,620(4)	1,050(1)

Tableau 4

Calcul des probabilités d'interaction (exprimées en %), géométrie simplifiée et neutrons monocinétiques.

Code	Mn	H	S	O
MCNPX	43,565(7)	52,025(7)	2,278(2)	1,13(1)
GEANT4	44,56(2)	47,89(2)	3,064(4)	1,546(4)
FLUKA	43,76(7)	52,15(7)	1,65(4)	1,070(1)

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

Le tableau 3 présente les résultats obtenus avec cette géométrie simplifiée, pour les trois codes de calcul, pour la capture neutronique par les principaux éléments d'intérêt. Dans le cas de cette géométrie simplifiée, GEANT4, MCNPX et FLUKA présentent déjà des écarts importants sur chaque élément. De plus, ces différences sont du même ordre de grandeur que celles obtenues pour une géométrie complexe, sauf pour la valeur de capture neutronique par le soufre pour GEANT4, qui a été divisée par 2, et pour la valeur de capture neutronique par l'oxygène pour MCNPX, réduite de 30 %. Cela implique que les causes des disparités observées entre les codes ne sont pas liées à la géométrie modélisée, mais résultent probablement dans les modèles de réactions nucléaires utilisés par chaque code, ou dans la définition des indicateurs définis par l'utilisateur.

Afin de simplifier encore le modèle, les calculs ont été effectués avec la même géométrie mais en simulant des neutrons monocinétiques de 4,44 MeV. Les résultats apparaissent sur le tableau 4.

Des écarts entre les codes peuvent également être observés, mais la différence entre les résultats obtenus par MCNPX et FLUKA a diminué, ce qui semble indiquer que les différences entre ces deux codes se situent principalement dans la modélisation de l'émission neutronique. Pour la modélisation GEANT4, on note une augmentation du taux de capture neutronique par le soufre par rapport au cas de la géométrie simple, cependant plus proche de celui obtenu pour la géométrie complète. Cette fois encore, de telles différences peuvent difficilement être expliquées par les processus physiques en jeu lors de la simulation, et sont probablement dues à des approximations dans le code.

Il existe peu de publications traitant de la validation des codes GEANT4, MCNPX et FLUKA pour le transport des neutrons d'énergies thermiques à rapides. La plupart d'entre elles traitent de comparaisons dans le traitement des sections efficaces. Mendoza [20] montra que de fortes disparités sont présentes entre GEANT4 et MCNPX, particulièrement lorsque l'on utilise des bibliothèques de sections efficaces pour des neutrons thermiques, telles que celles fournies par ENDF B VII.0. En effet, sans pouvoir en expliquer la cause, cette publication démontre que plusieurs des bibliothèques évaluées se comportent différemment de celles utilisées dans MCNPX, en s'appuyant sur différentes « températures » de thermalisation des neutrons pour la même section efficace traitée par GEANT4 ou MCNPX [21].

En complément, il serait intéressant de comparer les résultats simulés avec des mesures appropriées, afin d'appuyer le choix du code de calcul Monte-Carlo. La difficulté dans le cas du bain de manganèse est de mesurer une source de neutrons d'émission neutronique connue et qui n'a pas été étalonnée par une méthode du bain de manganèse utilisant des facteurs correctifs calculés par des méthodes Monte-Carlo. Une méthode de validation expérimentale possible, qui est en cours d'investigation au LNHB [22], consiste à mesurer deux sources différentes dans deux géométries de mesure différentes, par exemple en utilisant des porte-sources de nature différente ou deux bains de manganèse de diamètres différents. Cela conduit à quatre modèles décrits par le système d'équations (5) dérivés de (4) :

$$\begin{aligned} \Phi_1 &= \frac{A_1}{R_1} = \frac{A_2}{R_2}, \\ \Phi_2 &= \frac{A'_1}{R'_1} = \frac{A'_2}{R'_2} \end{aligned} \quad (5)$$

où Φ_1 et Φ_2 correspondent aux débits d'émission des sources 1 et 2 et A_1, A_2, R_1 et R_2 correspondent aux activités expérimentales et aux rendements calculés dans les deux géométries de mesure. Si ce système est vérifié, et après évaluation des incertitudes associées, les facteurs correctifs calculés doivent correspondre aux activités mesurées, signifiant qu'il n'y a pas d'incohérence entre la modélisation et l'expérience. L'utilisation de deux émissions neutroniques différentes diminue la probabilité d'avoir une égalité accidentelle entre les mesures et la simulation.

5. Mesure d'activité de ^{56}Mn

Historiquement, la mesure d'activité de ^{56}Mn était réalisée au LNHB en utilisant une boucle de circulation comportant un récipient de volume défini, associé à un détecteur γ . Le schéma de décroissance de ^{56}Mn apparaît sur la figure 11, [23]. Les transitions β se font vers des niveaux excités de ^{56}Fe , et sont donc suivies par des désexcitations γ . Les principales énergies d'émission γ sont listées dans le tableau 5.

