

République Algérienne Démocratique et Populaire
Ministère de l'Enseignement Supérieur et de la Recherche Scientifique
Université des Sciences et de la Technologie Houari Boumediene
Faculté de Physique



Mémoire

Présenté pour l'obtention du diplôme de **MAGISTER**

En **PHYSIQUE**

Spécialité : **Sciences Nucléaires**

Par : Mme **TAIBOUNI Nabila** (Epe **MEDOUR**)

Sujet :

**Simulation et optimisation au moyen du Code Monté Carlo (MCNP5)
d'un dispositif expérimental d'analyse d'échantillons organiques
par la méthode de rétrodiffusion neutronique**

Soutenu publiquement le 13/07/2010 devant le Jury composé de :

Mr. Arezki AMOKRANE

Mr. Zahir IDIRI

Mr. Mohamed BELGAID

Mr. Ammar HERRATI

Mr. Mohamed Amine BENAMAR

Professeur à l'USTHB

Maître de Recherche A au CRNA

Professeur à l'USTHB

Chargé de Recherche au CRNA

Maître de Conférence A à l'USDB

Président

Directeur de mémoire

Examineur

Examineur

Examineur

بِسْمِ اللَّهِ الرَّحْمَنِ الرَّحِيمِ وَ الْحَمْدُ لِلَّهِ رَبِّ الْعَالَمِينَ
و الصَّلَاةُ وَ السَّلَامُ عَلَى نَبِيِّنَا مُحَمَّدٍ خَيْرِ الْخَلْقِ أَجْمَعِينَ

**Etant convaincue d'être incapable de concilier « famille » et « études » ;
Je remercie Dieu qui m'a soufflé le courage de parvenir au bout de ce modeste travail.**

**Mon Dieu tout Puissant ;
Merci pour toutes tes bontés et Pardon pour toutes nos offenses.**

A la mémoire
de mon père bien-aimé - رحمه الله -
qui m'a tout appris de la vie et des gens, et m'a finalement montré la voie.
Puisse Dieu l'entourer de sa miséricorde.

Je dédie ce modeste travail,

A mon fils qui a participé depuis le tout début à ce projet et qui a le plus donné dans cette aventure.

A ma fille qui m'a toujours soutenue et permis d'avancer, je salue sa patience.

A mon mari pour sa compréhension et pour avoir subi toutes mes humeurs.

A ma mère, ma sœur et mes frères.

A ma belle-mère.

Remerciements

Je tiens à exprimer mes remerciements à Monsieur AMOKRANE, Professeur à l'USTHB, pour avoir accepté d'être président du jury de ce mémoire.

Je remercie mon directeur de mémoire, Monsieur IDIRI, Maître de Recherche A au CRNA, qui m'a fait confiance en me proposant ce sujet, m'a accueillie dans son équipe et a encadré mon travail.

Je remercie Monsieur BELGAID, Professeur à l'USTHB, Monsieur HERRATI, Chargé de Recherche au CRNA et Monsieur BENAMAR, Maître de Conférence A à l'USDB, qui ont accepté de rapporter et de juger ce mémoire.

Je tiens également à associer à mon travail toutes les personnes qui m'ont soutenue et conseillée durant ces longues années :

Un remerciement tout particulier à Monsieur MOULAY, Chef du Département de Physique à l'ENS – Kouba, pour son soutien et sa participation à l'aboutissement de ce travail.

Une pensée reconnaissante pour feu Monsieur ZAOUI qui m'a encouragée et soutenue dans ce projet.

Un grand merci à mes collègues Hamid et Mounir pour leur précieuse aide.

Je remercie toute l'équipe de la DTN au CRNA qui m'a chaleureusement accueillie au laboratoire :

Monsieur BEDDEK, pour ses précieux conseils,

Naima, pour son aide et sa participation à ce travail,

Monsieur Azbouche, Monsieur Bellamri et Monsieur Boukandoura pour leurs encouragements,

Amel et Samira, pour leur soutien et leur amitié,

Toute ma reconnaissance à mes bons amis pour leur confiance:

Samia et Karima, pour leur amitié et leur précieuse aide de tous les moments,

Khelifa, pour son aide et sa participation à ce travail,

Salah, pour son soutien, son aide et ses conseils,

Habiba, pour sa bonté et sa sincère amitié,

Houria Boutalbi, pour son aide.

Enfin, je remercie tous ceux qui ont contribué de près ou de loin à l'aboutissement de ce travail.

Résumé :

La technique de rétrodiffusion neutronique est une méthode d'analyse de la matière organique. Elle connaît un usage croissant grâce à la disponibilité des sources de neutrons compactes et portatives. Actuellement, elle est largement utilisée dans l'industrie du fait de sa rapidité, sa précision dans les mesures ainsi que la possibilité de son application sur site (in-situ) et en temps réel (on-line).

Basée sur les phénomènes de modération et de rétrodiffusion des neutrons, cette technique nucléaire permet de déterminer la concentration de l'hydrogène et sert aussi à mesurer le taux d'humidité contenu dans divers matériaux.

Le dispositif expérimental qui a été développé pour l'application de cette méthode est principalement constitué d'un bloc réflecteur en polyéthylène dans lequel est insérée la source neutronique (Am-Be) et d'un détecteur de neutrons.

L'objectif de notre étude étant la simulation et l'optimisation de ce dispositif, nous avons utilisé pour sa modélisation le code de calcul Monte Carlo (MCNP5) du transport de neutrons et de photons.

La validation des résultats de simulation a été effectuée au niveau de la division des techniques nucléaires du Centre de Recherche Nucléaire d'Alger (CRNA), par des mesures expérimentales du flux moyen des neutrons thermiques rétrodiffusés par un échantillon d'eau. A cet effet, deux techniques de mesure ont été utilisées: le comptage direct à l'aide du détecteur à gaz (^3He) ainsi que la méthode passive des feuilles d'activation.

Une fois la modélisation validée, nous avons effectué des calculs avec le code MCNP5 afin d'optimiser le dispositif expérimental d'analyse. Nous avons déterminé ainsi, les dimensions optimales des composants du dispositif (réflecteur et porte échantillon) en tenant compte de la contrainte de rester dans les limites réglementaires de doses en neutrons et en gammas, fixées par les normes internationales (Iso). Nous avons également étudié la réponse du dispositif pour d'autres matériaux réflecteurs tels que la paraffine et le plexiglas.

Enfin, nous avons appliqué la technique de rétrodiffusion neutronique à l'analyse des échantillons organiques par la simulation du flux de neutrons et l'établissement des courbes de calibration pour la teneur en hydrogène et la détermination du rapport (C+O)/H. Nous avons comparé les résultats de simulation aux mesures expérimentales effectuées dans le cadre d'une étude antérieure.

Sommaire:

Introduction générale.....	01
Première Partie : Théorie	
1. Eléments de neutronique.....	03
1.1. Le neutron.....	04
1.2. Les réactions induites par les neutrons.....	05
1.2.1. La diffusion élastique	06
1.2.2. La capture radiative	06
1.2.3. La capture non radiative	07
1.2.4. La fission.....	07
1.2.5. La diffusion inélastique	07
1.2.6. Les réactions de capture avec émission de neutrons	08
1.3. Les sources de neutrons	09
1.3.1. Les réacteurs nucléaires	09
1.3.2. Les accélérateurs de particules chargées	09
1.3.3. Les sources isotopiques de neutrons	10
1.3.3.1. Les sources à fission spontanée	10
1.3.3.2. Les sources neutroniques des réactions (α , n)	10
1.3.3.3. Les photo-sources des réactions (γ , n).....	11
1.4. L'interaction neutron-matière	12
1.4.1. La section efficace	12
1.4. 2. La densité, le flux et le taux de réaction neutroniques.....	13
1.4.3. Le ralentissement des neutrons	14
1.5. La dosimétrie des neutrons	16
1.5.1. La dose absorbée D	16
1.5.2. L'équivalent de dose H	16
1.5.3. Les normes internationales en radioprotection	17
2. La méthode Monté Carlo pour le calcul du transport des neutrons	20
2.1. Origine et intérêt de la méthode Monté Carlo	20
2.2. La modélisation par la méthode Monté Carlo	22
2.3. Les codes de calcul Monté Carlo	23
2.4. Le code MCNP5 (Monte Carlo N Particles)	24
2.4.1. Conception du code MCNP5 et paramètres de calcul	24
2.4.2. Structure du fichier « Input »	26
2.4.2.1. Définition des surfaces « SURFACE CARD».....	26
2.4.2.2. Définition des Cellules « CELLULE CARD ».....	28
2.4.2.3. Définition des données « DATA CARD ».....	29
2.5 Les techniques de réduction de variance	35
2.5.1 Simplification de la géométrie	35
2.5.2 Importances des cellules	35
2.5.3 Energie de coupure (Cut-off energy).....	36

Deuxième Partie : Matériels et Méthodes

3. Dispositif expérimental et Techniques de mesure	37
3.1. Les applications de la technique de rétrodiffusion neutronique	37
3.1.1. Détection de niveau et d'interfaces entre les liquides	38
3.1.2. Jauges à rétrodiffusion neutronique.....	38
3.1.3. Dosage du bitume dans les revêtements routiers	38
3.1.4. Jauge d'humidité	38
3.1.5. Analyse des solutions hydrogénées.....	39
3.1.6. Caractérisation de la matière organique.....	39
3.2. Le dispositif expérimental et principe de l'analyse par rétrodiffusion neutronique	39
3.3. Les techniques et instruments de mesure du flux neutronique.....	42
3.3.1. La méthode directe avec le détecteur à gaz (^3He)	42
3.3.1.1. Principe de détection des neutrons thermiques avec le détecteur à gaz	43
3.3.1.2. Caractéristiques du détecteur à gaz ^3He	43
3.3.2. Les feuilles d'activation associées à la spectrométrie Gamma.....	44
3.3.2.1. Principe de la méthode des feuilles d'activation pour le calcul du flux	45
3.3.2.2. Détection des gammas	46
4. Simulations au moyen du code Monté Carlo de transport de photons et de neutrons (MCNP5).....	50
4.1. Modélisation du dispositif expérimental par le code MCNP5	50
4.1.1. Description de la modélisation du système.....	50
4.1.2. Introduction des caractéristiques de la source.....	52
4.1.3. Composition atomique des matériaux	54
4.1.4. Spécification des résultats souhaités (tallies) et exécution du programme..	55
4.2. Validation de la modélisation du dispositif expérimental	56
4.2.1. Mesures expérimentales du flux de neutrons avec le détecteur (^3He).....	56
4.2.2. Mesures expérimentales du flux thermique par les feuilles d'activation....	59
4.2.3. Discussion et comparaison des résultats.....	64
4.2.4. Conclusion	64
4.3. L'optimisation du dispositif expérimental par simulation	65
4.3.1. Choix du matériau réflecteur	65
4.3.2. Détermination des dimensions optimales du réflecteur et de l'échantillon	67
4.3.3. Calcul de doses en neutrons et en gammas par simulation MCNP5	69
4.3.3.1. Calcul du débit d'équivalent de doses en neutrons	69
4.3.3.2. Calcul du débit d'équivalent de doses en gammas	70

5. Application de la technique de rétrodiffusion neutronique à l'analyse des échantillons organiques avec le code MCNP5	75
5.1. Principe de l'analyse par la méthode de rétrodiffusion neutronique	75
5.2. Détermination du volume optimal des échantillons organiques.....	76
5.3. Caractérisation de la matière organique	77
5.3.1. Détermination de la teneur en hydrogène des composés organiques.....	77
5.3.2. Etablissement de la courbe de calibration pour la détermination du rapport (C+O)/H	78
5.3.3. Comparaison des résultats du calcul MCNP5 aux résultats expérimentaux tirés de la littérature.....	79
 Conclusion générale	 80
Perspectives.....	81
Références bibliographiques.....	82

Première Partie :

Théorie

Introduction générale:

La technique de rétrodiffusion neutronique est une méthode d'analyse de la matière organique. Elle est largement utilisée dans l'industrie du fait de sa rapidité, sa précision dans les mesures ainsi que la possibilité de son application sur site (in-situ) et en temps réel (on-line).

Basée sur les phénomènes de modération et de rétrodiffusion des neutrons, cette technique nucléaire permet de déterminer la concentration de l'hydrogène et sert aussi à mesurer le taux d'humidité contenu dans divers matériaux.

En effet, lorsque les neutrons rapides pénètrent dans un milieu hydrogéné, ils sont ralentis par collisions avec les noyaux atomiques (essentiellement l'hydrogène) de ce milieu pour être ensuite thermalisés. Le nombre de neutrons thermiques est (avec une bonne approximation), proportionnel à la concentration de l'élément hydrogène (H) dans ce milieu.

L'objectif de notre étude est la simulation et l'optimisation d'un dispositif expérimental d'analyse par la méthode de rétrodiffusion neutronique. A cet effet, nous avons utilisé pour sa modélisation le code de calcul Monte Carlo (MCNP5) du transport de neutrons et de photons.

Le dispositif expérimental qui a été développé [01] pour l'application de cette méthode est principalement constitué d'un bloc réflecteur en polyéthylène dans lequel est insérée la source neutronique (Am-Be) et d'un détecteur de neutrons.

Le principe de la technique de rétrodiffusion neutronique consiste à irradier un échantillon organique avec la source de neutrons rapides placée à l'extérieur de l'échantillon. Ces neutrons sont thermalisés dans l'échantillon et rétrodiffusés vers un détecteur de neutrons. La mesure du flux de neutrons thermiques rétrodiffusés permet alors d'évaluer la concentration d'hydrogène dans les échantillons à analyser.

De la même manière, on peut doser la matière organique (riche en hydrogène) dans divers matériaux. Nous citerons l'application phare de cette méthode, à savoir le dosage du bitume dans les bétons bitumineux utilisés dans les revêtements routiers.

Le présent mémoire est structuré en cinq chapitres. Nous rappelons dans un premier chapitre, les bases théoriques nécessaires à la compréhension des mécanismes de l'interaction des neutrons avec la matière ainsi que leur ralentissement dans le milieu. Nous donnons aussi quelques notions élémentaires de dosimétrie indispensables à toute manipulation utilisant les neutrons.

Dans le deuxième chapitre, nous décrivons les méthodes de simulation Monté Carlo. L'accent est mis sur le code utilisé dans ce travail, à savoir le code de calcul MCNP5 [11] pour le transport des rayonnements.

Ensuite, nous présentons dans le troisième chapitre, le principe de l'analyse des échantillons organiques par la méthode de rétrodiffusion neutronique. Nous décrivons le dispositif expérimental et les techniques de mesure du flux neutronique utilisées ainsi que les différents instruments de détection.

La modélisation du dispositif expérimental ainsi que la simulation des expériences au moyen du code MCNP5 font l'objet du quatrième chapitre. Nous présentons les résultats de la validation expérimentale puis l'optimisation du dispositif expérimental d'analyse.

Enfin, le cinquième chapitre est une application de la technique de rétrodiffusion neutronique à l'analyse des échantillons organiques par simulation.

Chapitre 1 :

Eléments de neutronique

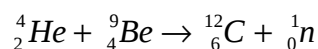
Introduction :

L'histoire de la physique nucléaire débute en 1896 avec la découverte de la radioactivité par Henri Becquerel (1852-1908), intrigué par des plaques photographiques voilées bien qu'à l'abri du soleil dans un tiroir (il se trouve qu'elles avaient été mises au voisinage d'échantillons d'uranium) [02].

Parmi les événements historiques les plus importants, nous citons:

-1932 : mise en évidence du neutron par James Chadwick (1891-1974) :

En bombardant une cible de béryllium avec des particules α émises par une source de polonium, il constate l'émission d'une particule neutre, de masse voisine de celle du proton, à laquelle il donne le nom de **neutron** :



-1934 : découverte de la radioactivité artificielle par Frédéric Joliot (1900-1958) et son épouse Irène Curie (1897-1956) :

Par l'action des particules alpha sur l'aluminium 27, un neutron et un atome de phosphore 30 sont produits, ce dernier se désintègre en émettant un beta avec une période de deux minutes et demie.

-1934-1938 : étude des réactions induites par les neutrons :

Dès que l'on sut produire des neutrons, à la suite des travaux de Chadwick notamment, les physiciens s'intéressèrent aux réactions entre ces particules et les divers éléments du tableau de Mendeleïev.

N'ayant pas de charge électrique, le neutron s'approche facilement des noyaux des atomes, et l'expérience montre que la capture du neutron est assez fréquente. On obtient alors un isotope du noyau initial qui, parfois, est radioactif et se transforme en un autre élément généralement par décroissance beta.

Fermi, en particulier, s'intéressait à ces réactions et se disait qu'en bombardant, par des neutrons, l'uranium — le dernier élément du tableau de Mendeleïev, de numéro 92 —, il devrait ainsi créer de nouveaux éléments artificiels prolongeant la liste des éléments connus.

1.1. Le neutron:

Le neutron est une particule électriquement neutre du type fermion (spin $s=1/2$), de masse au repos $939.5 \text{ MeV}/c^2$. A l'état libre, il est instable avec une demi-vie de 12 minutes.

Il se désintègre selon la réaction: $n \rightarrow p + e + \bar{\nu}$

Classification des neutrons :

Un grand nombre de réactions nucléaires produisent des faisceaux de neutrons. Les neutrons, à la différence des particules chargées, ne peuvent être accélérés mais peuvent être ralentis par chocs successifs sur des noyaux généralement légers tel que l'hydrogène ou le graphite. Ce processus de ralentissement est appelé modération et les noyaux « ralentisseurs » constituent le modérateur.