Il existe une émission γ bien isolée et de forte intensité à 845 keV. Cette émission est facilement identifiable,

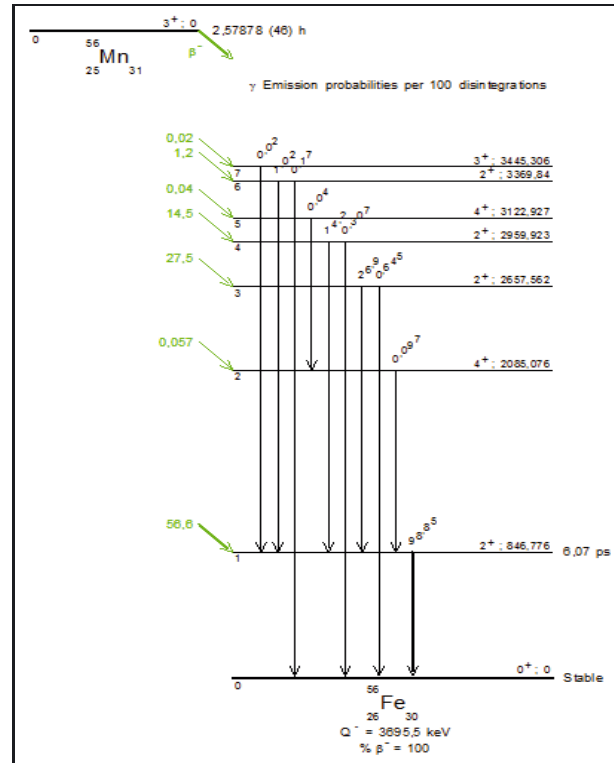


Fig. 11. – Schéma de désintégration de ^{56}Mn [23].

même en utilisant un détecteur γ de faible résolution, comme un scintillateur NaI(Tl). Le spectre en énergie obtenu sur le système de mesure du LNHB et utilisant un cristal cylindrique de diamètre 5 cm et de hauteur 5 cm apparaît sur la figure 12. On observe clairement le pic d'émission à 845 keV, qui est caractéristique de ^{56}Mn . En mesurant la surface de ce pic avec un détecteur préalablement étalonné, on peut mesurer l'activité en ^{56}Mn du bain.

L'étalonnage du détecteur consiste à introduire dans le bain une activité connue de ^{56}Mn , déterminée par une méthode de mesure primaire, et à mesurer le taux de comptage dans le pic correspondant. Cet étalonnage peut être décomposé en cinq étapes :

- irradiation en réacteur (ou avec une source intense de neutrons) d'une cible de manganèse métallique ;
- dissolution de la cible en milieu sulfurique et dilution en 2 aliquotes (A & B) ;
- détermination de l'activité massique de l'aliquote A par la méthode des coïncidences $4\pi\beta\text{-}\gamma$;
- ajout quantitatif de l'aliquote B dans le bain de manganèse et homogénéisation ;
- étalonnage du détecteur γ : relation entre le taux de comptage et l'activité totale en ^{56}Mn du bain.

Cette méthode d'étalonnage présente plusieurs inconvénients. Elle nécessite d'abord l'utilisation d'un moyen d'irradiation neutronique à proximité de l'installation de mesure. Le LNHB a la chance d'être à proximité du

Tableau 5
Émissions gamma du ⁵⁶Mn.

		EMISSIONS		TRANSITIONS					
Initial	Final	Energy (keV)	Photons per 100 disintegrations	Energy (keV)	Probability (%)	α_t	α_K	α_L	α_M
1	0	846,7638 ± 0,0019	98,85 ± 0,03	846,776 ± 0,005	98,88 ± 0,03	(3, ± 0,09)×1E-4	(2,7 ± 0,08)×1E-4	(2,5 ± 0,08)×1E-5	(3,7 ± 0,1)×1E-6
5	2	1037,8333 ± 0,0024	0,04 ± 0,004	1037,85 ± 0,02	0,04 ± 0,004	(1,5 ± 0,05)×1E-4	(1,3 ± 0,04)×1E-4	(1,2 ± 0,04)×1E-5	(6, ± 0,2)×1E-6
2	1	1238,2736 ± 0,0022	0,097 ± 0,002	1238,3 ± 0,012	0,097 ± 0,002	(1,2 ± 0,04)×1E-4	(1,1 ± 0,03)×1E-4	(1, ± 0,03)×1E-5	(2, ± 0,06)×1E-6
3	1	1810,726 ± 0,004	26,9 ± 0,4	1810,786 ± 0,015	26,9 ± 0,4	(5,1 ± 0,15)×1E-5	(4,6 ± 0,14)×1E-5	(4,3 ± 0,13)×1E-6	(6,3 ± 0,2)×1E-7
4	1	2113,092 ± 0,006	14,2 ± 0,3	2113,15 ± 0,01	14,2 ± 0,3				
6	1	2523,06 ± 0,05	1,02 ± 0,02	2523,06 ± 0,05	1,02 ± 0,02				
7	1	2598,438 ± 0,004	0,02 ± 0,002	2598,53 ± 0,02	0,02 ± 0,002				
3	0	2657,56 ± 0,01	0,645 ± 0,007	2657,56 ± 0,01	0,645 ± 0,007				
4	0	2959,92 ± 0,01	0,307 ± 0,005	2959,92 ± 0,01	0,307 ± 0,005				
6	0	3369,84 ± 0,04	0,17 ± 0,01	3369,84 ± 0,04	0,17 ± 0,01				

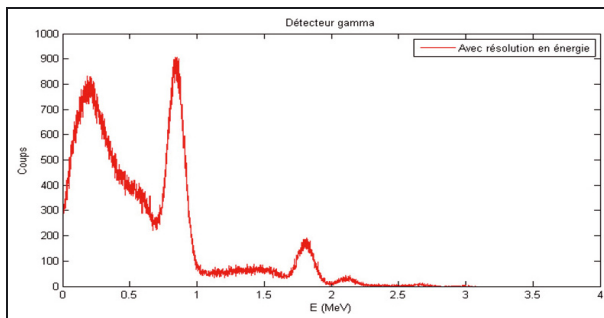


Fig. 12. – Distribution en énergie de l'émission γ expérimentale de ⁵⁶Mn.

réacteur OSIRIS, mais sa disponibilité peut poser des problèmes pendant certaines périodes de l'année. Par ailleurs la source de ⁵⁶Mn doit être de forte activité (quelques 10 MBq) du fait de la courte période de ce radionucléide. Cette source est irradiante et sa manipulation nécessite des précautions de radioprotection, par exemple l'emploi d'une cellule blindée.