Les neutrons sont généralement classés en fonction de leur énergie [02, 08] comme suit :

Tableau 1.1 : Classification des neutrons en fonction de leur énergie [08]

Classification	Énergie
Neutrons thermiques	$0,025 \text{ eV} \leq E_n \leq 0,4 \text{ eV}$
Neutrons épi-thermiques	$0,4 \text{ eV} < E_n \leq 100 \text{ eV}$
Neutrons intermédiaires	$100 \text{ eV} < E_n \leq 200 \text{ KeV}$
Neutrons rapides	$200 \text{ KeV} < E_n \leq 10 \text{ MeV}$
Neutrons relativistes	$E_n \geq 10 \text{ MeV}$

-Les neutrons thermiques : sont les neutrons qui, après ralentissement ont une énergie cinétique leur permettant d'être en équilibre thermique avec les noyaux du milieu modérateur. Leur spectre est décrit par la distribution de Maxwell-Boltzmann. La densité des neutrons en fonction de la vitesse est donnée alors par l'expression :

$$n(v)dv = \frac{4n_{th}v^2}{\sqrt{\pi}} \left(\frac{m}{2kT}\right)^{\frac{3}{2}} e^{-\frac{1}{2}\frac{mv^2}{kT}} dv \quad \dots (1.1)$$

où : n_{th} est la densité neutronique totale, m la masse du neutron,
 k la constante de Boltzmann et T la température absolue.

L'énergie cinétique la plus probable des neutrons thermiques est alors donnée par:

$$E_n = k \times T = \frac{1}{2}mv^2 \quad \dots (1.2)$$

Elle correspond à une vitesse des neutrons de 2200 (m/s), et vaut 0,0253 eV à la température ambiante ($T=20^\circ\text{C}$).

L'énergie cinétique moyenne des neutrons se situe autour de cette valeur la plus probable. La limite supérieure de l'énergie au-dessous de laquelle ils sont considérés comme des neutrons

thermiques est de 0,4 eV, cette valeur correspond au changement remarquable (résonnance) observé à la section efficace d'absorption du cadmium (Cd).

-Les neutrons épi-thermiques : sont les neutrons qui ont une énergie allant de 0,4 eV (l'énergie de coupure du cadmium) jusqu'à environ 100 eV.

-Les neutrons intermédiaires : sont les neutrons qui résultent des collisions entre les neutrons rapides et les noyaux des éléments du matériau considéré. Ils sont situés dans la gamme d'énergie entre 100 eV et 200 KeV et leur spectre $f(E_n)$ est proportionnel à $1/E_n$.

- Les neutrons rapides : sont ceux dont l'énergie est supérieure à 200 KeV et toutes les sources de neutrons produisent des neutrons rapides.

1.2. Les réactions induites par les neutrons

Electriquement neutre, le neutron est insensible aux champs électromagnétiques, c'est un excellent projectile pour pénétrer dans les noyaux et provoquer des réactions nucléaires (les interactions fortes à courte portée de l'ordre du Fermi).

En fait, compte tenu de la très faible proportion de volume occupé par le noyau par rapport au volume atomique, les chocs entre les neutrons et les noyaux sont peu probables. En conséquence, les neutrons comme les rayonnements gamma, sont beaucoup plus pénétrants que les particules chargées et peuvent traverser des épaisseurs importantes sans être arrêtés.

Dans les interactions des neutrons avec la matière [02, 05, 07], il convient de distinguer les différentes réactions : Certaines sont toujours possibles quel que soit le noyau-cible et quelle que soit l'énergie du neutron, ce sont **la diffusion élastique** et **la capture radiative** (avec émission de photons).

D'autres réactions sont le plus souvent à seuil, mais pas toujours, ce sont **la capture non radiative** (avec émission de particules chargées) ainsi que **la fission**.

Par ailleurs, les réactions qui sont toujours à seuil sont :

- **la diffusion inélastique** laissant le noyau résiduel dans un état excité après éjection du neutron (l'énergie seuil étant l'énergie de ce niveau excité)

- **les réactions de capture avec émission de particules:** le seuil étant l'énergie de liaison du neutron (ou particule) à prélever dans le noyau composé (formé après capture) pour le séparer.

Enfin, l'interaction du neutron avec la matière peut être parfaitement décrite par le modèle du noyau composé. Dans ce modèle, le neutron incident est absorbé par le noyau cible pour former un noyau composé dans un état excité. Ce noyau composé se désintègre en éjectant une particule ou un gamma avec en plus un noyau résiduel. A l'équilibre, l'énergie apportée par le neutron capturé est distribuée uniformément entre les nucléons présents dans le noyau composé.

1.2.1. La diffusion élastique :

Le neutron incident est dévié de sa trajectoire initiale, l'interaction se réduit à un simple transfert d'énergie cinétique. L'énergie totale du système neutron-noyau étant conservée, une partie de l'énergie cinétique du neutron incident est transférée au noyau cible sous forme d'énergie de recul (figure 1.1).

La nature des particules est conservée, le noyau de recul reste dans son état fondamental. La diffusion élastique est schématisée par :

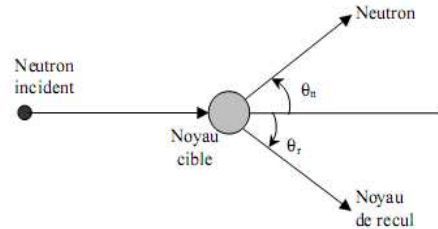
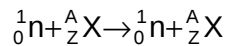


Figure 1.1 : Diffusion élastique d'un neutron sur un noyau

Ce type d'interaction constitue le principal mécanisme de perte d'énergie du neutron dans les domaines intermédiaire et rapide. L'énergie du neutron diffusé dépend de l'angle de diffusion.

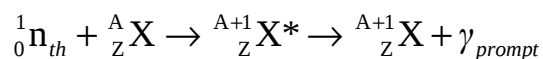
L'énergie maximale transférée est :
$$E_{\text{max transférée}} = \frac{4mM}{(m+M)^2} E_n \dots (1.3)$$

m étant la masse du neutron, M la masse du noyau ralentisseur et E_n l'énergie du neutron incident. La perte d'énergie moyenne du neutron est donc d'autant plus grande que le noyau cible est léger. La valeur maximale de cette perte d'énergie est atteinte pour l'hydrogène qui représente le meilleur ralentisseur pour les neutrons rapides. La raison physique est que, pour les atomes lourds, le cortège électronique prend de plus en plus de volume par rapport aux noyaux, qui se trouvent de plus en plus espacés, ce qui fait que la probabilité d'interaction du neutron avec le noyau devient plus faible et que les neutrons rapides sont très pénétrants. De plus, il est plus facile de transférer de l'énergie à un noyau d'autant qu'il est plus léger.

1.2.2. La capture radiative :

La capture neutronique radiative s'effectue avec la formation d'un noyau composé par l'absorption d'un neutron incident. Le noyau ainsi formé possède une énergie d'excitation élevée qui est la somme de l'énergie cinétique du neutron incident et de son énergie de liaison dans le noyau composé. La désexcitation de ce noyau peut s'effectuer par l'émission d'un seul photon très énergétique appelé gamma prompt, ou progressivement par passage par des niveaux d'excitation intermédiaires, avec émission de plusieurs photons caractéristiques (on parle alors de cascade).

La réaction de capture radiative (dont la probabilité est la plus élevée pour les neutrons thermiques) est:



1.2.3. La capture non radiative :

Dans ce type d'interaction, le noyau composé formé par l'absorption du neutron incident émet une particule chargée. Ces réactions (du type (n,p), (n,α)...) se produisent plus facilement avec les noyaux légers qui opposent à l'émission d'une particule chargée une barrière coulombienne moins élevée.

Les neutrons qui provoquent ces réactions possèdent généralement des énergies élevées, à l'exception des réactions $^{10}\text{B}(n,\alpha)^7\text{Li}$, $^6\text{Li}(n,t)^4\text{He}$ et les réactions $^3\text{He}(n,p)^3\text{H}$.

Ces réactions sont schématisées par : ${}_Z^AX + {}_0^1n \rightarrow {}_{Z-z}^{A-a+1}Y + {}_z^ab + Q$

Q étant la chaleur de la réaction en MeV et 'b' la particule secondaire chargée (p, d, α, t...).

1.2.4. La fission :

La fission est une réaction d'absorption particulière. Elle peut être provoquée, assez facilement, par des neutrons d'énergie cinétique très faible sur certains noyaux lourds appelés noyaux fissiles tel que l'uranium 235 ou le plutonium 239.

La réaction de fission est une source d'énergie très élevée (de l'ordre de 200 MeV), elle est accompagnée par l'émission d'un ou de plusieurs neutrons rapides.

Sous certaines conditions, lorsqu'un neutron est absorbé par ces noyaux lourds, il y a formation d'un noyau composé qui se scinde généralement en deux fragments plus ou moins égaux. Ces noyaux sont appelés produits de fission (PF). La réaction de fission de l'uranium 235 par exemple est donnée par : ${}_0^1n + {}_{92}^{235}\text{U} \rightarrow {}_{Z_1}^{A_1}\text{PF}_1 + {}_{Z_2}^{A_2}\text{PF}_2 + \bar{\nu} + Q$

où $\bar{\nu}$ représente le nombre moyen de neutrons émis au cours de la fission ($\bar{\nu} \approx 2,5$).

Les neutrons obtenus par fission ont un spectre en énergie très large, qui peut s'étendre du domaine thermique jusqu'à plusieurs MeV.

1.2.5. La diffusion inélastique :

La diffusion inélastique s'effectue par l'absorption du neutron incident formant ainsi un noyau composé qui se désintègre en émettant un neutron et laissant le noyau résiduel dans un état excité. Ce noyau revient à l'état fondamental par l'émission d'un ou de plusieurs photons.

Cette réaction est schématisée par : ${}_Z^AX + {}_0^1n \rightarrow {}_Z^{A+1}X^* \rightarrow {}_Z^AX + {}_0^1n + \gamma$

Dans cette réaction, la quantité de mouvement et l'énergie totale sont conservées, mais l'énergie cinétique du système ne l'est plus. En effet, une partie de l'énergie cinétique du neutron incident est cédée au noyau sous forme d'énergie d'excitation.

La diffusion inélastique étant à seuil, le neutron doit posséder une énergie cinétique suffisante pour exciter le noyau au moins jusqu'au premier niveau. Le seuil de la diffusion inélastique est donné par :

$$E_s = E^* \left(\frac{M_n + M_x}{M_x} \right) \dots (1.4)$$

E^* étant l'énergie du niveau excité en MeV, M_n et M_x sont respectivement les masses du neutron et du noyau X.

On donne l'énergie seuil de diffusion inélastique pour certains éléments dans le tableau (1.2):

Tableau 1.2 : Seuils d'énergie de diffusion inélastique de quelques éléments [05]

élément	Seuil de diffusion inélastique (MeV)
C	4,40
O	6,10
Al	0,85
Fe	0,85
Pb	0,60

Notons aussi que la section efficace de diffusion inélastique augmente généralement avec l'énergie du neutron incident et avec la masse du noyau cible.

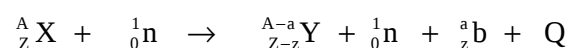
1.2.6. Les réactions de capture avec émission de neutrons :

La désexcitation du noyau composé s'effectue par l'émission de neutrons. L'énergie de liaison moyenne des neutrons étant supérieure à 7.5 MeV dans la plupart des noyaux, ces réactions nécessitent généralement des seuils d'énergie des neutrons incidents supérieurs à 10 MeV, exception faite pour le ^9Be (où ce seuil est de 1.67 MeV):

$$E_s = \frac{M_x + M_n}{M_x} |Q| \dots (1.5)$$

E_s étant l'énergie cinétique seuil de neutron incident, Q la chaleur de réaction et M_n , M_x sont respectivement la masse du neutron et la masse du noyau cible.

Dans certaines réactions, il y a émission d'un neutron accompagné d'autres particules telles que les réactions (n, np) ou (n, nt) schématisées comme suit :



Q étant la chaleur de la réaction en MeV et 'b' la particule secondaire (p, t...).

1.3. Les sources de neutrons :

La production des neutrons provient principalement des réactions nucléaires, les trois types de sources utilisés en analyse sont les réacteurs nucléaires, les accélérateurs et les sources isotopiques.

1.3. 1. Les réacteurs nucléaires:

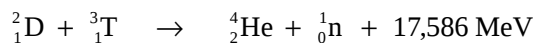
Les réacteurs nucléaires sont le siège de réactions en chaîne de fission produisant des neutrons à partir de certains noyaux lourds (fissiles). Ces neutrons produits ont une énergie pouvant aller jusqu'à 15 MeV avec une moyenne de 2 MeV [02, 03, 07].

Ces sources de neutrons sont extrêmement intenses, leur fluence varie entre 10^{12} et 10^{14} n/(cm²s).

1.3. 2. Les accélérateurs de particules chargées:

Les accélérateurs de particules chargées sont la source idéale pour produire des neutrons monocinétiques. Les neutrons fournis auprès de ces accélérateurs sont produits par des réactions nucléaires provoquées par l'impact des ions accélérés sur la cible. Les interactions entre ces ions et les noyaux des atomes de la cible produisent des neutrons dans toutes les directions (figure 1.2). L'énergie de ces neutrons émis dépend de la nature et de l'énergie des particules incidentes ainsi que des angles d'émission des neutrons. La sélection d'un angle particulier permet alors d'obtenir des neutrons quasi mono-énergétiques [04, 07].

Les principales réactions nucléaires exploitées pour générer des neutrons en raison de leurs bilans énergétiques favorables sont les suivantes :



L'énergie moyenne des neutrons émis est de 14,1 MeV dans la réaction D-T et de 2,45 MeV dans la réaction D-D.

Le flux de neutrons délivré est de l'ordre de 10^9 n/(cm²s) pour la réaction de fusion D-T, ils sont principalement dans la gamme des neutrons rapides et intermédiaires.

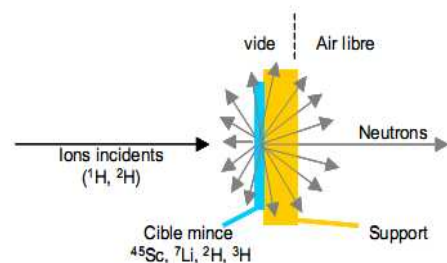


Figure 1.2 : Principe de production des neutrons dans un accélérateur

1.3.3. Les sources isotopiques de neutrons :

Les sources isotopiques de neutrons offrent le moyen de produire des neutrons par un mélange intime d'isotopes dont l'un au moins est un radioélément émetteur de rayonnement (alpha ou gamma), l'émission des neutrons se fait alors par réaction (α, n) ou (γ, n).

Les sources à fission spontanée sont aussi largement utilisées pour émettre des neutrons par fission spontanée.

L'avantage de ces sources est d'être transportable [02, 06], ce qui est particulièrement recherché pour des utilisations sur terrain (in-situ) et en temps réel (on-line).

1.3.3.1. Les sources à fission spontanée :

Parmi les sources à fission spontanée les plus intéressantes, nous citons l'élément californium (^{252}Cf), il représente une source de neutrons présentant des avantages certains (à savoir un bas bruit de fond gamma et des neutrons faciles à ralentir et thermaliser car ils possèdent une énergie moyenne relativement faible d'environ 2MeV), mais elle doit être renouvelée fréquemment en raison de sa période relativement courte (2.646 ans).

Elle délivre une fluence spécifique de l'ordre de 2×10^{12} (n/s.g), son spectre énergétique est présenté sur la figure (1.3).

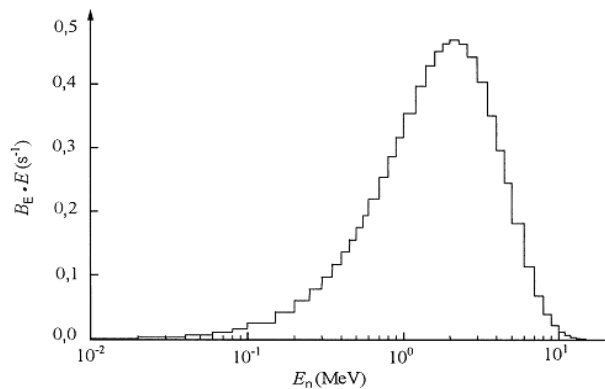
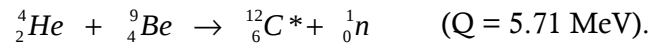


Figure 1.3 : Spectre énergétique d'une source ^{252}Cf [06]

1.3.3.2. Les sources neutroniques des réactions (α, n) :

Certains nucléides émetteurs alpha tels que le radium, le radon et le polonium peuvent provoquer des réactions (α, n) sur des éléments légers tels que le lithium, le béryllium, le bore, le fluor, l'oxygène ou l'aluminium. Ainsi, on mélange une poudre d'une source radioactive émettant des particules α , avec une poudre d'un sel de béryllium (ou bore ou lithium, mais les rendements sont inférieurs) qui est le siège de la réaction (α, n).

Une des réactions les plus rentables (donnant une fluence assez importante, de l'ordre de $10^6 \text{n/cm}^2 \cdot \text{s}$) est:



La désexcitation du ${}^{12}\text{C}^*$ s'accompagne de l'émission d'un gamma énergétique de 4,43 MeV.

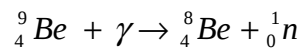
Les principales sources (α , n) utilisées sont : ${}^{239}_{94}\text{Pu} - \text{Be}$; ${}^{241}_{95}\text{Am} - \text{Be}$; ${}^{226}_{88}\text{Ra} - \text{Be}$.

L'intensité de ces sources (α , n) est généralement exprimée en termes d'activité du radionucléide produisant la particule α à l'origine de la réaction de production des neutrons.