Afin de s'affranchir de la nécessité de l'étalonnage du bain, nous avons développé une nouvelle méthode de mesure en ligne de l'activité en ⁵⁶Mn, fondée sur le principe des coïncidences β - γ . Cela nécessite l'utilisation de deux détecteurs différents, chacun étant sensible à un type de rayonnement. La détection du rayonnement β se fait grâce à l'effet Tcherenkov, et celle du rayonnement γ grâce à un scintillateur solide.

Les émissions β résultant de la désintégration de ⁵⁶Mn ont une énergie suffisante pour être détectées grâce à l'effet Tcherenkov. Cet effet consiste en l'émission de lumière produite lorsqu'une particule chargée traverse un

milieu transparent, d'indice de réfraction supérieur à 1, avec une vitesse supérieure à celle de la lumière ce milieu [24]. L'effet Tcherenkov se produit lorsque l'énergie de la particule chargée E dépasse le seuil Tcherenkov, défini par l'équation (6) :

$$\frac{1}{n} = \sqrt{1 - \left(\frac{1}{\frac{E}{m_0c^2} + 1} \right)^2}, \quad (6)$$

où n est l'indice de réfraction du milieu, E l'énergie de la particule et m_0c^2 , l'énergie de masse de la particule (511 keV pour l'électron). A titre d'exemple, le seuil Tcherenkov est d'environ 263 keV pour un électron dans l'eau ($n = 1,33$) et 231 keV dans la solution aqueuse de sulfate de manganèse ($n = 1,38$ pour une concentration de 332 g·L⁻¹).

Physiquement, l'effet Tcherenkov résulte d'une asymétrie dans le champ de polarisation des atomes constituant le milieu traversé par la particule chargée [25]. L'émission photonique a été décrite comme une onde de choc électromagnétique, par analogie avec le choc sonore produit lorsqu'un avion dépasse la vitesse du son dans l'air. Une propriété importante de l'effet Tcherenkov est que la lumière est émise selon un angle θ par rapport à la direction de propagation de la particule chargée, où :

$$\cos \theta = \frac{1}{\beta n}, \quad (7)$$

où β est le rapport entre la vitesse de la particule dans le milieu et la vitesse de la lumière dans le vide. Les photons produits par des électrons dont l'énergie est juste

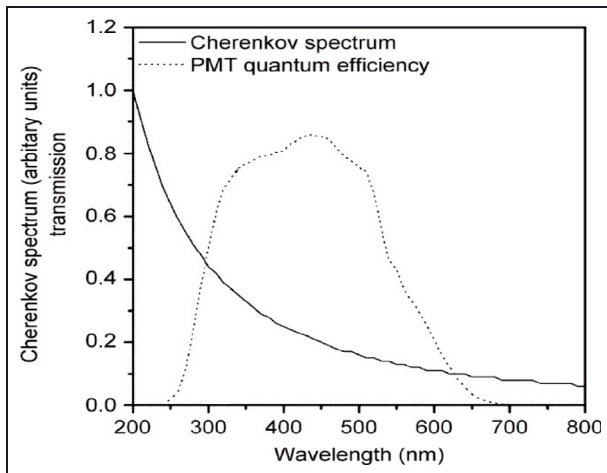


Fig. 13. – Distribution spectrale de l'émission Tcherenkov et rendement quantique d'un photodétecteur typique [26].

au-dessus du seuil en énergie seront émis à la surface d'un cône relativement étroit. À l'opposé, lorsque l'énergie de la particule augmente, β tend vers 1 et $\cos \theta$ tend vers 0,750 8 dans le cas de l'eau, l'angle maximum d'émission étant de $41,3^\circ$.

La sensibilité d'un photo-détecteur à l'effet Tcherenkov repose sur deux paramètres : la distribution spectrale des photons émis et le rendement quantique du photo-détecteur. La théorie développée par Frank et Tamm permet de calculer le nombre de photons émis dans une bande spectrale donnée par unité de longueur parcourue par la particule, selon la formule (8) :

$$\frac{dN}{dx} = 2\pi\alpha \left(\frac{1}{\lambda_2} - \frac{1}{\lambda_1} \right) \left(1 - \frac{1}{\beta^2 n^2} \right), \quad (8)$$

où dN/dx est le nombre de photons émis par unité de longueur, α est la constante de structure fine et λ_1 et λ_2 les bornes inférieures et supérieures de l'émission spectrale.

La distribution spectrale est présentée sur la figure 13, ainsi que le rendement quantique typique d'un photodétecteur [26].

Afin de détecter au mieux les impulsions de lumière Tcherenkov, il est nécessaire d'utiliser un photodétecteur sensible au rayonnement ultraviolet (UV, longueur d'onde inférieure à 380 nm). Il est également important de ne pas introduire de matériaux comme le verre, pouvant absorber les UV entre le détecteur et la solution.

Pour la mesure en ligne de l'activité du bain, il est également nécessaire de compter les rayons γ provenant de la déséxcitation de ^{56}Fe , en coïncidence avec les événements Tcherenkov. Le schéma de désintégration de ^{56}Mn indique que dans 98,85 % des désintégrations, il y a émission d'un rayonnement γ de 846 keV. C'est cette émission qui sera choisie comme caractéristique de ^{56}Mn et il est donc nécessaire d'utiliser un détecteur γ capable de discriminer l'énergie des photons γ incidents.

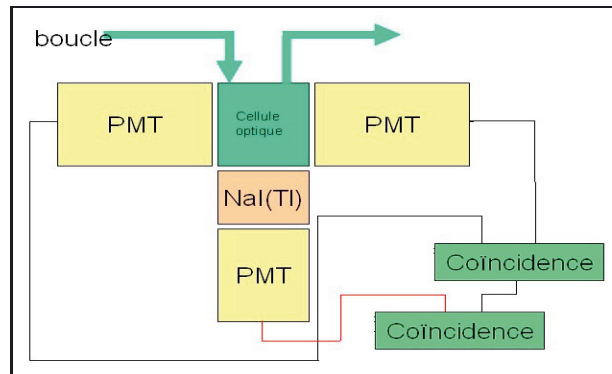


Fig. 14. – Schéma du système de mesure en ligne d'activité de ^{56}Mn .