Ces sources de périodes assez longues ont l'avantage d'être transportables, mais leurs émissions en neutrons sont assez faibles, ils varient entre 10^5 et 10^7 n/s (leurs énergies peuvent aller jusqu'à 10 MeV avec une énergie moyenne entre 3,5 MeV et 5,5 MeV).

1.3.3.3. Les photo-sources des réactions (γ , n):

Les sources radioactives émettrices de rayonnement γ énergétiques sont aussi utilisées pour produire des neutrons. En fait, certains éléments légers, comportant un neutron faiblement lié, peuvent l'émettre après excitation par un photon selon la réaction :



Les sources de neutrons portables usuelles sont constituées de la combinaison des radio-isotopes émetteurs γ tels que: ${}^{24}\text{Na}$, ${}^{56}\text{Mn}$, ${}^{72}\text{Ga}$, ${}^{88}\text{Y}$, ${}^{116}\text{In}$, ${}^{124}\text{Sb}$, ${}^{226}\text{Ra}$, ${}^{238}\text{Pu}$ ou ${}^{239}\text{Pu}$ avec le Be, B, Li ou D_2O . Elles sont dites photo-sources, les plus utilisées étant : ${}^{24}\text{Na}-\text{Be}$ et ${}^{38}\text{Cl}-\text{Be}$, elles sont caractérisées par une courte période et un rendement relativement faible.

Les sources (γ ,n) présentent des difficultés de manipulation en raison des taux d'émission gamma très élevés nécessaires pour obtenir des taux d'émission de neutrons suffisants pour des applications sur terrain (in-situ).

1.4. L'interaction neutron-matière:

L'une des caractéristiques les plus importantes pour l'étude de la réaction nucléaire est la notion de section efficace qui représente la probabilité pour que cette réaction ait lieu.

1.4.1. La section efficace:

La notion de section efficace est nécessaire pour quantifier le nombre de réactions résultant de l'interaction entre un flux de particules et une cible. Appelée aussi probabilité d'interaction, elle peut être «microscopique» quand elle est caractéristique du «noyau-cible» individuel, ou «macroscopique» quand elle caractérise un matériau contenant un grand nombre de noyaux-cibles [02].

- **La section efficace microscopique** : représente l'aire efficace traversée par le projectile, elle caractérise la probabilité d'interaction entre celui-ci et la cible. Elle est notée σ et s'exprime en cm^2 ou en barns ($1\text{barn}=10^{-24} \text{ cm}^2$).

Rappelons que pour les réactions induites par le neutron, nous parlons :

- de diffusion (scattering) : pour toute réaction re-émettant un neutron,
- d'absorption: pour toute réaction mettant fin au cheminement à l'état libre du neutron, soit :
 - par fission (induite) : pour une absorption conduisant à la fission du noyau composé, ou
 - par capture : pour toute autre absorption.

La section efficace totale est donc la somme des sections efficaces de diffusion et d'absorption : $\sigma_t = \sigma_s + \sigma_a \dots$ (1.6), et l'absorption regroupe, la fission et la capture : $\sigma_a = \sigma_f + \sigma_c \dots$ (1.7).

La section efficace de capture varie sensiblement avec l'énergie des neutrons et suit souvent la loi appelée communément loi en $1/v$ (v étant la vitesse des neutrons), en d'autres termes la section efficace est inversement proportionnelle à la vitesse. La validité de cette loi a été démontrée pour les neutrons thermiques.

Les sections efficaces de capture sont généralement tabulées pour une vitesse de 2200m/s (vitesse la plus probable v_0 des neutrons thermiques -Tableau 1.1-). Ces valeurs appelées sections efficaces thermiques sont notées σ_0 . Pour les noyaux réguliers dont la section efficace de capture suit la loi en $1/v$, celle-ci peut être déterminée pour n'importe quelle vitesse par la formule suivante :

$$\sigma(v) = \sigma_0 \frac{v_0}{v} \dots (1.8)$$

- La section efficace macroscopique et le libre parcours moyen :

Nous avons souvent besoin d'une autre grandeur physique caractérisant le matériau de la cible, c'est la section efficace macroscopique Σ de la substance considérée. Elle permet d'évaluer la probabilité d'interaction des particules incidentes avec la matière.

Cette grandeur est proportionnelle au nombre d'« obstacles » que le neutron est susceptible de rencontrer, donc au nombre n_c de noyaux par unité de volume (cm^3), elle s'exprime par :

$$\Sigma = n_c \cdot \sigma \quad (\text{en cm}^{-1}) \quad \dots (1.9)$$

où σ : est la section efficace microscopique.

D'autre part, le libre parcours moyen des neutrons est l'inverse de la section efficace macroscopique :

$$\lambda = 1/\Sigma \quad (\text{en cm}) \quad \dots (1.10)$$

Il représente la moyenne de la distance à laquelle se produit le premier choc. Il est de l'ordre du centimètre dans les matériaux usuels.

1.4. 2. La densité, le flux et le taux de réaction neutroniques:

- La densité neutronique :

La population des neutrons étant nombreuse, elle est traitée de façon statistique par la notion de densité. La densité neutronique n est le nombre de neutrons par unité de volume.

- Le flux neutronique :

Le nombre de neutrons qui traversent une surface (cm^2) par unité de temps (s) est appelé flux neutronique :

$$\Phi = n \cdot v \quad \dots (1.11)$$

où : v est la vitesse du neutron et n la densité neutronique.

- Le taux de réaction :

Le taux de réaction noté R représente le nombre d'interactions par unité de volume et par unité de temps :

$$R = n \cdot \Sigma \cdot v \quad \dots (1.12)$$

Le flux étant $\Phi = n \cdot v$, on exprime finalement le taux de réaction par la formule :

$$R = \Sigma \cdot \Phi \quad \dots (1.13),$$

1.4.3. Le ralentissement des neutrons :

Les sources neutroniques produisent toujours des neutrons rapides d'énergie au delà du MeV.

Quand ces neutrons pénètrent dans un milieu peu absorbant, ils perdent progressivement leur énergie, par des processus successifs de diffusion élastiques, inélastiques ou par les réactions nucléaires sur les noyaux du milieu ralentisseur (la diffusion élastique devenant tout de même le processus prédominant aux faibles énergies). Finalement, ces neutrons arrivent à un équilibre thermique (autour de 0,0253 eV) avec les atomes du milieu [05].

Pour thermaliser les neutrons, on utilise des ralentisseurs appropriés comme l'hydrogène, ou les substances riches de cet élément. Ce choix apparaît clairement dans l'expression de l'énergie des neutrons diffusés (1.14).

En effet, dans la diffusion élastique, l'énergie cinétique totale du neutron et du noyau cible reste inchangée après l'interaction. Durant celle-ci, les neutrons incidents cèdent une partie de leur énergie cinétique aux noyaux des atomes du milieu en produisant un noyau de recul qui reste dans un état fondamental. La relation entre l'énergie du neutron diffusé E_{out} et l'énergie de neutron incident E_{in} déterminée à partir des lois de conservation de la quantité de mouvement et de l'énergie s'exprime par :

$$E_{out} = \frac{1}{2} E_{in} [(1 - \alpha) \cos \theta_{cm} + 1 + \alpha] = E_{in} \left[\frac{1 + A^2 + 2A \cos \theta_{cm}}{(1 + A)^2} \right] \dots (1.14)$$

A est le rapport de la masse de la cible à la masse du neutron

θ_{cm} l'angle de diffusion dans le repère du centre de masse

α est appelé facteur de ralentissement, il ne dépend que des nombres de masse des particules :

$$\alpha = \left(\frac{A-1}{A+1} \right)^2 \dots (1.15)$$

On remarque ainsi que dans le cas d'une diffusion par un noyau d'hydrogène ($A = 1$), dont la masse est sensiblement égale à celle du neutron, on obtient $\alpha = 0$. Ceci signifie que le neutron peut transférer toute son énergie au cours d'une seule collision. De ce fait, l'hydrogène est un excellent modérateur.

Qualité du milieu ralentisseur :

Les paramètres suivants sont indispensables pour juger de la qualité du milieu modérateur.

- **La perte moyenne d'énergie** : exprime la perte d'énergie des neutrons au cours des chocs successifs, elle est donnée par la relation suivante:

$$\xi = 1 + \frac{\alpha}{1-\alpha} \text{Log}(\alpha) \dots (1.16)$$

On note que ξ est indépendant de l'énergie initiale, la perte moyenne d'énergie est la même à chaque choc. Elle est caractéristique de la masse du noyau diffusant.

Une valeur approchée plus simple de ξ lorsque $A \geq 10$ est donnée par:

$$\xi = \frac{2}{A+2/3} \quad \dots (1.17)$$

- **Le nombre de chocs au cours du ralentissement** : est noté n_{ch} et s'exprime par:

$$n_{ch} \cdot \xi = \text{Log} \left(\frac{E_0}{E_n} \right) = \text{Log} \left(\frac{E_0}{E_1} \right) + \text{Log} \left(\frac{E_1}{E_2} \right) + \dots \quad \dots (1.18)$$

E_0 est l'énergie initiale du neutron et E_n son énergie finale.

Le tableau (1.3) donne les valeurs de ξ et de n pour certains éléments et permet de comparer leur capacité à ralentir les neutrons:

Tableau 1.3 : Perte moyenne d'énergie ξ et nombre de chocs n pour certains éléments [05]

Substances	ξ	n_{ch}
H	1	18
D	0.72	25
He	0.4	43
Be	0.2	86
Graphite	0.158	114

- **Le pouvoir de ralentissement et le rapport de modération** :

Enfin, pour ralentir ou thermaliser les neutrons, le milieu doit être choisi de façon à ralentir efficacement les neutrons avec le plus petit nombre de chocs possible.

Pour cela, les noyaux du milieu modérateur doivent être légers, et la probabilité du choc assez importante (section efficace de diffusion Σ_s).

D'où la définition du **pouvoir de ralentissement** : $\xi \Sigma_s$.

De plus, le milieu diffuseur doit avoir une faible section efficace de capture Σ_a , d'où la définition du **rapport de modération** : $\xi \Sigma_s / \Sigma_a$

Ces deux quantités sont essentielles pour estimer la qualité du milieu ralentisseur. Elles sont données pour quelques éléments dans le tableau (1.4).

Tableau 1.4 : Pouvoir de ralentissement $\xi \Sigma_s$ et rapport de modération $\xi \Sigma_s / \Sigma_a$ [05]

Substances	$\xi \Sigma_s$	$\xi \Sigma_s / \Sigma_a$
Eau	1,53	70
Eau lourde	0,177	21 000
He (gaz)	$1,6 \cdot 10^{-5}$	83
Be	0,16	150
Graphite	0,063	170

D'après le tableau, l'eau lourde est le modérateur le plus adéquat pour le fonctionnement des réacteurs même avec un combustible d'uranium de très faible enrichissement.

1.5. La dosimétrie des neutrons :

En dosimétrie des rayonnements ionisants [06, 19, 26], on distingue :

- les grandeurs physiques accessibles quantitativement par le calcul ou par la mesure, telles que l'énergie, l'intensité d'émission et l'activité.
- les grandeurs radiométriques servent à caractériser le champ de rayonnements, tel que le flux ϕ de particules (nombre de particules par unité de surface, généralement employé pour les neutrons) ou bien le kerma dans l'air K_{air} (énergie cinétique initiale libérée dans le volume élémentaire d'air de masse dm , qui caractérise généralement les faisceaux de photons).
- les grandeurs dosimétriques servent à caractériser l'effet physique des rayonnements sur la matière en terme d'énergie transférée, telle que la dose absorbée.

1.5.1. La dose absorbée D :

La dose absorbée D traduit le dépôt d'énergie par les rayonnements ionisants. Ce dépôt d'énergie dépend du type de rayonnement qui est en général caractérisé par son transfert linéaire d'énergie (TLE). Pour une particule chargée, le TLE est simplement le pouvoir d'arrêt dE/dx . On distingue les rayonnements à fort TLE (particules alpha, fragments de fission, ions lourds) des rayonnements à faible TLE (rayonnement X ou gamma).

La dose absorbée en Gray (Gy) est définie comme étant le rapport de l'énergie moyenne communiquée par les rayonnements ionisants à la masse Δm de la matière. Un Gray correspond à une énergie absorbée d'un joule par kilogramme de matière, mais ne distingue pas la matière inerte de la matière vivante :

$$D(\text{Gy}) = \frac{\Delta E(\text{J})}{\Delta m(\text{Kg})} \quad \dots (1.19)$$

1.5.2. L'équivalent de dose H :

L'équivalent de dose H (en sievert Sv) est une grandeur qui tient compte des effets biologiques dus à l'exposition aux rayonnements. Elle est donnée par la formule:

$$H(\text{Sv}) = D \cdot Q \quad \dots (1.20)$$

D est la dose absorbée et Q le facteur de qualité caractéristique du rayonnement (sans dimension). La valeur de Q , qui dépend du TLE relatif aux particules chargées, est fonction du type de particule (figure 1.4).

Le débit d'équivalent de dose $\dot{H}(\text{Sv/h})$ est défini par le rapport entre l'équivalent de dose et le temps d'irradiation.

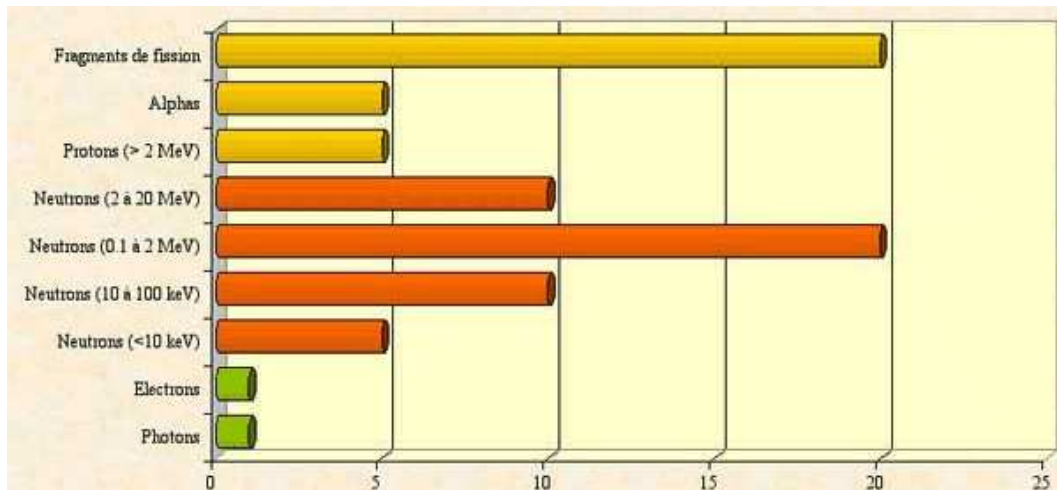


Figure 1.4: Influence de la nature du rayonnement sur le facteur de qualité Q (unité arbitraire) [26]

1.5.3. Les normes internationales en radioprotection :

Les expositions des individus sont soumises à des limites de dose dont le but est d'assurer qu'aucun individu ne soit exposé à des risques biologiques jugés inacceptables dans le cadre de ses activités habituelles. En ce qui concerne les expositions professionnelles et du public, les organismes ICRP (Commission Internationale de Protection Radiologique) et ICRU (Commission Internationale des Unités Radiologiques) dans le rapport 74 [25] recommandent les valeurs présentées en tableau (1.5).

Tableau 1.5 : Limites de dose recommandées par ICRP 74 [25]

	Limite de dose	
	Travailleurs	Public
Equivalent de dose H	- 20 mSv/an en moyenne sur 5 ans	- 1 mSv/an en moyenne sur 5 ans
	- 50 mSv maximum sur une année donnée	- 5 mSv maximum sur une année donnée

Ces grandeurs limitatives ne sont pas mesurables dans la pratique, des grandeurs opérationnelles ont été développées pour les mesures pratiques dans les environnements radiatifs. Ces grandeurs employées par les laboratoires d'étalonnage pour caractériser un champ de rayonnements sont les grandeurs physiques.

Il existe des facteurs de conversion entre la fluence ϕ de neutrons et les grandeurs dosimétriques définies ci-dessus (H et D). Ces facteurs [08] sont établis principalement par des calculs de Monte Carlo qui simulent le comportement des neutrons dans un modèle de corps humain et déterminent la distribution spatiale de la dose absorbée, l'équivalent de dose absorbée et l'équivalent de dose, pour des neutrons mono-énergétiques en incidence normale et pour une épaisseur de peau simulée de 10 mm.

Les valeurs des facteurs de conversion ambiant $H^*(10)/\phi$ (relatifs à la ICRP 74) utilisées sont déduites des travaux de Schuhmacher et Siebert [25], elles sont données dans le tableau (1.6).