Le schéma du système de détection retenu apparaît sur la figure 14 : la solution de sulfate de manganèse issue de la boucle de mesure circule dans une cellule optique transparente accolée à deux photomultiplicateurs pour le comptage des photons Tcherenkov, fonctionnant en coïncidence afin de rejeter leur bruit thermique. Un détecteur NaI(Tl) pour le comptage des photons γ est également accolé à cette cellule et les comptages s'effectuent pour chaque détecteur (*i.e.* photomultiplicateurs en coïncidence et détecteur γ) et pour les deux types de détecteurs en coïncidence.

Les photo-détecteurs que nous avons sélectionnés sont des photomultiplicateurs R7056 (Hamamatsu). Ils ont une réponse spectrale adaptée à la répartition spectrale du rayonnement Tcherenkov (de 185 nm à 650 nm) et des dimensions appropriées à notre cellule de mesure (diamètre effectif de la photocathode de 25 mm).

Le détecteur γ est un scintillateur NaI(Tl). Il comporte un cristal cylindrique de diamètre et de hauteur 25,4 mm, couplé à un photomultiplicateur Hamamatsu R2060. D'après le constructeur, un cristal de ce type présente un rendement de détection d'environ 45 % à 846 keV. Ce détecteur, robuste et de faibles dimensions, permet d'installer la voie γ au plus près de la cellule de mesure, afin d'augmenter le rendement et de diminuer l'influence du rayonnement provenant de l'extérieur du détecteur.

Les dimensions de la cellule optique ont été optimisées en considérant les propriétés optiques de la solution de sulfate de manganèse. La transmittance, pour une concentration en MnSO_4 de $332 \text{ g}\cdot\text{L}^{-1}$, a été mesurée à l'aide d'un spectrophotomètre entre 190 nm à 1 090 nm. À partir des coefficients d'extinction molaire obtenus par la mesure, les valeurs de transmittance correspondante ont été calculées, pour quatre trajets optiques différents entre 1 cm et 5 cm. Les valeurs obtenues apparaissent sur la figure 15.

Compte tenu de la répartition spectrale du rayonnement Tcherenkov, une transmission maximale pour les longueurs d'onde les plus faibles est souhaitable, afin de transmettre un maximum de photons de la solution aux faces d'entrée des photomultiplicateurs. La transmittance

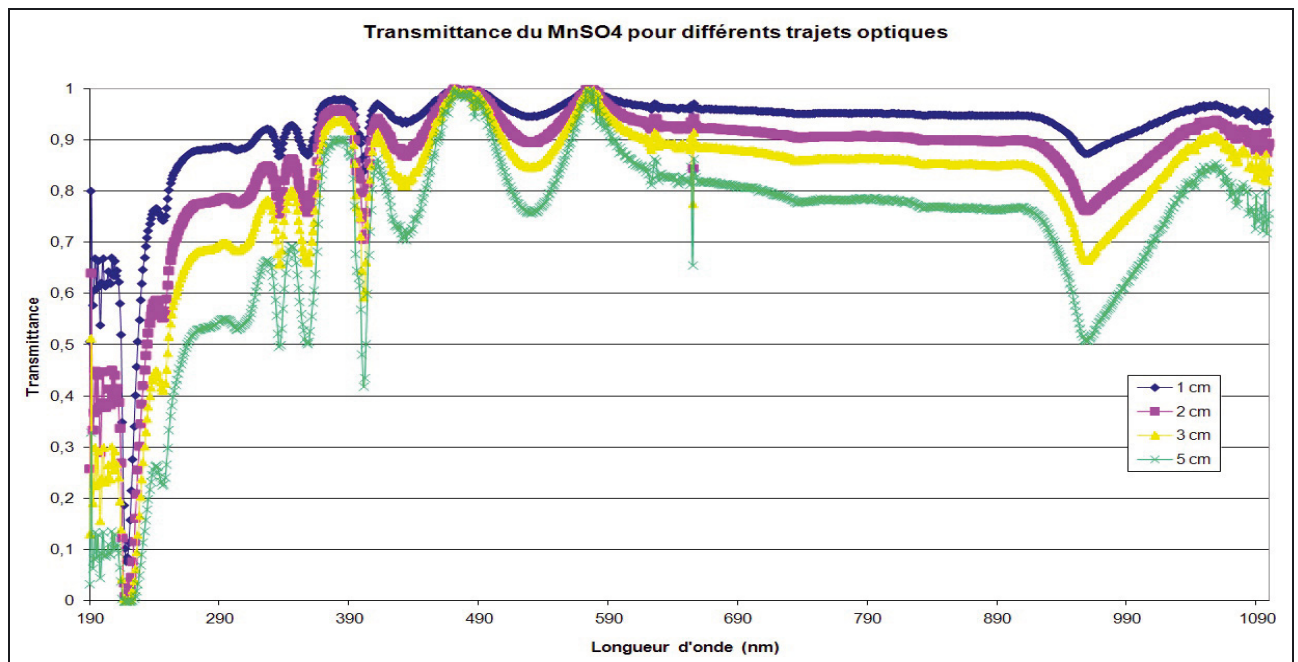


Fig. 15. – Transmittance d'une solution de sulfate de manganèse pour quatre parcours optiques.

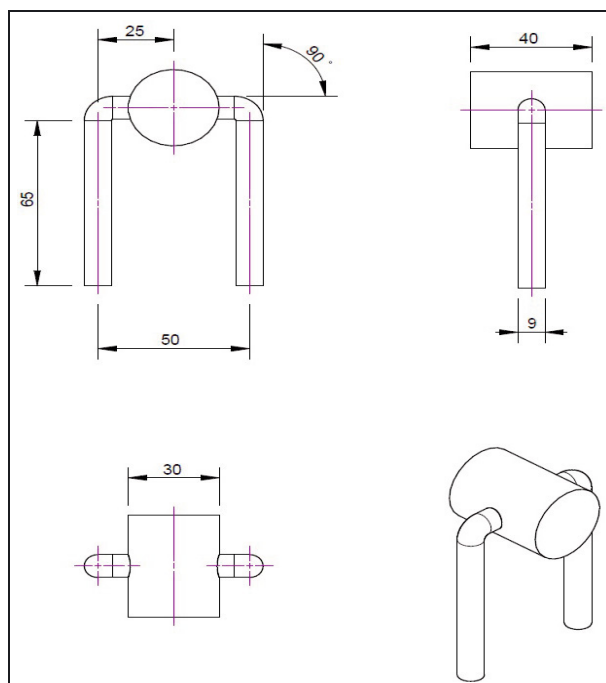


Fig. 16. – Cellule optique.

de la solution de $MnSO_4$ varie fortement avec le trajet optique : entre 190 nm et 215 nm, la transmittance passe d'environ 62 % à 40 % lorsque le trajet optique passe de 1 cm à 2 cm. En pratique, des géométries ayant des dimensions inférieures à 2 cm sont difficilement réalisables. Une géométrie la plus petite possible a donc été choisie, permettant d'accoler deux photomultiplicateurs au plus proche de la solution activée. La géométrie de la cellule en quartz développée est présentée dans la figure 16.

La cellule est composée de faces en quartz, de diamètre 30 mm, soudées à un cylindre en quartz également (d'épaisseur 1 mm). Deux tubulures soudées de part et d'autre du cylindre permettent la circulation de la solution activée dans la cellule. De plus, la surface cylindrique de la cellule a été peinte en blanc (peinture réfléchissante au TiO_2) afin d'assurer la réflexion des photons et d'améliorer ainsi le rendement de détection de la voie Tcherenkov. La surface de peinture équivalente à une surface cylindrique pleine (sans trou de tubulure) a été calculée afin de tendre vers un rendement optimal. En effet, la perte de réflectivité induite par les tubulures peut être compensée en apposant de la peinture réfléchissante sur la partie des tubulures en contact avec le cylindre de la cellule. Les tubulures ont également été peintes en noir afin d'absorber les photons émis à l'intérieur de celles-ci et d'éviter ainsi leur réflexion éventuelle jusqu'aux détecteurs.

L'ensemble du dispositif de mesure a été intégré dans un châssis autonome. Ce châssis est composé d'un pavé en aluminium de section rectangulaire et de deux pièces en plomb dans lesquelles vient s'intégrer la cellule en quartz. L'épaisseur de ces pièces a été calculée pour que le rayonnement γ ne provenant pas de la cellule (tubulures, tuyauterie extérieure) soit atténué au maximum. La partie supérieure du châssis est démontable afin de pouvoir accéder à la cellule optique. L'ensemble du dispositif apparaît sur la figure 17.

Le traitement du signal issu du détecteur Tcherenkov-gamma a nécessité le développement d'une électronique destinée à la gestion des coïncidences et des paramètres intrinsèques à cette méthode (temps mort, temps actif, temps de résolution, etc.). Dans ce but, une chaîne électronique spécifique a été conçue en utilisant une carte

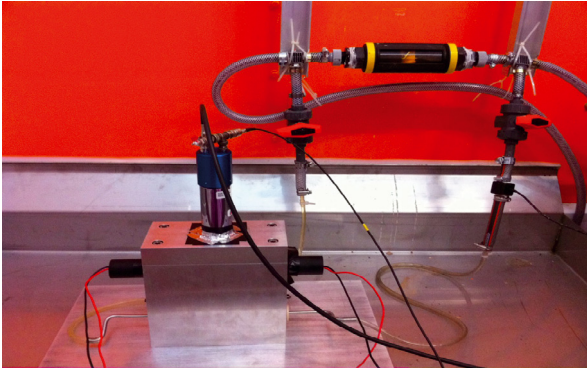


Fig. 17. – Détecteur en ligne Tcherenkov- γ .

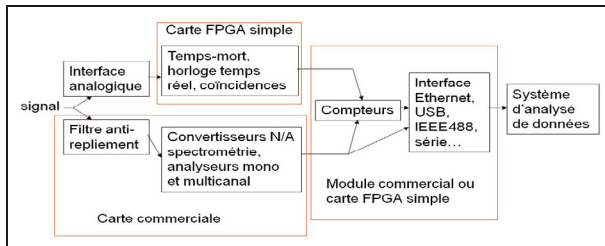


Fig. 18. – Chaîne d'acquisition pour les coïncidences Tcherenkov-gamma.

commerciale à base de FPGA (*Field Programmable Gate Array*) et une carte analyseur multicanal. En effet, parmi les modules fonctionnels nécessaires à la méthode des coïncidences, seuls les paramètres temps mort, temps réel (mesure du temps actif de comptage) et coïncidences (fenêtre) n'ont pas leur équivalent numérique sur le marché. Les autres modules sont directement disponibles et ne nécessitent que peu ou pas de modifications pour être adaptés au système Tcherenkov-gamma : les analyseurs multicanal numériques pour la spectrométrie γ sont très répandus et suffisamment fiables et robustes, et les modules numériques pouvant être programmés pour réaliser les fonctions comptage et interface avec l'ordinateur sont nombreux et très bon marché (microcontrôleurs, cartes FPGA simples, etc.). Seule l'interface analogique, permettant d'adapter les signaux provenant des détecteurs afin qu'ils soient exploitables par les différents modules, a été conçue spécialement pour cette application. Le principe de cette chaîne d'acquisition apparaît sur la figure 18.