Tableau 1.6 : Facteurs de conversion neutronique d'après Schuhmacher et Siebert [25]

Énergie neutron (eV)	H*(10)/ ϕ (pSv.cm ²) (a)	D*(10)/ ϕ (pGv.cm ²) (a)	Q*(10) _{eff} (a)	H*(10)/ ϕ (pSv.cm ²) (b)	D*(10)/ ϕ (pGv.cm ²) (b)	Q*(10) _{eff} (b)
2,50E-01	14,511	3,042	4,77	10,156	2,925	3,47
1,00E+00	14,893	3,333	4,47	10,473	3,077	3,40
1,00E+01	13,683	3,277	4,18	9,437	2,912	3,24
1,00E+02	11,083	2,750	4,03	7,444	2,486	2,99
1,00E+03	8,877	2,413	3,68	6,14	2,264	2,71
5,00E+03	9,593	2,606	3,68	7,235	2,504	2,89
1,00E+04	12,165	2,918	4,17	9,447	2,830	3,34
2,00E+04	19,225	3,489	5,51	14,708	3,414	4,31
5,00E+04	49,975	4,954	10,09	34,122	4,904	6,96
1,00E+05	113,426	7,025	16,15	70,178	7,016	10,00
1,44E+05	166,853	8,638	19,32	100,475	8,669	11,59
1,50E+05	173,616	8,847	19,62	104,386	8,884	11,75
2,00E+05	224,521	10,502	21,38	134,688	10,587	12,72
2,50E+05	266,273	12,029	22,14	161,016	12,162	13,24
3,00E+05	300,380	13,450	22,33	183,821	13,632	13,48
3,50E+05	328,387	14,780	22,22	203,632	15,012	13,56
4,00E+05	351,580	16,033	21,93	220,933	16,313	13,54
5,00E+05	387,301	18,339	21,12	249,563	18,714	13,34
5,70E+05	406,173	19,819	20,49	265,910	20,259	13,13
5,75E+05	407,371	19,921	20,45	266,982	20,365	13,11
6,00E+05	413,098	20,424	20,23	272,171	20,891	13,03
7,00E+05	432,286	22,325	19,36	290,402	22,881	12,69
7,88E+05	445,346	23,871	18,66	303,718	24,501	12,40
8,00E+05	446,908	24,073	18,56	305,370	24,713	12,36
9,00E+05	458,274	25,689	17,84	317,850	26,411	12,03
1,00E+06	467,253	27,191	17,18	328,391	27,991	11,73
1,20E+06	480,261	29,906	16,06	345,163	30,853	11,19
1,50E+06	492,156	33,407	14,73	363,068	34,552	10,51
2,00E+06	501,822	38,145	13,16	381,914	39,575	9,65
2,50E+06	505,667	41,934	12,06	393,416	43,606	9,02
3,00E+06	506,875	45,065	11,25	400,969	46,944	8,54
3,30E+06	506,919	46,704	10,85	404,318	48,695	8,30
3,50E+06	506,766	47,714	10,62	406,195	49,775	8,16
4,00E+06	505,961	49,996	10,12	409,971	52,217	7,85
4,50E+06	504,779	51,992	9,71	412,825	54,356	7,59
5,00E+06	503,395	53,756	9,36	415,105	56,250	7,38
6,00E+06	500,382	56,752	8,82	418,924	59,469	7,04
7,00E+06	497,332	59,213	8,40	423,045	62,119	6,81
8,00E+06	494,420	61,283	8,07	428,886	64,351	6,66
9,00E+06	491,819	63,055	7,80	437,803	66,265	6,61
1,00E+07	489,966	64,596	7,59	450,876	67,930	6,64
1,10E+07	490,121	65,951	7,43	468,471	69,396	6,75
1,20E+07	495,161	67,154	7,37	489,851	70,699	6,93
1,40E+07	530,000	69,205	7,66	536,381	72,923	7,36

Chapitre 2 :

La méthode Monté Carlo pour le calcul du transport des neutrons

Introduction :

La méthode Monté Carlo devient aujourd'hui un outil indispensable à la recherche dans le domaine de la physique des rayonnements. Ses champs d'application vont de la radioprotection à la simulation des cœurs de réacteurs. Elle est utilisée dans des domaines aussi variés et complexes que les transferts radiatifs dans l'atmosphère, les processus sub-nucléaires, l'interaction de la lumière avec la matière vivante ou les phénomènes de turbulence.

Les protocoles de recherche et développement s'articulent généralement selon un schéma classique : les expériences conduisent à l'élaboration de modèles qui doivent eux-mêmes être validés par de nouvelles expériences.

Cependant, l'accès de plus en plus « aisé » à la simulation numérique modifie ce schéma. Dans ce cas, l'expérience fournit à la modélisation les données numériques nécessaires à son paramétrage. Cette modélisation permet alors d'étendre le champ des investigations à des configurations inaccessibles dans la réalité et de multiplier virtuellement des expériences trop coûteuses. La simulation permet aussi d'améliorer la compréhension des phénomènes, d'établir des prédictions et d'aider à la conception.

2.1. Origine et intérêt de la méthode Monté Carlo

La méthode Monté Carlo est utilisée depuis bien longtemps, mais ce n'est que durant les dernières décennies qu'elle a gagné le statut de méthode numérique à part entière, capable de résoudre les problèmes les plus complexes.

Le conte de Buffon (Georges Louis Leclerc ; 1707-1788), peut être présenté comme le précurseur de la méthode Monte Carlo. En 1777, il posa le problème dit « des aiguilles » que Laplace (Pierre Simon ; 1749 -1827) reformula en 1812 pour en déduire une méthode de calcul de π ¹ [09, 10].

La méthode fut appliquée au transport des particules pour la première fois dans le cadre du projet Manhattan à Los Alamos durant la 2^{ème} guerre mondiale.

¹ Il s'agit de jeter au hasard un grand nombre de fois une aiguille de longueur, L , sur un réseau de lignes parallèles équidistantes (distance interligne d). Si $2L=d$ alors la probabilité de couper une ligne est $1/\pi$. Ainsi, si l'on jette N fois une aiguille au hasard et si n fois cette aiguille coupe des lignes alors $\pi \approx N/n$.

C'est essentiellement l'observation des phénomènes globaux d'atténuation, de diffusion et d'absorption des faisceaux de rayonnements qui fut à l'origine des modèles décrivant les interactions du rayonnement avec la matière. Du fait qu'on ne peut prédire où, quand et comment va interagir une « particule » donnée, les informations globales d'interaction sont traduites en terme de sections efficaces, donc de probabilités.

Ainsi, « suivre » une particule interaction après interaction, en tirant au « hasard » les paramètres physiques des phénomènes, selon des fonctions de distributions de probabilité qui décrivent les lois « théoriques » de l'interaction du rayonnement avec la matière permet, si le processus est répété un très grand nombre de fois, de reproduire les effets macroscopiques et de calculer des grandeurs comme le flux, la distribution spectrale et angulaire de la fluence de particules, la dose absorbée et l'efficacité de détection.

Cette simulation du système physique permet alors de déterminer des grandeurs difficiles à obtenir par les méthodes déterministes, souvent longues et fastidieuses ainsi qu'estimer des composantes inaccessibles à l'expérience.

Les limites de la méthode Monté Carlo:

L'ordre de grandeur du rapport entre les échelles macroscopique et atomique voire subatomique est tel qu'avec les moyens informatiques courants, la modélisation de quelques secondes d'une expérience peut prendre plusieurs dizaines d'heures. Ce constat rend indispensable l'établissement de compromis permettant de réduire la durée des calculs tout en permettant d'atteindre la précision statistique des résultats souhaitée. Le temps de calcul dépend principalement de trois paramètres [09, 10] :

- La complexité de la géométrie telle que l'utilisation de l'échelle millimétrique qui augmente le nombre d'interfaces que doivent traverser les particules et donc le nombre d'opérations (tests, calculs de position, ...) à réaliser lors du transport.
- Les interactions du rayonnement avec la matière qui, traitées individuellement entraîne des durées de calculs importantes d'où l'application de seuils d'énergie apte à réduire la durée d'un calcul.
- Le temps de calcul est directement proportionnel au nombre de particules « suivies », des millions de particules sont nécessaires afin d'obtenir un échantillonnage satisfaisant. Cette condition est indispensable pour atteindre la précision recherchée sur la grandeur calculée.

Plusieurs stratégies sont utilisées pour réduire ces difficultés, nous citons entre autres :

- L'introduction de simplifications dans le modèle telles que l'hypothèse du ralentissement continu, l'utilisation des symétries du domaine de calculs ou l'introduction d'énergies seuil de coupure.
- Les méthodes de réduction de variance où il s'agit de « favoriser » les particules et les histoires « utiles » à la solution d'un problème, donc celles qui y contribuent le plus efficacement.

Dans tous les cas, il convient d'adapter les calculs d'incertitude au résultat recherché pour tenir compte d'éventuelles corrélations.

2.2. La modélisation par la méthode Monté Carlo :

Les méthodes de calcul les plus communément utilisées résolvent les équations de transport de manière déterministe pour une distribution moyenne du nombre de particules.

Au contraire, la méthode numérique Monté Carlo ne résoud pas d'équation explicite mais reproduit théoriquement un processus statistique. Elle permet de simuler le processus physique au moyen de fonctions de densité de probabilité et possède la particularité de pouvoir traiter un très grand nombre de particules, avec une trajectoire possible pour chacune d'entre elles.

Cette approche relativement récente simule " l'histoire " d'une particule individuelle dans un milieu atténuateur, en tenant compte du caractère aléatoire des différents processus physiques pouvant être rencontrés lors de sa traversée. Elle permet alors de modéliser l'interaction du rayonnement avec la matière à chaque étape de son transport [18].

Cet historique prend en compte les éventuelles particules secondaires et s'arrête dès lors que l'énergie de la particule est en dessous d'un niveau seuil ou atteint une zone de réjection.

Une histoire commence par la naissance de la particule (émission à partir d'une source) et se termine par sa mort (absorption ou fuite). La figure (2.1) présente un organigramme simplifié de la construction d'une histoire.

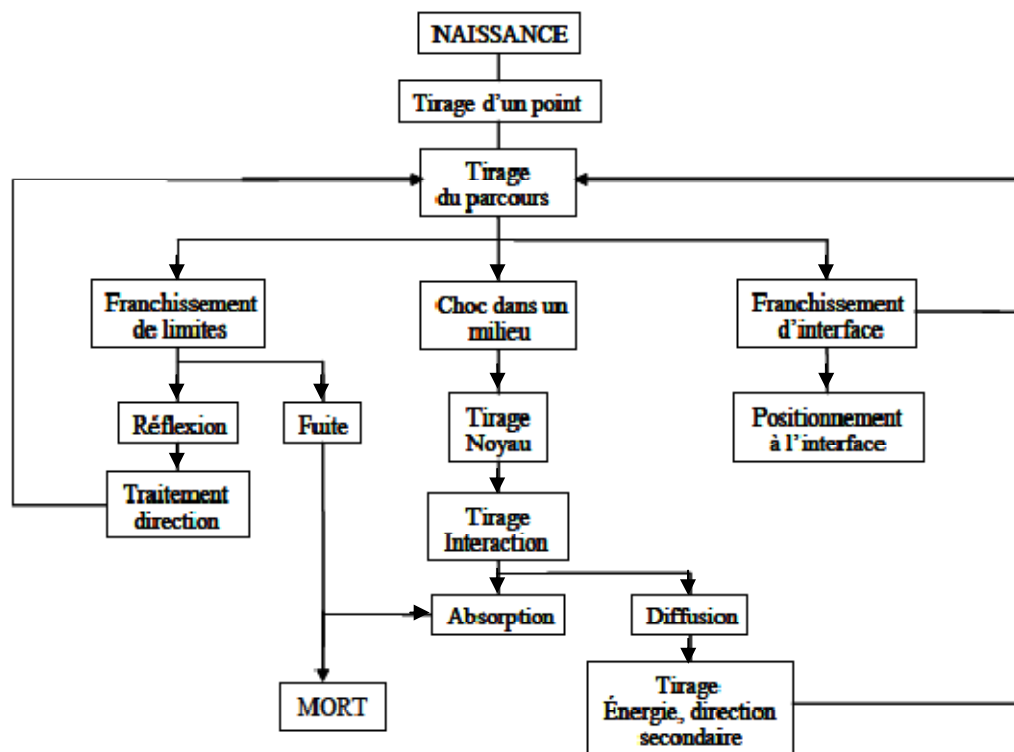


Figure 2.1: Historique et traçabilité d'une particule dans un milieu ralentisseur [18]

2.3. Les codes de calcul Monté Carlo :

Le développement de puissantes machines de calcul et la meilleure connaissance des sections efficaces d'interactions ont contribué à l'apparition de nombreux codes de transport de particules Monté Carlo.

Parmi ces codes les plus performants, nous citons :

1. Le code **EGS4** (**E**lectron **G**amma **S**hower), est l'un des premiers codes mis à la disposition des chercheurs, il simule le transport du couple électron/photon dans la matière [12].
2. Les codes **GEANT** et **FLUKA**, développés au CERN (Centre Européen pour les Recherches Nucléaires), assurent le transport de particules dans le domaine des hautes énergies :

Le code **GEANT** (**G**eometry **A**nd **T**racking) se présente sous forme d'une bibliothèque de données très complète pour les photons, les électrons, les hadrons et les ions. Sa dernière version écrite en C++ au lieu du Fortran le rend encore plus performant. Les améliorations continues lui ont permis de s'imposer dans le domaine de la dosimétrie [13].

Le code **FLUKA** (**FL**Uktuierende **K**Askade) contient des modèles détaillés des interactions électromagnétique hadron-hadron, noyau-hadron [14].

3. Le code **PENELOPE** (**P**ENetration and **E**nergy **L**oss of **P**ositrons and **E**lectrons), développé par l'équipe du Professeur Salvat (Barcelone) simule le transport des électrons, des positrons et des photons d'énergie comprise entre 50 eV et 1 GeV dans des matériaux simples (de Z=1 à Z=99) ainsi que dans des matériaux composés [15].

Les principaux codes assurant le transport de neutrons sont MCNP, MORSE et TRIPOLI.

4. Le code **MCNP** (**M**onte **C**arlo **N**eutron **P**article) est l'un des codes les plus utilisés pour les calculs de modélisation, il simule le transport des neutrons, des électrons, et des photons dans des intervalles d'énergie compris pour les neutrons entre 10^{-11} MeV et 20 MeV (pour la plupart des isotopes, et jusqu'à 150 MeV pour les versions MCNPX et MCNP5). Pour les photons, il s'étend de 1 keV à 100 GeV et pour les électrons, de 1 keV à 1 GeV [10].

Ce code présente l'avantage d'être très documenté et fait l'objet de mises à jour régulières. Il est enfin étendu à certaines particules lourdes chargées dans sa version MCNPX.

5. Le code Monte Carlo **MORSE** (**M**ulti group **O**ak **R**idge **S**tochastic **E**xperiment) est un code de transport 3D multi groupe de neutrons et de photons développé au Oak Ridge National Laboratory (ORNL) [16].
6. Le code **TRIPOLI** (**T**RIdimensional **P**OLykinetic) a été développé par la Direction de l'Energie Nucléaire du Commissariat à l'Energie Atomique (CEA) pour le transport de particules (neutrons et gamma) par la méthode MC. Il a la particularité d'être tridimensionnel et polycinétique et a pour but de traiter les problèmes de protection et de neutronique [17].

2.4. Le code MCNP5 (Monte Carlo N Particles) :

Le code MCNP5 (Monte Carlo N Particles) traite le transport des particules neutres (photons et neutrons) et des électrons, seuls ou combinés, les photons provenant dans ce dernier cas de l'interaction des neutrons avec la matière. Etendu à certaines particules lourdes chargées dans sa version MCNPX, il calcule le transport des particules dans l'espace tridimensionnel dépendant du temps et de l'énergie d'une manière continue.

Nous pouvons résumer les trois modes traités par le code de la manière suivante [10, 11]:

- Pour le transport des neutrons, toutes les réactions nucléaires envisageables sont prises en compte. Les neutrons thermiques peuvent être décrits par différents modèles dont le modèle du gaz libre.
- Pour les photons γ , le code MCNP5 tient compte des diffusions incohérentes et cohérentes, des possibilités d'émission de rayons X fluorescents après absorption photoélectrique et de l'absorption par production de paires avec émission locale de photons d'annihilation.
- Pour le transport des électrons, le modèle dit « continuous-slowing-down » est utilisé en incluant les positrons.

Enfin, l'emploi du code MCNP5 présente plusieurs avantages pour la modélisation de l'interaction du rayonnement avec la matière à chaque étape de son transport dont :

- La prise en compte de tous les phénomènes physiques « élémentaires » mis en jeu lors de chaque interaction.
- Sa souplesse d'adaptation aux caractéristiques géométriques complexes du problème à résoudre.
- La description exacte de la composition chimique ou élémentaire des matériaux dans leur environnement réel.

Cependant, la validation (benchmarking) de la modélisation doit être réalisée sur des expériences connues de manière précise afin d'avoir des mesures expérimentales qui doivent concorder avec le résultat des calculs par simulation.

2.4.1. Conception du code MCNP5 et paramètres de calcul :

Le code MCNP5 (version 5 de l'année 2005) dispose d'un ensemble de sous-programmes appelés « Subroutines » écrits en Fortran 77 chargés de la partie physique de la simulation. Ils sont gérés dans un fichier d'entrée « Input File » élaboré par l'utilisateur permettant de visualiser toutes les informations relatives au problème que l'on souhaite traiter [20] telles que:

- La description de la géométrie du dispositif à modéliser.
- La composition atomique des matériaux composant l'environnement des particules.
- Le choix des sections efficaces d'interaction associées aux différents noyaux atomiques considérés.

- La définition des caractéristiques de la source, tels que la position, les dimensions, ainsi que le type de particules source (neutron, photon ou électron).
- La nature des résultats que l'on souhaite obtenir (fluence, flux, dépôt d'énergie, taux de réaction,...) par l'utilisation des observables appelées « *tallies* ».

Tous les calculs se font à partir d'une base de données répertoriant les sections efficaces associées à chaque noyau susceptible de générer une réaction nucléaire.

Après l'exécution du programme, les résultats de simulation sont délivrés dans un fichier de sortie « Output File », où le code dispose d'outils statistiques pour tester la convergence mathématique des résultats obtenus. La précision dépend alors non seulement du nombre d'histoires considéré, mais aussi des techniques de réduction de variance utilisées.

Bibliothèques de données nucléaires:

Le code MCNP5 est fourni avec un package de données atomiques et nucléaires, sous forme tables telles que la bibliothèque ENDF [21] (Evaluated Nuclear Data File), ENDL [22] (Evaluated Nuclear Data Library), ACTL[23] (Activation Library) et des évaluations du groupe (T-2) de la division « Applied Nuclear Science » de Los Alamos [11].

Ces données sont relatives à l'interaction des neutrons avec la matière (plus de 500 tables disponibles pour environ 100 isotopes), les photons induits par neutrons, l'interaction des photons, la dosimétrie des neutrons, l'activation neutronique, et la diffusion des particules thermiques [20].

Ces données sont réunies dans des répertoires « directories » appelées « XSDIR ».

Procédures d'exécution du fichier « Input »:

Pour exécuter le **fichier Input**, le code MCNP5 fait appel au répertoire **xsdir** pour avoir accès aux bibliothèques de données des réactions nucléaires. Ce fichier est nécessaire pour relier le code des matériaux à l'emplacement des fichiers de sections efficaces.

Le fichier **xsdir** se trouve dans le répertoire d'installation des bases de données de MCNP5. Dans ce fichier sont définis tous les chemins pour retrouver les différentes sections efficaces (le lien entre chaque noyau et l'endroit où se situe sa section efficace est spécifié).

Résultats et fichier de sortie « Output »:

Les résultats d'un calcul MCNP5 sont regroupés dans le fichier de sortie « Output ». On y retrouve les résultats standards dits « par défaut », qui donnent l'ensemble des informations du calcul, les tables, les listes et un certain nombre d'informations sur les créations ou disparitions de particules, sur les taux de capture (ou fission) regroupés par cellules ou par matériaux... Ces résultats sont normalisés par particule source.

En plus de ces résultats standards, les résultats particuliers demandés par le biais des « *tallies* » sont donnés avec l'erreur statistique relative, ainsi que les informations concernant les étapes intermédiaires du calcul.

2.4.2. Structure du fichier « Input » :

Le fichier d'entrée « Input » est divisé en trois parties appelées « CARD » séparées par une ligne vide. Ce sont : la carte des cellules, la carte des surfaces et la carte des données (figure 2.2). Le nom du fichier Input ne doit pas dépasser 8 caractères. La première ligne du fichier est réservée à une ligne de titre. Toute autre ligne de commentaire doit être signalée en la commençant par le caractère 'c'. Aucune ligne ne doit dépasser 80 caractères.

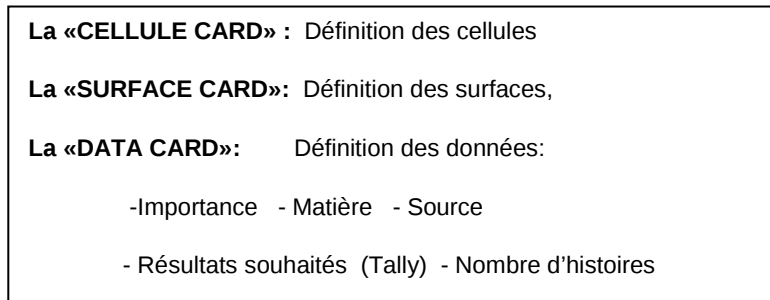


Figure 2.2 : Structure du fichier input

2.4.2.1. Définition des surfaces « SURFACE CARD»:

La cellule étant un assemblage de surfaces, nous commençons par décrire les surfaces, même si elles n'interviennent qu'après les cellules dans le fichier Input.

Le code MCNP5 contient dans son programme source les équations d'un grand nombre de surfaces (tableau 2.1). Chaque surface est définie par une équation $f(x,y,z)=0$, elle est représentée par un mnémonique et un ensemble de paramètres. Pour la définir, on utilise la notation suivante : *j n a liste*

j désigne le numéro de la surface (un nombre compris entre 1 et 99999).

n concerne des transformations de coordonnées. Il peut être absent ou nul ; si il n'y a pas de transformation. *n* positif désigne le numéro de la carte définissant la transformation de coordonnées.

a et *liste* : représentent respectivement l'abréviation d'une surface reconnue par le programme et les paramètres qui s'y réfèrent (comme le centre, le rayon, longueur).

Le sens des surfaces : est défini par un signe '+' (ou absence de signe) ou un signe '-' devant le numéro de surface. Le signe '+' désigne le côté de la surface orienté dans le même sens que l'axe de coordonnées correspondant. Appliqué à une surface fermée de type sphère ou cylindre, le signe '+' désigne l'extérieur.

Tableau 2.1 : Bibliothèque des cartes de surfaces disponibles dans le code MCNP5 [11]

Mnemonic	Type	Description	Equation	Card Entries
P	Plane ↓	General	$Ax + By + Cz - D = 0$	$ABCD$
PX		Normal to X-axis	$x - D = 0$	D
PY		Normal to Y-axis	$y - D = 0$	D
PZ		Normal to Z-axis	$z - D = 0$	D
SO	Sphere ↓	Centered at Origin	$x^2 + y^2 + z^2 - R^2 = 0$	R
S		General	$(x - \bar{x})^2 + (y - \bar{y})^2 + (z - \bar{z})^2 - R^2 = 0$	$\bar{x} \ \bar{y} \ \bar{z} \ R$
SX		Centered on X-axis	$(x - \bar{x})^2 + y^2 + z^2 - R^2 = 0$	$\bar{x} \ R$
SY		Centered on Y-axis	$x^2 + (y - \bar{y})^2 + z^2 - R^2 = 0$	$\bar{y} \ R$
SZ		Centered on Z-axis	$x^2 + y^2 + (z - \bar{z})^2 - R^2 = 0$	$\bar{z} \ R$
C/X	Cylinder ↓	Parallel to X-axis	$(y - \bar{y})^2 + (z - \bar{z})^2 - R^2 = 0$	$\bar{y} \ \bar{z} \ R$
C/Y		Parallel to Y-axis	$(x - \bar{x})^2 + (z - \bar{z})^2 - R^2 = 0$	$\bar{x} \ \bar{z} \ R$
C/Z		Parallel to Z-axis	$(x - \bar{x})^2 + (y - \bar{y})^2 - R^2 = 0$	$\bar{x} \ \bar{y} \ R$
CX		On X-axis	$y^2 + z^2 - R^2 = 0$	R
CY		On Y-axis	$x^2 + z^2 - R^2 = 0$	R
CZ		On Z-axis	$x^2 + y^2 - R^2 = 0$	R
K/X	Cone ↓	Parallel to X-axis	$\sqrt{(y - \bar{y})^2 + (z - \bar{z})^2} - t(x - \bar{x}) = 0$	$\bar{x} \ \bar{y} \ \bar{z} \ t^2 \ \pm 1$
K/Y		Parallel to Y-axis	$\sqrt{(x - \bar{x})^2 + (z - \bar{z})^2} - t(y - \bar{y}) = 0$	$\bar{x} \ \bar{y} \ \bar{z} \ t^2 \ \pm 1$
K/Z		Parallel to Z-axis	$\sqrt{(x - \bar{x})^2 + (y - \bar{y})^2} - t(z - \bar{z}) = 0$	$\bar{x} \ \bar{y} \ \bar{z} \ t^2 \ \pm 1$
KX		On X-axis	$\sqrt{y^2 + z^2} - t(x - \bar{x}) = 0$	$\bar{x} \ t^2 \ \pm 1$
KY		On Y-axis	$\sqrt{x^2 + z^2} - t(y - \bar{y}) = 0$	$\bar{y} \ t^2 \ \pm 1$
KZ		On Z-axis	$\sqrt{x^2 + y^2} - t(z - \bar{z}) = 0$	$\bar{z} \ t^2 \ \pm 1$
				± 1 used only for 1 sheet cone
SQ	Ellipsoid Hyperboloid Paraboloid	Axes parallel to X-, Y-, or Z-axis	$A(x - \bar{x})^2 + B(y - \bar{y})^2 + C(z - \bar{z})^2 + 2D(x - \bar{x}) + 2E(y - \bar{y}) + 2F(z - \bar{z}) + G = 0$	$A \ B \ C \ D \ E \ F \ G \ \bar{x} \ \bar{y} \ \bar{z}$
GQ	Cylinder Cone Ellipsoid Hyperboloid Paraboloid	Axes not parallel to X-, Y-, or Z-axis	$Ax^2 + By^2 + Cz^2 + Dxy + Eyz + Fzx + Gx + Hy + Jz + K = 0$	$A \ B \ C \ D \ E \ F \ G \ H \ J \ K$
TX	Elliptical or circular torus. Axis is Parallel to X-, Y-, or Z-axis		$(x - \bar{x})^2/B^2 + (\sqrt{(y - \bar{y})^2 + (z - \bar{z})^2} - A)^2/C^2 - 1 = 0$	$\bar{x} \ \bar{y} \ \bar{z} \ A \ B \ C$
TY			$(y - \bar{y})^2/B^2 + (\sqrt{(x - \bar{x})^2 + (z - \bar{z})^2} - A)^2/C^2 - 1 = 0$	$\bar{x} \ \bar{y} \ \bar{z} \ A \ B \ C$
TZ			$(z - \bar{z})^2/B^2 + (\sqrt{(x - \bar{x})^2 + (y - \bar{y})^2} - A)^2/C^2 - 1 = 0$	$\bar{x} \ \bar{y} \ \bar{z} \ A \ B \ C$
X Y Z P		Surfaces defined by points		See pages 3–16 and 3–18

2.4.2.2. Définition des cellules « CELLULE CARD »:

L'intersection, l'union ou le complémentaire de plusieurs surfaces forment des régions fermées de l'espace, ce sont les cellules. La cellule étant délimitée par les surfaces, chaque surface sépare deux régions de l'espace, celle correspondant à $f(x,y,z)>0$ est notée positive et celle définie par $f(x,y,z)<0$ est notée négative. Une cellule pleine est définie de la manière suivante [20]: *nc m d geom*

nc est le numéro de la cellule (un nombre compris entre 1 et 99999).

m indique le numéro du matériau qui remplit la cellule *nc* et dont les caractéristiques sont décrites par la fiche Mm. Pour une cellule vide $m = 0$.

d est la densité de la matière *m*. *d* est notée négative pour être interprétée comme densité en g par cm^3 , et positive pour représenter la densité atomique en unité 10^{24} atomes par cm^3 . Ce nombre est absent si la cellule *nc* est vide (*m* égal à 0).

geom est la géométrie de la cellule définie par les surfaces de numéros $s_1 s_2 \dots s_n$, avec les signes adéquats. Ces surfaces peuvent être séparées par des opérateurs booléens qui spécifient comment les régions séparées par les surfaces doivent être combinées (un espace signifie l'intersection et le signe $(:)$ représente l'union).

params sont des spécifications optionnelles des paramètres des cellules.

On définit également un paramètre indispensable pour la simulation, c'est l'importance de chaque cellule dans le calcul. Ce paramètre peut être affecté de deux valeurs : 1 ou 0.

La particule ne sera pas suivie dans une cellule d'importance égale à 0, la priorité est donnée aux cellules d'importance 1. Ceci permet donc :

- de terminer l'histoire de la particule si son importance dans la cellule est égale à 0
- et d'aider les particules à se déplacer facilement vers des régions plus importantes

La notation plus détaillée de la cellule devient: *nc m d geom imp: x=1*

imp: x=1 désigne l'importance de la cellule pour la particule x (ici égale à 1).

Une cellule externe est alors définie par : *nc 0 geom imp: x=0*

Enfin, les observables demandées (Tallies) seront moyennées sur l'ensemble d'une cellule.

Exemple d'exclusion de cellules : Il est possible d'exclure une cellule d'un espace par le caractère '#' qui signifie le complément de cette cellule :

```
5 2 -1.86000E+00 1 -4 -8 #3
```

```
1 Px 0
```

```
4 Px 10
```

```
8 Cx 2
```

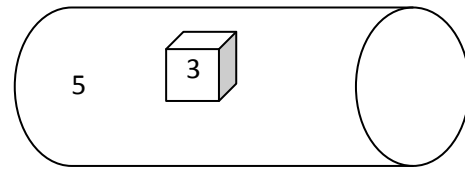


Figure 2.3 : Cellules et surfaces

La cellule 5 (figure 2.3) représente l'intérieur d'un cylindre à l'exception de la cellule 3.

2.4.2.3. Définition des données « DATA CARD »:

2.4.2.3.1. Définition du mode:

Le mode de simulation des particules souhaité doit être spécifié dans le fichier Input, le mode n étudie le transport des neutrons uniquement. C'est le mode du code par défaut.

Les autres modes disponibles sont les:

- Mode p : pour le transport des photons.
- Mode e : pour le transport des électrons.
- Mode n – p : transport des neutrons et celui des photons induits par interaction des neutrons.
- Mode p-e : transport des photons et des électrons induits par interaction des photons.
- Mode n-p-e : transport des neutrons, des photons induits par interaction des neutrons et des électrons induits par interaction des photons.

2.4.2.3.2. Caractéristiques de la source de radiation (carte SDEF):

Le code permet de simuler une large variété de sources, il suffit de préciser dans le fichier « Input » les caractéristiques suivantes:

- Le type de particules sources émises (neutron, photon ou électron).
- La géométrie de la source, ses dimensions (ponctuelle, surfacique ou volumique) ainsi que sa position dans l'espace.
- La distribution énergétique et directionnelle du rayonnement émis ainsi que son évolution dans le temps.

La source de particules est décrite dans la carte (*SDEF*) par les paramètres suivants [11]:

CEL précise la cellule servant de source, (cas de source volumique)

SUR définit la surface servant de source (cas de source surfacique),

ERG définit l'énergie des particules sources (égale par défaut à 14 MeV)

POS définit le centre de la source (par défaut (0 ; 0 ; 0))

RAD définit le rayon de la source (source surfacique ou volumique).

PAR donne le type de particules émises par la source, il est égal à 1 pour le mode n, n-p et n-p-e, égal à 2 pour le mode p et p-e ainsi qu'égal à 3 dans le mode e.

TME donne l'instant d'émission.

Si la source est non isotrope, on ajoute les paramètres :

VEC et **DIR** : vecteur et cosinus directeurs de la source non isotrope.

Les distributions utilisées dans la définition des sources :

Une distribution permet à une variable de prendre plusieurs valeurs au lieu d'une valeur fixe entrée par l'utilisateur. Elle est notée **Dn** (n, le numéro de la distribution) à la place de la valeur numérique. Cette distribution est décrite par une ou plusieurs cartes : **SI** (Source Information), **SP** (Source Probability) ou **SB** (Source Bias).

La carte SI précise la forme de la distribution (valeurs discrètes, histogramme, densité de probabilité...). La carte SP précise ensuite les éventuelles probabilités associées à la distribution décrite avec la carte SI.

-La carte **SI** (Source Information) : notée **SI option** $I_1 \dots I_n$

où: **option** précise le type de distribution, et I_i les valeurs de la distribution (tableau 2.2)

Tableau 2.2 : Signification des paramètres de la carte **SI** [11]

Option	Type de distribution	Signification des paramètres suivants (I_i)
rien ou H	histogramme	délimitation des bins
L	valeurs discrètes	valeurs
A	distribution continue	points où est décrite la densité de probabilité
S	nouvelle distribution	Numéro de la nouvelle distribution

-La carte **SP** (Source Probability) : notée **SP option** $P_1 \dots P_n$

où **option** interprète des paramètres P_i qui sont des valeurs de probabilités (tableau 2.3)

Tableau 2.3 : Signification des paramètres de la carte **SP** [11]

Option	Option de la carte SI	Signification des paramètres suivants (P_i)
rien	H ou L	Probabilité de chaque bin ou valeur
	A	densité de probabilité aux points définis
D	H ou L	Probabilité de chaque bin ou valeur
S	H ou L	Probabilité cumulée de chaque bin ou valeur

Exemple : La définition **SDEF Cel=1 erg= d1 par= 2 Tme=0**

Si 1 L 0 0.6 1.2

Sp 1 0 0.3 0.7

signifie que la source est isotrope, uniformément répartie dans l'espace de la cellule 1, les particules source sont des photons (par= 2) émis à l'instant t=0 avec une distribution d'énergie (**erg**) notée « d1 » et précisée en « Si 1 » par les intervalles d'énergie dans l'ordre croissant avec les probabilités « Sp1 » pour chacune de ces énergies.

2.4.2.3.3. Composition atomique des matériaux :

On identifie les matériaux composants chaque cellule par le numéro atomique Z, le nombre de masse A et l'identificateur de la librairie des données nucléaires relative au matériau considéré.

Dans la carte des cellules, on donne un numéro m à la matière qui constitue la cellule. Ce numéro m est repris dans la carte *Mm*, dont la formulation simplifiée est :

Mm zaid1 fraction1 zaid2 fraction2 ...

où ***zaidi*** indique de quel élément il s'agit, ainsi que la librairie des sections efficaces à utiliser.

Cette entrée se décompose en ***ZZZAAA.nnx***,

où **Z** est le numéro atomique de l'élément considéré, **A** sa masse atomique, **n** l'identificateur de la librairie des sections efficaces, et **x** la classe des données : **C** pour continu en énergie, **D** pour des valeur discrètes, **T** pour des données thermiques, **Y** pour des données de dosimétrie....

Les nombres ***fraction i*** sont les fractions atomiques du constituant **i** (ou la densité atomique si elle est avec un signe moins).

2.4.2.3.4. Spécification des résultats souhaités (tallies):

Les grandeurs physiques à extraire de la simulation correspondent à une observable physique, telle que le courant à travers une surface ou le flux moyen dans une cellule.