Le principe de la mesure d'activité par la méthode des coïncidences suppose de disposer de deux détecteurs, chacun n'étant sensible qu'à un type de rayonnement. Ici le détecteur β est la voie de mesure Tcherenkov, et le détecteur γ le scintillateur NaI(Tl). Une condition nécessaire à l'application d'une méthode de calcul simple est que les deux voies soient indépendantes : par exemple le détecteur β ne doit pas être sensible au rayonnement γ . Dans cette hypothèse, on peut écrire les relations entre les taux de comptage dans chaque voie, N_β et N_γ , le taux de comptage en coïncidence, N_c , avec l'activité de la source

radioactive, A :

$$\begin{aligned} N_\beta &= A \cdot \varepsilon_\beta \\ N_\gamma &= A \cdot \varepsilon_\gamma \\ N_c &= A \cdot \varepsilon_\beta \cdot \varepsilon_\gamma. \end{aligned} \quad (9)$$

On peut déduire l'activité de la source d'après (9) et en combinant les taux de comptage :

$$A = \frac{N_\beta N_\gamma}{N_c}. \quad (10)$$

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

Dans le cas d'une source étendue pour laquelle les rendements de détection peuvent varier d'une région à l'autre de la source (à cause de l'angle solide de la voie de détection et/ou d'une inhomogénéité de la source), les taux de comptages s'écrivent :

$$\begin{aligned} N_\beta &= A \cdot \bar{\varepsilon}_\beta \\ N_\gamma &= A \cdot \bar{\varepsilon}_\gamma \\ N_c &= A \cdot \bar{\varepsilon}_\beta \bar{\varepsilon}_\gamma, \end{aligned} \quad (11)$$

où les rendements de détection sont moyennés sur la totalité du volume de la source.

Si la condition d'indépendance entre les voies n'est pas respectée, des corrections de calcul doivent être appliquées. Le système d'équations (9) devient :

$$\begin{aligned} N_\beta &= A \left(\varepsilon_\beta + (1 - \varepsilon_\beta) \cdot \varepsilon_{\beta\gamma} \right) \\ N_\gamma &= A \cdot \left(\varepsilon_\gamma + (1 - \varepsilon_\gamma) \cdot \varepsilon_{\gamma\beta} \right) \\ N_c &= A \cdot \varepsilon_\beta \cdot \varepsilon_\gamma, \end{aligned} \quad (12)$$

où $\varepsilon_{\beta\gamma}$ correspond à la probabilité de détection du rayonnement γ dans la voie β et $\varepsilon_{\gamma\beta}$ correspond à la probabilité de détection du rayonnement β en voie γ . Dans ce cas le système (12) n'est pas directement soluble et il est nécessaire de faire varier le rendement d'un des détecteurs pour pouvoir extrapoler la valeur de l'activité. En faisant par exemple varier le rendement de la voie « β », l'activité A est obtenue en extrapolant l'expression (12) lorsque N_c/N_γ tend vers 1. En pratique, on trace le graphique N_β en fonction de $(1 - N_c/N_\gamma)$, et on obtient l'activité A en extrapolant à 0 la courbe obtenue. On fait varier le rendement en voie « β » en réduisant la tension d'alimentation des photomultiplicateurs, ce qui a pour effet de diminuer le nombre d'électrons collectés pour la détection d'un photon.

6. Mesure de la densité, de la concentration en MnSO_4 et de la masse du bain

La mesure de la densité de la solution a été réalisée grâce à un densitomètre automatique compensé en

température. La masse volumique de la solution aqueuse de $MnSO_4$ présente dans la sphère est de $(1,277 \pm 0,001) \text{ g}\cdot\text{cm}^{-3}$ à 20°C . La concentration de la solution a également été mesurée par pesée du résidu sec après évaporation. Un échantillon de solution de sulfate de manganèse prélevé dans la sphère puis pesé a été chauffé à 300°C pendant plusieurs heures puis le résidu sec a été pesé. La concentration massique en sulfate de manganèse est de $(332 \pm 0,02) \text{ g}\cdot\text{L}^{-1}$, d'où une concentration molaire de $(1,934 \pm 0,002) \text{ mol}\cdot\text{L}^{-1}$. D'après ces mesures, et en prenant en compte les masses molaires données dans la littérature, la pesée après déshydratation totale de l'échantillon confirme le fait que le sulfate de manganèse se trouve alors sous la forme monohydraté.

La pesée de la masse totale de solution à l'intérieur de la sphère a été réalisée lors du remplissage de celle-ci, à l'aide d'une balance étalonnée. La masse totale mesurée est de $(629,95 \pm 0,63) \text{ kg}$.

La mesure par le détecteur Tcherenkov-gamma développé donne l'activité en ^{56}Mn dans la cellule en quartz. Cette activité correspond cependant à une masse très faible par rapport à la masse totale de la solution et il est donc nécessaire de déterminer précisément la masse de la solution présente dans la cellule de mesure, ce qui n'est pas trivial du fait de sa géométrie comportant des tubulures. Cette mesure a été effectuée par pesée et conduit à une masse de $(19,900 \pm 0,001) \text{ g}$ de solution dans la cellule.

7. Application : étalonnage d'une source de $^{241}\text{AmBe}$

Une source de $^{241}\text{AmBe}$ a été étalonnée dans l'installation rénovée du LNE-LNHB. La source est incluse dans une enveloppe en acier inoxydable, de diamètre 19,1 mm et de longueur 48,6 mm. Les modèles développés sous MCNPX et FLUKA ont été adaptés à cette source, en décrivant sa géométrie et en utilisant une émission volumique à partir du spectre décrit dans la norme ISO 8529-1. Les sections efficaces utilisées sont celles de la bibliothèque ENDF/B-VII.0.