Le code donne accès à des scores obtenus par les particules d'intérêt sous forme de tableaux appelés « Tallies ». La spécification de ces tallies dans le fichier Input permet de préciser le type de résultat que l'on souhaite obtenir.

Les cartes des Tallies les plus utilisées sont ***F_n***, ***E_n*** et ***FM_n*** :

-La carte ***F_n*** : étant la plus utilisée, il en existe 7 différentes pour les neutrons (tableau 2.4), dont 6 pour les photons et 4 pour les électrons. On peut créer d'autres Tallies en modifiant ces Tallies de base dans le programme.

Tableau 2.4 : Les Tallies ***F_n*** de base du code MCNP5 [11]

Type de Tally	Description de l'observable	Type de particules	Unités
F1	Courant intégré sur une surface	N, P, E	Particules
F2	Flux moyen à travers une surface	N, P, E	Particules/cm
F4	Le flux moyen dans une cellule	N, P, E	Particules/cm ²
F5a : N ou P	Le flux en un point détecteur	N, P	Particules/cm ²
F6 : N, P et E	L'énergie moyenne déposée dans une cellule	N, P, E	MeV/g
F7	L'énergie moyenne par fission déposée dans une cellule.	N	MeV/g
F8	Distribution énergétique fournie par un détecteur.	N, P, E, PE	Pulses/MeV

Le type de particule est désigné par la lettre correspondante : N pour le neutron, P pour le photon et E pour l'électron.

-La carte ***E_n*** (**Découpage en énergie**) : La carte ***E_n e₁ e₂... e_k*** permet de décomposer les intégrales des Tallies ***F_n*** en plusieurs intervalles d'énergie (bins) jusqu'à l'énergie maximale :

$$E_n e_1 e_2 \dots e_k \rightarrow \int_0^{e_1} F_n(E) dE, \int_{e_1}^{e_2} F_n(E) dE, \dots, \int_{e_{k-1}}^{e_k} F_n(E) dE$$

Exemple 1: La notation **F4 : n 5**

E4 1 12i 14

signifie de calculer le flux moyen de neutrons dans la cellule 5 par incrément de 1 MeV, pour des neutrons dont l'énergie varie de 0 à 14 MeV (14 bins en énergie).

Exemple 2: La notation **F4 : n 2**
E4 .1 2 15

signifie de calculer le flux moyen des neutrons dans la cellule 2 en découpant l'énergie en quatre régions:

- de l'énergie minimale à 0.1 MeV ;
- de 0,1 à 2 MeV ;
- de 2 à 15 MeV ;
- et le total sur toutes les énergies.

-La carte *FMn* et le facteur multiplicatif:

Le facteur multiplicatif (appelé aussi modificateur), permet d'utiliser les tallies pour obtenir d'autres paramètres, tel que le taux de réaction.

Le résultat du tally est alors multiplié par le facteur multiplicatif k , et on distingue deux cas :

1. Le facteur multiplicatif k peut être égal à une constante, et servir seulement à convertir les unités, comme pour prendre en compte la densité du matériau, exprimée en atomes/(barn.cm). Dans ce cas, le résultat du tally est exprimé en $((R/cm^3)/p\text{-source})$ ou en $(R/p\text{-source})$ si le volume indiqué est égal à 1.
2. Le facteur multiplicatif k peut être une variable dépendante de l'énergie, grâce à la carte ***FMn k***, où n est le numéro du tally et k le facteur multiplicatif.

Exemple : Calcul du taux de réaction dans une cellule [20]

La multiplication du flux par une section efficace macroscopique $\Sigma(E)$ permet de calculer le taux de réaction r . Pour cette opération, F4 (flux dans la cellule) est utilisé avec la carte Fm4 pour multiplier le flux par la section efficace de la réaction.

Fm4 est alors définie par trois paramètres :

- la densité atomique de la matière de la cellule
- le numéro de la matière défini dans le programme
- l'identificateur ou le code (ENDF) qui définit la section efficace de la réaction choisie.

Ils sont introduits sous la forme suivante: **Fm4 i**

Fm4 a m c

i: le numéro de la cellule; **a** : la densité atomique en unité 10^{24} atome/cm³

m : le numéro de la matière de la cellule **i** et **c** : le code de la réaction.

Les codes de réaction disponibles pour les neutrons et les photons sont récapitulés dans le tableau (2.5):

Tableau 2.5: Les codes de réaction spécifiques au code MCNP5 [11]

Type	Code	Réaction
Neutron	-1	Section efficace totale sans les neutrons thermiques
	-2	Section efficace d'absorption
	-3	Section efficace élastique sans les neutrons thermiques
	-4	Energie moyenne déposée par collision (MeV/collision)
	-5	Section efficace de production des gammas
	-6	Section efficace totale de la fission
	-7	Nombre de neutrons par fission ν
	-8	Bilan de la fission Q (MeV/fission)
Photon	-1	Section efficace de la diffusion incohérente
	-2	Section efficace de la diffusion cohérente
	-3	Section efficace de l'effet photoélectrique
	-4	Section efficace de production de paire
	-5	Section efficace totale
	-6	Energie moyenne déposée par collision d'un photon

2.5 Les techniques de réduction de variance :

Le problème de la simulation à l'aide des codes Monte Carlo est la durée de simulation, lorsqu'un calcul MCNP nécessite trop de temps pour obtenir une statistique suffisante, l'incertitude associée est élevée, ce qui rend les résultats expérimentalement inexploitable.

Il existe différentes techniques de réduction de variance selon le problème, elles sont indispensables pour réduire significativement le temps de calcul de la grandeur d'intérêt pour une incertitude donnée. Nous citons entre autres techniques [11]:

- la simplification de la géométrie
- les importances des cellules (incompatible avec le tally F8)
- l'énergie de coupure (Cut-off energy)

2.5.1 Simplification de la géométrie :

Même si cela paraît évident, il n'est pas utile de simuler des endroits de la géométrie qui n'ont pas d'impact sur les résultats, par exemple s'ils sont loin des tallies. Cela peut permettre de gagner beaucoup de temps, particulièrement si un grand nombre de particules sont transportées dans ces régions.

2.5.2 Importances des cellules :

Les particules propagées ont un poids, généralement égal à 1. Ce poids intervient dans toutes les formules comme élément de pondération ; une particule de poids 0.1 influençant 10 fois moins un tally qu'une particule de poids 1.

Exemple : Dans la définition de la cellule : **102 -3.20 1 -2 4 -6 IMP : P=0.5**

IMP :N 1 1 1 0.5 0.5 2 1 0

A un changement de cellule, on peut avoir trois cas :

- **Importance constante :** Dans ce cas, le poids des particules est inchangé.
- **Importance croissante :** Au changement de cellule, fait deux choses :
 - démultiplication de la particule dans un rapport $I'/I (>1)$
 - multiplication du poids de la particule par $I/I' (<1)$(avec I' et I les importances de l'ancienne et de la nouvelle cellule respectivement)

Exemple : Si une particule de poids 1 passe d'une importance de 1 à une importance de 3, MCNP5 va propager 3 particules des poids 0.33 dans nouvelle cellule.

-Importance décroissante : Au changement de cellule, MCNP fait deux choses :

- tirage aléatoire pour savoir si la particule est tuée (probabilité de survie : I'/I (<1))
- multiplication du poids de la particule par I/I' (>1)

Exemple :

Si une particule de poids 1 passe d'une importance 1 à une importance 0.5, le code MCNP5 va propager cette particule une fois sur 2 avec un poids de 2 dans la nouvelle cellule.

Cette méthode est très utile pour ne pas suivre des particules dans des endroits inintéressants de la géométrie, ou pour en suivre plus dans les endroits utiles. Cette technique est particulièrement efficace pour:

- répartir la statistique dans un lissage (fitting) et avoir un résultat plus « lisse » (augmentation de l'importance dans des coins utiles de la géométrie)
- gagner du temps de calcul (diminution de l'importance dans les coins inutiles de la géométrie)

2.5.3 Energie de coupure (Cut-off energy)

Cette technique permet de ne plus suivre une particule lorsque certaines conditions sont réunies, l'utilisation la plus simple étant l'énergie de coupure (Cut-off), qui signifie de tuer la particule lorsque l'énergie diminue en dessous d'un seuil fixé.

Il faut tout de même s'assurer que tuer une particule de faible énergie ne représente pas une erreur : Un neutron de basse énergie peut très bien engendrer une fission et donc des gammas de haute énergie. En revanche, un gamma de basse énergie peut être supprimé plus facilement.

La technique de l'énergie de coupure permet de gagner un facteur significatif (plus d'un ordre de grandeur) sur le temps de calcul. Il faut cependant veiller à l'exactitude des résultats obtenus.

Deuxième Partie :

Matériels et Méthodes

Chapitre 3 :

Dispositif Expérimental et Techniques de Mesure

Introduction :

La méthode d'analyse par rétrodiffusion neutronique fait partie des techniques nucléaires qui connaissent un usage croissant en industrie grâce à la disponibilité des sources compactes et portatives ainsi qu'au développement des méthodes de détection.

Les méthodes chimiques actuelles étant destructives et longues, l'intérêt de cette technique d'analyse réside dans la précision, la sensibilité et la rapidité de dosage.

3. 1. Les applications de la technique de rétrodiffusion neutronique:

La technique de rétrodiffusion neutronique est une méthode rapide et précise pour l'analyse de la matière organique riche en hydrogène. Etant basée sur le phénomène de modération et de ralentissement des neutrons dans la matière, elle permet de déterminer la concentration d'hydrogène dans le milieu modérateur, ainsi que le taux d'humidité pour divers matériaux.

Le nombre de neutrons thermiques produit est, avec une bonne approximation, proportionnel à la concentration de l'hydrogène dans ce milieu et toute variation de celle-ci influe sensiblement sur ce nombre. De ce fait, le compteur proportionnel qui détecte les neutrons thermiques, doit être d'assez grande dimension pour limiter les effets de paroi [31].

En industrie, elle est utilisée pour mesurer les niveaux et les interfaces entre les fluides. Elle sert aussi à localiser la place d'obstruction par les dépôts organiques dans les pipes.

Cette technique est aussi souvent utilisée en analyse pour compléter l'étude par absorption du rayon gamma, elle permet de discriminer entre les différents éléments légers, ce qui est inaccessible avec la méthode précédente.

Enfin, des études relativement récentes montrent que la méthode de rétrodiffusion neutronique est appliquée avec succès dans les recherches pour la localisation des mines anti personnelles ainsi que des mines anti tank, qui sont fabriquées avec des matériaux organiques [41, 43].

Ces recherches, proposées depuis quelques années dans le cadre du projet « Humanitarian Demining applications, sont d'un intérêt majeur pour la sécurité et la protection des populations vivant dans les zones minées, et font l'objet de développements continus à ce jour dans le projet « EU-funded DIAMINE Project » [42].

3.1.1. Détection de niveau et d'interfaces entre les liquides :

La jauge de niveau la plus simple, contrôle la présence ou l'absence du matériau sur le trajet horizontal du rayonnement. D'autres modèles plus complexes mesurent la hauteur d'un produit solide ou liquide dans un réservoir, même lorsque ce niveau est inaccessible.

Ce principe a été utilisé par l'équipe de la Division des Techniques Nucléaires (DTN) du Centre de Recherche Nucléaire d'Alger (CRNA) au niveau de la raffinerie d'Alger pour la mesure des niveaux des liquides et interfaces dans les bacs de stockage de produits pétroliers.

La jauge neutronique (portable) utilisée consiste en une source de neutrons $^{241}\text{Am-Be}$ avec un détecteur de neutrons à gaz (^3He), assemblés dans un boîtier fixé à une tige d'opération en aluminium de 1.5 m de long.

Le procédé permet de déterminer l'interface entre deux liquides ayant des caractéristiques de modération et d'absorption différentes, mais présentant des densités équivalentes et ceci sans avoir accès à l'intérieur des bacs. Il suffit alors de tracer le profil du signal le long d'un bac contenant dans sa partie supérieure du pétrole, et dans sa partie inférieure de l'eau et des résidus (boue). Le signal obtenu est beaucoup plus important dans la partie supérieure car la concentration de l'hydrogène est beaucoup plus grande.

3.1.2. Jauges à rétrodiffusion neutronique:

Les jauges à rétrodiffusion neutronique trouvent leurs applications dans les tuyauteries en service dans l'industrie chimique et pétrolière [32]. La détermination des pics de neutrons rétrodiffusés permet alors la localisation des corrosions et des zones de dépôts organiques.

3.1.3. Dosage du bitume dans les revêtements routiers:

La technique de rétrodiffusion neutronique est largement utilisée dans le contrôle de qualité des travaux routiers, qui pose souvent des problèmes de compatibilité entre les délais de réponse des essais en laboratoire (toujours longs) et la cadence d'avancement des travaux.

En particulier, le contrôle de qualité des enrobés bitumineux dans les revêtements routiers (dont la teneur en liant est un paramètre fondamental quand à leurs performances), fait appel à la technique de rétrodiffusion neutronique pour le dosage du bitume dans ces bétons bitumineux [34, 35].

3.1.4. Jauge d'humidité :

La jauge d'humidité par rétrodiffusion neutronique permet le contrôle de la qualité des sols. Elle est fort répandue dans tous les travaux publics, le bâtiment et particulièrement dans l'agriculture où elle est d'une grande utilité.

Cette jauge d'humidité comporte une source de neutrons rapides (Am-Be d'activité 50 mCi), elle est destinée à déterminer la teneur en eau du sol grâce au comptage des neutrons ralentis par les noyaux d'hydrogène contenus dans les molécules d'eau [36]. Elle est souvent associée à une source de gammas pour la mesure de la densité des sols.

3.1.5. Analyse des solutions hydrogénées :

L'analyse des solutions permet de détecter la présence de matériaux nucléaires et de les doser tel que la présence de l'élément bore dans l'eau lourde [40].

3.1.6. Caractérisation de la matière organique :

La caractérisation et l'analyse de la matière organique par la méthode de rétrodiffusion neutronique peut être effectuée par la détermination de deux paramètres très importants. Le premier étant la teneur en hydrogène du matériau organique, le second est le rapport C/H (et C+O/H). Ce dernier caractérise le pouvoir énergétique dans les hydrocarbures (ou les huiles de pétrole) [33, 37, 38, 39].

Enfin, la méthode de rétrodiffusion neutronique présente certains inconvénients dans ces applications, à savoir :

- Une sensibilité considérable affectée par la proximité des matériaux hydrogénés (bruit de fond constitué par les neutrons thermiques provenant de l'environnement direct).
- Utilisée seulement dans les milieux hydrogénés.
- Elle dépend de l'épaisseur des parois (l'épaisseur des bacs de stockage par exemple ne doit pas dépasser 7 cm pour une source (Am-Be) de 1 Ci).

3.2. Le dispositif expérimental et principe de l'analyse par rétrodiffusion neutronique :

Le dispositif expérimental [01] qui a été développé pour l'analyse des échantillons organiques par la méthode de rétrodiffusion neutronique, est constitué d'une source neutronique (Am-Be) insérée dans un bloc cylindrique en polyéthylène faisant fonction de réflecteur, d'un porte-échantillon en aluminium posé sur le bloc de polyéthylène et d'un détecteur de neutrons placé en dessous de l'échantillon (figure 3.1).

Ainsi, les neutrons rapides émis par la source sont ralentis par collisions successives avec les éléments diffuseurs (les atomes d'hydrogène) de l'échantillon. Ils perdent quasiment toute leur énergie cinétique et sont thermalisés. Une fraction de ces neutrons thermiques est rétrodiffusée vers le détecteur. Ce dernier est couvert à l'exception de la partie qui fait face à l'échantillon, d'une feuille de cadmium (Cd), de sorte qu'il ne compte que les neutrons thermiques rétrodiffusés par l'échantillon, les neutrons thermiques diffusés par le polyéthylène sont eux, absorbés par le cadmium.

Le flux des neutrons thermiques rétrodiffusés vers le compteur est alors proportionnel à la concentration de l'hydrogène (H) dans l'échantillon.

Le montage expérimental représenté sur la figure (3.1) comprend :

- (1) la source ($^{241}\text{Am-Be}$) isotrope d'activité (01) Curie, émettant environ $2,2 \cdot 10^6$ n/s.
- (2) le détecteur de neutrons.
- (3) la feuille de cadmium (Cd) de 0.3 mm. Le cadmium ^{113}Cd possède une grande section efficace d'absorption pour les neutrons thermiques par le biais de la réaction de capture neutronique : $^{113}\text{Cd} (n, \gamma) ^{114}\text{Cd}$.
- (4) l'échantillon organique qui représente le milieu ralentisseur de neutrons.
- (5) le porte-échantillon en aluminium. L'aluminium présente une faible absorption des neutrons, il a peu d'influence sur les résultats de l'expérience.
- (6) le bloc de polyéthylène est un cylindre de 26 cm de diamètre et de 20 cm de hauteur. Il sert de réflecteur de neutrons pour augmenter la fraction des neutrons arrivant sur l'échantillon.

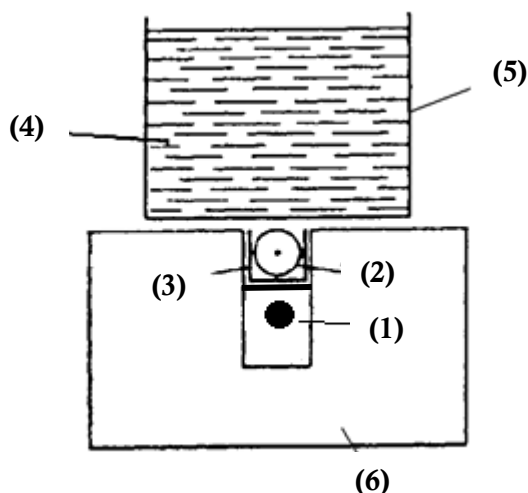


Figure 3.1: Schéma de principe du dispositif expérimental d'analyse par rétrodiffusion neutronique

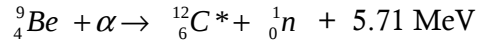
Description de la source neutronique ($^{241}\text{Am-Be}$):

La source de neutrons $^{241}\text{Am-Be}$ que nous avons utilisée dans ce travail est l'une des sources (α, n) les plus utilisées dans les applications nucléaires en raison d'un bas bruit de fond gamma nécessitant des blindages de protection moins encombrants et rendant ainsi sa manutention plus facile à gérer. En effet, plusieurs radioéléments émetteurs α , notamment le ^{226}Ra ont des descendants qui constituent une source supplémentaire de bruit de fond gamma, malgré leur contribution à l'augmentation du rendement en particules α .

La source $^{241}\text{Am-Be}$ est largement utilisée dans la calibration des dispositifs de caractérisation des champs neutroniques ainsi que dans diverses autres applications, notamment l'analyse par activation neutronique. De ce fait, l'Organisation Internationale des Standards (ISO) recommande, de ré-étalonner cette source tous les 5 ans [06].

Le spectre en énergie ISO de la source Am-Be est représenté en figure (3.2).

La source ^{241}Am -Be possède une période assez longue (458 ans). Son activité étant de (01) Curie, elle délivre un taux de 82 neutrons pour 10^6 particules α , ce qui représente un débit de fluence des neutrons de l'ordre de $2,2 \cdot 10^6$ neutrons par seconde ; à partir de la réaction de production des neutrons:



En plus des neutrons, la source émet un rayonnement γ de 4.43 MeV provenant de la désexcitation du $^{12}\text{C}^*$. Le rapport du taux d'émission de ce gamma (4.43 MeV) à celui des neutrons est 0.596.

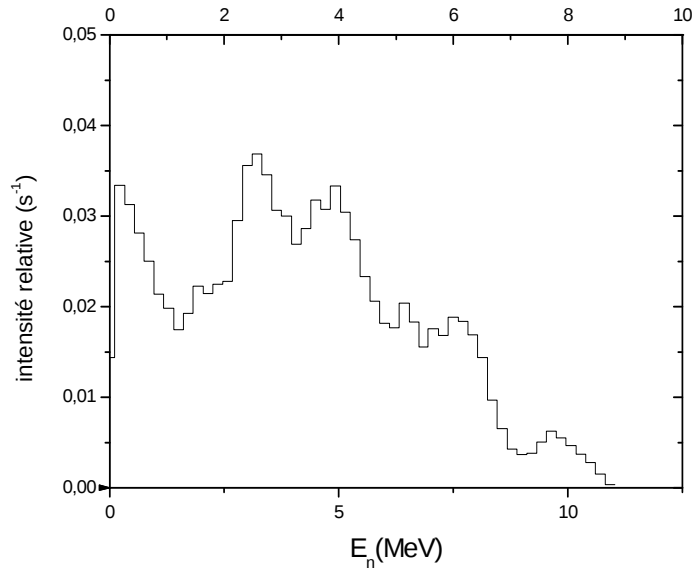


Figure 3.2: Le spectre en énergie de la source Am-Be [06]

La source est cylindrique d'un diamètre de 36.25 mm et de 50.8 mm de hauteur. En raison de l'activité importante de l'américium utilisé, le mélange Am-Be de la partie active est enfermé dans une double capsule en acier (figure 3.3) composée d'un cylindre de 17,5 mm de diamètre et 17,5 mm de hauteur et entourée d'acier inoxydable (figure 3.4).

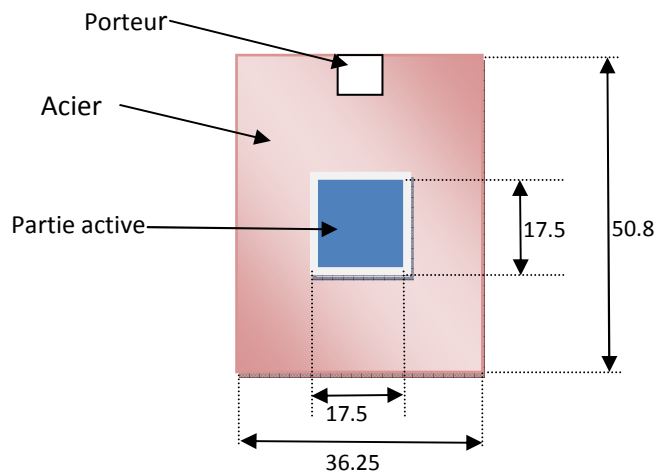
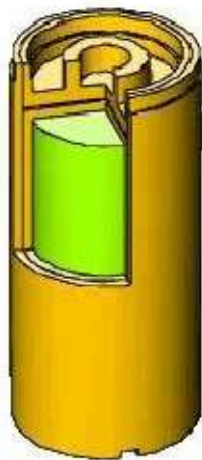


Figure 3.3: La source Am-Be [20]

Figure 3.4: Schéma de la source Am-Be [20]

3.3. Les techniques et instruments de mesure du flux neutronique :

Nous avons utilisé deux techniques pour la mesure du flux neutronique, d'où la nécessité de décrire les deux méthodes de détection: la méthode directe fait appel au compteur proportionnel à gaz (^3He), alors que la méthode des feuilles d'activation nécessite l'utilisation d'un détecteur à semi-conducteurs Ge (Hp) (germanium hyper pur) pour la détection des gammas.

3.3.1. La méthode directe avec le détecteur à gaz (^3He):

La méthode directe pour le calcul du flux moyen de neutrons thermiques consiste à utiliser le compteur proportionnel à gaz ^3He associé à un débitmètre (ratemeter). Cet appareil de mesure donne directement le nombre de coups enregistré dans le détecteur, ce nombre divisé par le temps de comptage donne l'intensité I définie par: $I = \text{nombre de coups} / t_c \text{ (cps)} \dots (3.1)$

L'intensité I est proportionnelle au flux thermique moyen, elle représente la valeur du flux que multiplie la sensibilité du détecteur. Cette sensibilité étant le rendement du détecteur utilisé, elle est donnée par le constructeur.

Pour le détecteur que nous avons utilisé, elle est de 21.8 coups par seconde (cps) pour un flux thermique de $1 \text{ n.cm}^{-2}.\text{s}^{-1}$.

Le détecteur utilisé de marque BICRON (modèle 252) est de forme cylindrique (figure 3.5), ses dimensions sont représentées sur la figure (3.6) et ses caractéristiques à la date d'acquisition (1989) sont résumées dans le tableau (3.1).



Figure 3.5: Le détecteur à gaz ^3He : LND (« LUDLUM » modèle 252)

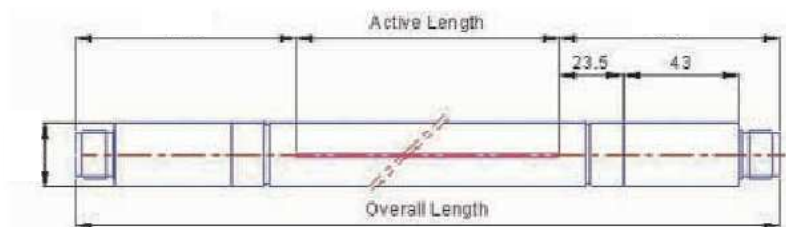


Figure 3.6: Description du détecteur à gaz ^3He

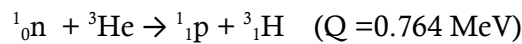
3.3.1.1. Principe de détection des neutrons thermiques avec détecteur le à gaz ^3He :

Les neutrons étant des particules non ionisantes, ils produisent en traversant un milieu, des particules chargées ou des rayonnements γ . Les neutrons sont détectés par le biais des particules qu'ils produisent dans le milieu de détection.

De ce fait, les détecteurs de neutrons peuvent aussi, être sensibles à des particules chargées parasites, on devra alors discriminer entre, par exemple, l'effet des neutrons et celui de rayonnements γ les accompagnants et induisant aussi de l'ionisation. Des méthodes variées permettent d'y parvenir, soit en prenant en compte la rapidité différente des impulsions électroniques engendrées, soit en utilisant les différences de parcours dans la matière pour les diverses particules.

Le compteur proportionnel à gaz (^3He), permet la séparation des interactions dans le milieu détecteur grâce à son amplification interne. Un simple seuil électronique suffit pour distinguer les impulsions dues aux réactions nucléaires, des impulsions parasites dues aux photons.

Ainsi, en utilisant le compteur proportionnel à gaz ^3He , la détection des neutrons s'effectue en passant par les produits de la réaction de capture neutronique :



La section efficace de cette réaction pour les neutrons thermiques (d'environ 0.025 eV) est de 5330 barns. Quand l'énergie du neutron augmente, la section efficace de cette réaction décroît rapidement en $1/v$, v étant la vitesse du neutron incident [02,07]

L'énergie mesurée dans le détecteur est la somme de l'énergie cinétique du neutron incident et de l'énergie Q libérée dans la réaction qui est distribuée entre les produits de réaction. Ceux-ci sont émis dans des directions opposées, avec les énergies :

$$E_p = 0.573 \text{ MeV} \text{ et } E_{^3_1\text{H}} = 0.191 \text{ MeV} \quad \dots (3.2).$$

Le bilan de réaction étant assez important (0.764 MeV) comparé à l'énergie du neutron incident (neutron lent), il est difficile d'extraire l'information sur l'énergie du neutron incident.

3.3.1.2. Caractéristiques du détecteur à gaz ^3He :

Le détecteur à gaz représenté en figure (3.6) est constitué d'une enceinte cylindrique (cathode) reliée à la masse, traversée par un fil conducteur central (anode) porté à un potentiel élevé ($\geq 1000 \text{ V}$) et remplie d'un gaz ^3He . La valeur du champ électrique étant assez élevée, les électrons produits dans l'ionisation suite à la réaction précédente sont suffisamment accélérés pour provoquer eux-mêmes l'ionisation, il y a donc amplification du processus. Tant que l'amplification n'est pas trop grande (le facteur d'amplification peut tout de même atteindre 10^6), la charge collectée reste proportionnelle à l'énergie déposée dans le diélectrique.

La précision dans la mesure de l'énergie dépend néanmoins de la géométrie du détecteur qui influe notamment sur les temps de collection des électrons et des ions.

En effet, dans un détecteur de large volume, les produits de réaction précédents perdraient toute leur énergie (0.764 MeV) dans le gaz loin des parois et on obtiendrait un spectre simple composé d'un pic à l'énergie de 0.764 MeV. Et du fait que souvent le diamètre du compteur n'est pas trop grand comparé au parcours des produits de la réaction, certains ions ne

déposeront pas toute leur énergie dans le gaz et vont percuter les parois du compteur, on enregistre alors une impulsion d'énergie inférieure : c'est ce que l'on appelle le phénomène des parois.

L'hélium 3 est donc idéal car il peut supporter des pressions de plusieurs bars, et offre alors la possibilité de réaliser des compteurs à la fois sensibles et de petit volume. De plus, ces détecteurs ont une bonne tenue pour des températures supérieures à la température ambiante, et montrent une très faible sensibilité aux rayons gammas.

Tableau (3.1) : Caractéristiques du détecteur à gaz ^3He -LND- (modèle 252)

Pression du gaz ^3He	3040 (torr)
Matériau de la cathode	Aluminium
Longueur effective	203.2 (mm)
Volume effectif	89.01 (cm ³)

3.3.2. Les feuilles d'activation associées à la spectrométrie gamma :

Certains matériaux s'activent sous l'effet des neutrons et deviennent radioactifs (émetteurs β ou γ). C'est le principe de l'activation neutronique. Les réactions de capture radiative (n, γ) étant prépondérantes aux basses énergies, nous utilisons l'indium qui possède une section efficace très importante pour les neutrons d'énergies thermique et épithermique dans la capture radiative $^{115}\text{In} (n, \gamma) ^{116}\text{In}$ [07].

Le flux de neutrons d'intérêt peut être alors décomposé en termes de densité neutronique comme suit :

$$n(v) = n_{th}(v) + n_{epi}(v) \quad \dots (3.3)$$

où n_{th} la densité des neutrons thermiques, n_{epi} la densité de neutrons épithermiques et v la vitesse des neutrons.

Le spectre des neutrons thermiques étant représenté par la distribution de Maxwell-Boltzmann, le flux thermique s'exprime par :

$$\varphi_{th} = n_{th} v_0 \quad \dots (3.4)$$

Cependant, le spectre énergétique du flux épithermique peut être approximé par une distribution en $1/E$, il est formulé par :

$$n_{epi}(v) v dv = \varphi_{epi} dE/E \quad \dots (3.5)$$

Dans un milieu ralentisseur avec une faible résonnance de capture, φ_{epi} est donné par :

$$\varphi_{epi} = \frac{q_0}{\xi n \sigma_s} \quad \dots (3.6)$$

où q_0 est l'intensité de la source de neutrons, ξ la moyenne du logarithme de la perte d'énergie relative par collision (léthargie), n la densité atomique du milieu ralentisseur et σ_s la section efficace microscopique de diffusion.

De plus, le taux de réaction de capture moyen pour des éléments présentant des sections efficaces variant en $1/v$, est donné par :

$$\langle R \rangle_{1/v} = \frac{m}{M} N_A \theta [\bar{n}_{th} v_0 \sigma_0 + \bar{\varphi}_{epi} I] = \frac{m}{M} N_A \theta [\bar{\varphi}_0 \sigma_0 + \bar{\varphi}_{epi} I] \quad \dots (3.7)$$

où: m la masse de la feuille d'indium, M sa masse atomique, N_A le nombre d'Avogadro

θ l'abondance isotopique, σ_0 la section efficace thermique

v_0 la vitesse la plus probable des neutrons thermiques ($v_0=2200\text{m/s}$)

I est l'intégrale de résonnance, utilisée pour l'évaluation du nombre de captures radiatives par unité de temps au niveau de la résonnance, elle est définie par : $I = \int_{E_1}^{E_2} \sigma(E) \frac{dE}{E} \dots (3.8)$

(avec σ la section efficace de capture radiative, E_1 et E_2 sont les bornes de la résonnance)

$\bar{n}_{th}$, $\bar{\varphi}_0$, $\bar{\varphi}_{epi}$ sont les moyennes sur le volume de l'échantillon de la densité neutronique totale, le flux thermique et le flux épithermique, respectivement.

Quand aux éléments dont la section efficace de capture radiative n'obéit pas à la loi en $1/v$, on utilise le facteur effectif g , appelé communément facteur de Westcott (qui tient compte de l'écart de la section efficace par rapport à la loi en $1/v$), il est tabulé pour un grand nombre d'éléments en fonction de la température. Le taux de réaction de capture s'exprime dans ce cas par:

$$\langle R \rangle_{non1/v} = \frac{m}{M} N_A \theta [\bar{\varphi}_0 g \sigma_0 + \bar{\varphi}_{epi} I] \dots (3.9)$$

3.3.2.1. Principe de la méthode des feuilles d'activation pour le calcul du flux neutronique:

La méthode consiste à activer les feuilles d'indium et induire la réaction nucléaire $^{115}\text{In}(n,\gamma)^{116}\text{In}$. Le flux des neutrons est alors déduit [27, 30] par la mesure du rayonnement γ émis (par le radioélément produit ^{116m}In), à l'aide du détecteur à semi-conducteurs Ge(Hp) (germanium hyper pur).

Cette mesure s'effectue en utilisant l'activité induite A des états isométriques $m1$ et $m2$ de ^{116}In , après un temps d'irradiation t_i et un temps de décroissance t_d qui est donnée par :

$$A = R(1 - e^{-\lambda t_i})e^{-\lambda t_d} = \frac{m}{M} N_A \theta (\sigma_0 \varphi_0 g + \varphi_{epi} I)(1 - e^{-\lambda t_i})e^{-\lambda t_d} \dots (3.10)$$

où: R est le taux de réaction de capture neutronique donné par :

$$R = \frac{m}{M} N_A \theta [\varphi_0 \sigma_0 g + \varphi_{epi} I] \dots (3.11)$$

λ constante de désintégration de l'isomère ^{116m}In (de période $T_{1/2} = 54 \text{ min}$)

φ_0 et φ_{epi} sont respectivement le flux thermique et le flux épithermique

L'activité A est déterminée par la mesure du nombre de gammas émis N_γ avec l'expression:

$$N_\gamma = A \varepsilon_\gamma I_\gamma (1 - e^{-\lambda t_c})/\lambda \dots (3.12)$$

où ε_γ est l'efficacité absolue de détection pour l'énergie de la raie gamma utilisée,

I_γ l'intensité de celle-ci (rapport d'embranchement) et t_c le temps de comptage.

Si on irradie la même feuille d'indium avec une enveloppe en cadmium, et en raison de l'énergie de coupure de celui-ci, seuls les neutrons épithermiques activeront la feuille d'indium. On obtient alors pour l'activité induite une équation similaire à (3.10) avec un taux de réaction constitué uniquement de la contribution épithermique. Cette activité induite avec le cadmium $A_{a\,cd}$ s'écrit comme suit :

$$A_{a\,cd} = \frac{m}{M} N_A \theta \varphi_e I (1 - e^{-\lambda t_i}) e^{-\lambda t_d} \quad \dots (3.13)$$

On mesure ensuite le nombre de gamma $N_{\gamma,a\,cd}$ émis par la feuille activée avec l'enveloppe de cadmium.