Le rendement du bain retenu est la moyenne arithmétique des rendements obtenus avec les deux codes. En l'absence d'argument physique pour privilégier un code plutôt qu'un autre, nous avons considéré qu'ils avaient le même poids statistique et que le résultat pouvait être décrit par une loi de probabilité uniforme. L'incertitude type retenue est donc dans ce cas la différence entre ces deux rendements divisée par $\sqrt{2}$. Le rendement du bain obtenu est de $0,423\ 0(22)$. Les incertitudes statistiques liées au calcul Monte-Carlo sont négligeables devant l'incertitude liée au code utilisé.

L'activité en ^{56}Mn de la solution a été mesurée d'une part par coïncidences Tcherenkov-gamma et d'autre part d'après le comptage γ dans la boucle, étalonné d'après une mesure primaire d'activité hors-ligne. Dans les deux cas, le rendement du bain est de $0,423\ 0(22)$. Pour la méthode Tcherenkov-gamma, le débit d'émission obtenu

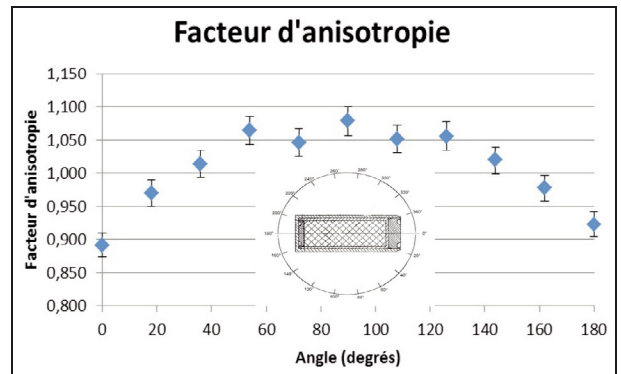


Fig. 19. – Facteur d'anisotropie de la source.

est de $(2,46(12)) \times 10^7 \text{ s}^{-1}$ et pour la méthode du comptage γ étalonné, de $(2,32(4)) \times 10^7 \text{ s}^{-1}$. Ces deux valeurs sont compatibles mais on constate que l'incertitude obtenue avec le comptage Tcherenkov-gamma en ligne est trois fois supérieure à celle obtenue avec le compteur γ étalonné. Cette différence d'incertitude est due, d'une part, au faible taux de comptage des voies « γ » et coïncidence pour la mesure en ligne et, d'autre part, à l'incertitude d'extrapolation de la méthode des coïncidences. On voit donc que l'un des axes d'amélioration de la méthode de mesure en ligne est l'augmentation des rendements des détecteurs.

Le facteur d'anisotropie de cette source a été mesuré dans un plan contenant l'axe principal. Les résultats apparaissent sur la figure 19. La compensation de la diffusion des neutrons dans la casemate de mesure a été effectuée grâce à la méthode du cône d'ombre. Pour chaque point de mesure, la contribution des neutrons diffusés est mesurée en intercalant un absorbeur « cône d'ombre », entre la source et le détecteur.

8. Perspectives

L'étude effectuée sur la modélisation du bain a montré qu'il subsistait des causes d'incertitude notables : d'une part, du fait des incertitudes des sections efficaces disponibles dans les banques de données et, d'autre part, du fait de la disparité des résultats issus des codes de calcul. S'il est difficile de progresser sur le premier point, un consensus pourra être recherché au niveau international, notamment lors des réunions du Comité Consultatif des Rayonnements Ionisants Section 3 (CCRI-III), sur les banques de données optimales. L'étude a montré qu'il était nécessaire de valider expérimentalement les calculs selon la méthode de Monte-Carlo. Cette validation est en cours au LNE-LNHB, en utilisant la méthode relative décrite en fin du paragraphe 4 de cet article, mais d'autres possibilités vont également être explorées, en mesurant l'émission des rayonnements γ de capture de l'hydrogène et du manganèse.

L'amélioration de la mesure en ligne de l'activité en ^{56}Mn du bain fait également l'objet d'une étude au LNE-LNHB. Les voies explorées consistent d'une part à

améliorer le rendement des détecteurs et d'autre part à améliorer la procédure d'extrapolation des coïncidences Tcherenkov-gamma. Une modélisation fine de l'interaction rayonnement-matière et de l'émission de lumière dans la cellule est en cours, afin de modéliser le comportement de la courbe d'extrapolation en fonction du rendement des détecteurs optiques.

On peut souligner que le NPL (laboratoire national de métrologie du Royaume-Uni) développe également un système de mesure en ligne d'activité de ^{56}Mn , utilisant le principe de mesure par coïncidences Tcherenkov-gamma, dans le cadre d'une coopération avec le LNE-LNHB.

Deux comparaisons internationales sont prévues pour valider le système de mesure du LNE-LNHB : une comparaison bilatérale avec le NPL, pour la mesure d'une source de ^{252}Cf et une comparaison internationale sous l'égide du CCRI(III), avec le NPL, le CIAE (Chine) et l'ENEA (Italie). Cette comparaison sera traçable, via le NPL, à la comparaison internationale CCRI(III) K9 AmBe-1. L'organisation pratique de ces comparaisons se heurte actuellement à l'agrément des conteneurs de transport de source par l'Autorité de Sureté Nucléaire (ASN) française.

9. Conclusions

La modernisation de l'installation de mesure de débit d'activité de source de neutrons du LNE-LNHB permet d'effectuer ces mesures avec toutes les garanties de sûreté et de radioprotection. L'étude de la modélisation du rendement du bain et le développement d'une nouvelle méthode de mesure en ligne de l'activité de ^{56}Mn a permis de mieux appréhender les sources d'incertitude de la méthode et de se passer d'une phase d'étalonnage du bain, utilisant une source de ^{56}Mn de forte activité. Des études supplémentaires sont néanmoins nécessaires pour améliorer les performances de cette mesure en ligne et pour valider expérimentalement les codes de calcul. Ces développements font de projets de recherche en cours au LNE-LNHB.

Références

- [1] Norme ISO/DIS 8529-1, 2000, « Rayonnements neutroniques de référence ».
- [2] O'NEAL R.D. et SCHARFF-GOLDHABER G., "Determination of Absolute Neutron Intensities", *Phys. Rev.*, **56**, R368, 1942.
- [3] CAPGRAS A., CLÉMENT C. et SUEUR M., « Étalonnage d'une source de ^{252}Cf (comparaison interlaboratoire) », *Bulletin du BNM*, **30**, 1977.
- [4] HOFFMANN A., JEANPIERRE F., KAVENOKY A., LIVOLANT M. et LORAIN H., « APOLLO : code multigroupe de résolution de l'équation du transport pour les neutrons thermiques et rapides », Note CEA-N-1610, 1972.
- [5] WESTCOTT C.H., "Effective cross section values for well-moderated thermal reactor spectra", *Technical Report*, CRRP-960, Atomic Energy of Canada Ltd., Chalk River, Ontario, Canada, 1958.
- [6] MURPHEY W.M., "The correction factor for fast neutron reactions on sulfur and oxygen in the manganous sulfate bath calibration of neutron sources", *Nucl. Instrum. Methods*, **37**, 1965, 13-21.
- [7] SMITH J.R., "The ^{252}Cf $\bar{\nu}$ discrepancy and the sulfur discrepancy", *Nuclear Cross Sections for Technology : Proceedings of the International Conference on Nuclear Cross Sections for Technology*, University of Tennessee, Knoxville, TN, 594, 1979, 22-26.
- [8] AXTON E.J. et BARDELL A.G., "Re-evaluation of Neutron Source Emission Rates Measured at the National Physical Laboratory", *Metrologia*, **18**, 1982, 97-102.
- [9] AXTON E.J., BARDELL A.G., FELGATE S.J. et LONG E.M.R., "The Ratio of the Thermal Neutron Capture Cross-Sections for Hydrogen and Manganese and its Impact on the Measurement of Neutron Source Emission Rates by Manganese Bath Techniques", *Metrologia*, **21**, 1985, 181-191.
- [10] RSICC, "MCNPX – A general Monte-Carlo n-particle transport code", version 2.5., 2005.
- [11] AGOSTINELLI S. *et al.*, "GEANT4, a simulation toolkit", *Nucl. Instrum. Methods Phys. Res. A*, **506**, 2003, 250-303.
- [12] BATTISTONI G. *et al.*, "The FLUKA code : description and benchmarking. *Ame. Institute Phys. Conference Proceedings*, **896**, 2007, 31-49.
- [13] BARDELL A.G., BURKE M., HUNT J.B., TAGZIRIA H. et THOMAS D.J., "Anisotropy of emission from radionuclide neutron sources. *NPL Report CIRM24*, 1998.
- [14] CARLSON A.D. *et al.*, "International Evaluation of Neutron Cross Section Standards, *Nucl. Data Sheet.*, **110**, 2009, 3215-3324.
- [15] CHARTIER J.-L. et CASSETTE Ph., "Problem 5 : manganese bath calibration facility", *CONRAD Work Package 4 Proceedings of the International Workshop on Uncertainty Assessment in Computational Dosimetry*, 2007.
- [16] GIORGINIS G., KHRYACHKOV V., CORCALIUC V. et KIEVETS M., "The cross section of the $^{16}\text{O}(n,\alpha)^{13}\text{C}$ reaction in the MeV energy range", *International Conference on Nuclear Data for Science and Technology*, 2007.
- [17] CHADWICK M. *et al.*, "ENDF/B-VII.0 : next generation evaluated nuclear data library for nuclear science and technology", *Nucl. Data Sheet.*, **107**, 2006, 2931-3060.
- [18] LEMRANI R. *et al.*, "Low energy neutron propagation in MCNPX and GEANT4", *Nucl. Instrum. Methods Phys. Res. A*, **560**, 2006, 454-459.
- [19] YUNG-SHUN YEH, "Simulating neutron propagations with FLUKA, GEANT4 and MCNP", *IEEE Nuclear Science Symposium Conference Record*, 2007.
- [20] MENDOZA E. *et al.*, "Low energy neutrons in Geant4", *N-ToF Meeting Proceedings*, 2011.

- [21] MENDOZA E. et CANO-OTT D., "New neutron cross section libraries for GEANT4", *Proceedings of the 6th Geant4 Space Users Workshop*, 2009.
- [22] OGHEARD F., « Développement d'un système de mesure directe du débit d'émission de sources neutroniques », Thèse de doctorat de sciences, Université Paris Sud, 11 septembre 2012.
- [23] BÉ M.-M., CHISTÉ V., DULIEU C., BROWNE E., CHECHEV V., KUZMENKO N., HELMER R., NICHOLS A., SCHÖNFELD E. et DERSCH R., "Table of Radionuclides", *Monographie BIPM-5*, 2004.
- [24] KNOLL G.F., "Radiation detection and measurements", *Wiley*, 1999.
- [25] JELLEY J.V., "Cerenkov Radiation and Its Applications". *Pergamon Press*, 1958.
- [26] DAI X., ROLLIN E., BELLERIVE A., HARGROVE C., SINCLAIR D., MIFFLIN C. et ZHANG F., "Wavelength shifters for water Cherenkov detectors", *Nucl. Instrum. Methods Phys. Res. A*, **589**, 2008, 290-295.

Article reçu le 9 décembre 2013, version révisée reçue le 3 décembre 2014.