Enfin, on peut déduire le flux épithermique puis le flux thermique par les expressions suivantes :

$$\varphi_e = N_{\gamma,a\,cd} / \left[\frac{m}{M} N_A \theta I \varepsilon_\gamma I_\gamma (1 - e^{-\lambda t_i}) e^{-\lambda t_d} (1 - e^{-\lambda t_c}) / \lambda \right] \quad \dots (3.14)$$

$$\varphi_0 = (N_\gamma - N_{\gamma,a\,cd}) / \left[\frac{m}{M} N_A \theta \sigma_0 \varepsilon_\gamma I_\gamma g (1 - e^{-\lambda t_i}) e^{-\lambda t_d} (1 - e^{-\lambda t_c}) / \lambda \right] \quad \dots (3.15)$$

3.3.2.2. Interaction des gammas avec la matière:

La détection des gammas suite à leur interaction dans la matière [07] s'effectue suivant trois processus :

- L'effet photoélectrique dans lequel le photon interagit avec l'atome, il est complètement absorbé et donne naissance à un photoélectron issu des couches profondes de l'atome. L'énergie du photoélectron émis est égale à l'énergie du photon à laquelle il faut soustraire l'énergie de liaison de l'électron. Ce processus est dominant pour les basses énergies des gammas et la probabilité d'interaction par ce phénomène est importante pour les matériaux absorbants ayant un numéro atomique Z élevé.
- L'effet de diffusion Compton a lieu entre le gamma incident et un électron du matériau absorbant. Le photon gamma est dévié d'un certain angle de sa direction originale et transfère une partie de son énergie à l'électron appelé électron de recul. Comme tous les angles de diffusion sont possibles, l'énergie transférée à l'électron peut varier de zéro jusqu'à une grande partie de l'énergie du gamma incident. La probabilité de la diffusion Compton dépend du nombre d'électrons disponibles et varie donc linéairement avec Z .
- L'effet de création de paire est observé quand l'énergie du gamma dépasse deux fois l'énergie de la masse au repos d'un électron (≥ 1.02 MeV). La probabilité d'interaction par ce phénomène devient importante aux hautes énergies dépassant plusieurs MeV. L'interaction se produit entre le gamma et le champ coulombien du noyau et se traduit par la disparition du

gamma et la création d'une paire électron-positron. L'excès d'énergie transporté par le photon au dessus de 1.02 MeV nécessaire pour la création de paire est distribué en énergie cinétique au positron et à l'électron ainsi créés. Après ralentissement dans le matériau absorbant, le positron va s'annihiler avec un électron pour donner deux photons de 511 KeV (produits secondaires de l'interaction).

Pour la détection des gammas, l'effet d'absorption photoélectrique consiste à libérer un photoélectron transportant presque toute l'énergie du photon incident, avec un ou plusieurs électrons de faible énergie correspondant à l'absorption de l'énergie de liaison originale du photoélectron.

Si rien ne s'échappe du matériau utilisé pour la détection, la somme des énergies cinétiques des électrons créés doit être égale à l'énergie originale du photon gamma. Par conséquent, l'absorption photoélectrique est un processus idéal pour mesurer l'énergie des gammas.

De plus, la réponse d'un détecteur de gammas va dépendre de ses dimensions, de sa forme, de sa composition ainsi que de la géométrie des conditions d'irradiation [27, 30].

Système de détection et instruments de mesure :

La chaîne de détection des photons gamma illustrée en figure (3.7) comprend un détecteur à semi-conducteurs Ge(Hp) (germanium hyper) et son électronique associée constituée d'un préamplificateur de charge, d'une alimentation en haute tension pour assurer la polarisation du détecteur, d'un amplificateur linéaire et enfin d'un convertisseur analogique digital couplé à un ordinateur.

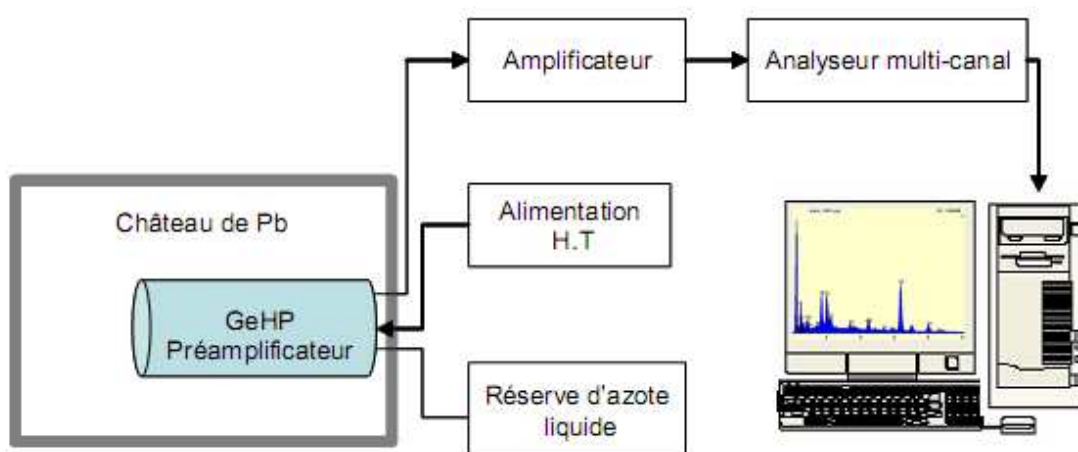


Figure 3.7: La chaîne de détection des photons gamma

1. Le détecteur à semi-conducteurs Ge (Hp) (germanium hyper pur) :

Dans un milieu solide, la collection des charges dues à l'ionisation permet d'obtenir les détecteurs à semi-conducteurs, limités sans doute dans leur efficacité par leur volume, mais atteignant un très haut pouvoir de résolution en énergie pour les particules chargées ainsi que pour les photons.

Dans ce type de détecteurs, un électron ne peut passer de la bande de valence à celle de conduction où il sera libre que s'il est excité par une énergie au moins égale à celle caractérisant la bande interdite qui les sépare. Cette énergie est de l'ordre de 1 eV pour les semi-conducteurs. Lorsqu'un électron passe de la bande de valence à celle de conduction, il laisse un trou dans la bande de valence qui, sous l'effet d'un champ électrique, se meut dans la direction opposée à celle de l'électron. C'est la création d'une paire électron-trou.

Les caractéristiques du détecteur :

Le détecteur Ge (HP) (germanium hyper) que nous avons utilisé de marque « ORTEC », est entouré d'un cylindre en aluminium peu absorbant pour les gammas.

Le détecteur est caractérisé par sa résolution en énergie et son efficacité de détection.

Pour cela, on refroidit le cristal du semi-conducteur avec de l'azote liquide à la température de : -160°C afin de réduire l'agitation thermique dans le cristal détecteur et améliorer ainsi sa résolution en énergie qui peut atteindre le KeV.

- La résolution en énergie :

Le processus de création de charge étant statistique, le spectre d'une raie gamma donnée montre pour l'effet photoélectrique un pic gaussien dont la largeur à mi-hauteur représente la résolution en énergie.

Elle exprime la capacité d'un détecteur à différencier entre deux particules d'énergies voisines qui arrivent en un temps très réduit. Elle dépend du type de détecteur ainsi que de l'énergie considérée. Elle est souvent exprimée en pourcentage par l'expression:

$$R(\%) = \frac{FWHM}{H_0} \times 100 \dots (3.16)$$

Où :

FWHM : est la largeur à mi-hauteur

H_0 : est la hauteur de l'impulsion

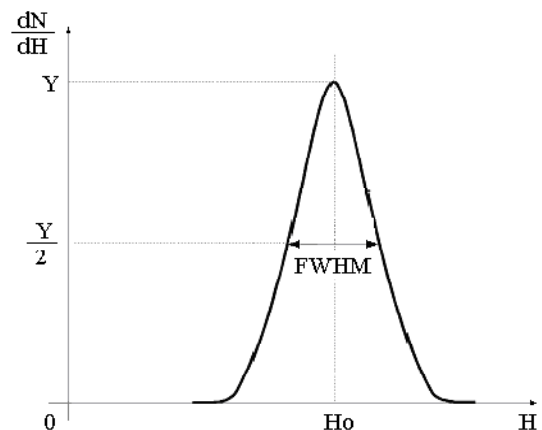


Figure 3.8 : Largeur à mi-hauteur d'un pic [07]

- L'efficacité de détection :

L'efficacité absolue du détecteur pour les gammas d'énergie E, $\epsilon_{abs}(E)$ est définie comme suit :

$$\epsilon_{abs}(E) = \frac{n(E)}{n_\gamma(E)} \quad \dots (3.17)$$

où $n(E)$ est le nombre d'impulsions enregistré sous le pic photoélectrique et $n_\gamma(E)$ le nombre de gammas d'énergie E émis par la source.

Cependant, l'efficacité intrinsèque $\epsilon_{int}(E)$ du détecteur est définie par le rapport du nombre d'impulsions enregistré sous le pic photoélectrique à celui du nombre de gammas incidents dans le détecteur. La relation entre ces deux grandeurs quand la source est isotrope peut s'exprimer par :

$$\epsilon_{abs}(E) = \epsilon_{int}(E) \frac{\Omega}{4\pi} \quad \dots (3.18)$$

où Ω est l'angle solide entre la source et le détecteur.

2. Le préamplificateur de charge (de type RC):

Le préamplificateur de charge est incorporé dans le détecteur, il permet de convertir la charge récoltée aux bornes du détecteur en impulsion et de réduire le bruit de fond en optimisant le rapport signal sur bruit.

3. L'amplificateur linéaire: (EGC ORTEC 570)

L'amplificateur linéaire a pour fonctions :

- d'amplifier les impulsions issues du préamplificateur à des niveaux adéquats pour l'analyse en amplitudes. Ces niveaux se situent entre 0 et 10 Volts.
- la mise en forme des impulsions pour l'amélioration du rapport signal sur bruit.

Une bonne mise en forme permet de minimiser les empilements créés par la superposition des impulsions à des taux de comptages élevés qui perturbent le dénombrement des impulsions ainsi que la mesure de leurs amplitudes.

4. L'analyseur multi-canal :

L'analyseur multi-canal représente l'interface pour la numérisation et l'analyse des signaux électriques. Les impulsions mises en forme sont traitées par un convertisseur analogique digital (Analog to Digital Converter, ADC) qui les classe selon leur amplitude dans un registre mémoire constitué de plusieurs canaux.

L'ensemble convertisseur et registre d'adresse mémoire constitue l'analyseur multi canal (MCA) contenant 4096 canaux. Les nombres d'impulsions dans les différents canaux sont affichés sur écran et constituent le spectre gamma recherché.

Cette visualisation finale s'effectue grâce à un système incorporé ou bien en liaison avec un micro-ordinateur et un logiciel de traitement de spectres « Maestro ».

Chapitre 4 :

Simulations au moyen du code Monté Carlo de transport de photons et de neutrons (MCNP5)

Introduction :

La simulation du dispositif expérimental en vue d'optimiser son fonctionnement suppose l'utilisation du calcul de transport des neutrons qui peut être effectué avec des méthodes déterministes ou des méthodes probabilistes (Méthode Monté Carlo).

Ayant affaire dans notre cas à une géométrie complexe, il est difficile de mettre en œuvre des solutions analytiques, d'où le choix de la méthode Monté Carlo qui est la plus appropriée.

Nous avons utilisé pour la modélisation du dispositif expérimental, la version 5 (année 2005) du code Monté Carlo MCNP pour le calcul du transport des neutrons et des photons.

4.1. Modélisation du dispositif expérimental par le code MCNP5 :

Le fichier d'entrée « Input » contient toutes les données indispensables à l'exécution du programme de simulation qui est effectué de la manière suivante :

4.1.1. Description de la modélisation du système:

La modélisation de la géométrie du dispositif expérimental est obtenue en combinant les surfaces de base dans le fichier Input afin de décrire les « cellules » représentant les volumes constituant la géométrie à simuler. Ces cellules fondamentales sont de forme simple et homogène en composition, elles représentent le matériel de l'expérience, à savoir: la source, le détecteur, l'échantillon organique et le bloc réflecteur, dont les caractéristiques sont détaillées sur le tableau (4.1).

Afin de vérifier la géométrie modélisée, illustrée sur les figures (4.1) et (4.2), il est possible de la valider à l'aide d'un logiciel nommé **Vised**. Ce programme de visualisation permet de vérifier la description de la géométrie en 2D et 3D avant d'exécuter une simulation.

Il suffit alors de cliquer sur les différentes parties de l'écran pour avoir accès aux fonctions « zoom » ou « changement de vue » (pour les différents plans de coupe : XY, YZ et ZX). D'autres informations supplémentaires telles que les numéros de cellule, les densités et les importances peuvent être affichées à l'écran.

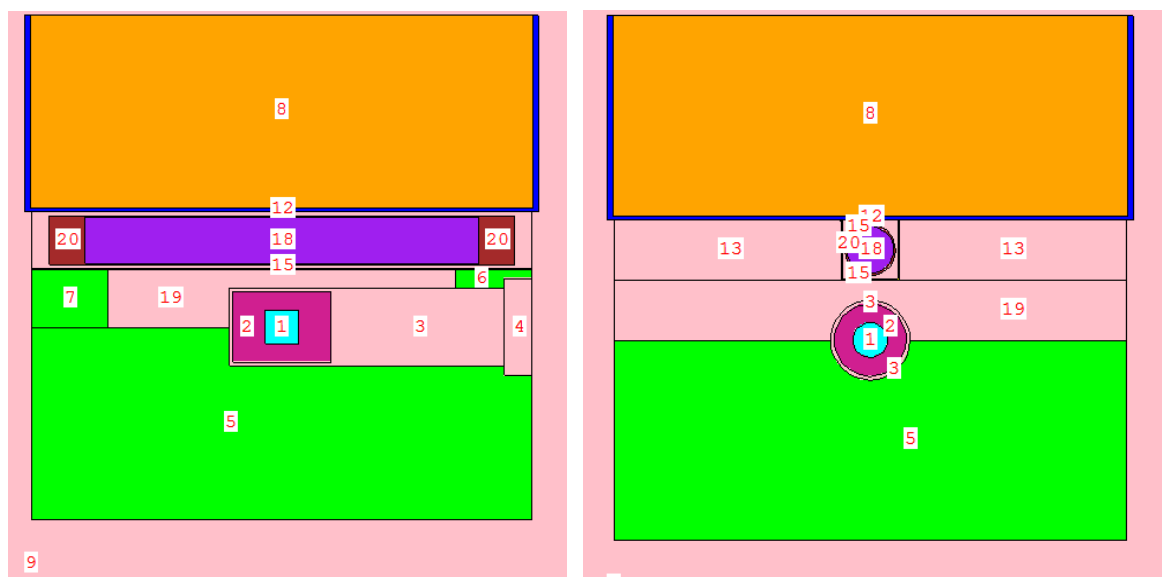


Figure 4.1: Vue de côté et vue de face par rapport à la position de la source

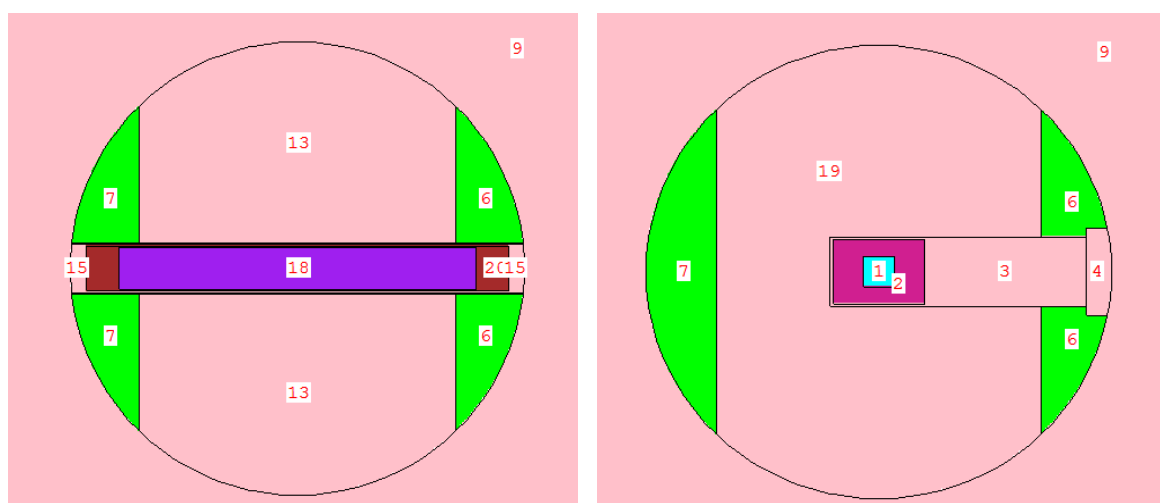


Figure 4.2 : Coupe horizontale au niveau du détecteur puis au niveau de la source

Tableau 4.1 : Description des cellules

Numéro des cellules	Cellule	Matériau dans la cellule
1	Source	Américium-Béryllium
2	Blindage de la source	Acier inoxydable
8	Echantillon	Eau
12	Porte- échantillon	Aluminium
11	Ecran	Cadmium
5, 6, 7	Réflecteur	Polyéthylène
3, 4, 9, 13, 15, 19	Environnement (laboratoire)	Air ambiant
18	Détecteur	Hélium 3
20	Enveloppe du détecteur	Aluminium de pureté nucléaire

Les erreurs dans la géométrie :

Les erreurs de géométrie se traduisent par :

- une erreur grave empêchant la compilation,
- des lignes pointillées rouges et un message d'erreur dans le module de géométrie,
- dans l'exécution (le « run ») où les particules perdues mettent fin au calcul (après 10 particules perdues).

La recherche des erreurs pour les géométries simples consiste à visualiser les lignes rouges pour trouver les erreurs et les corriger.

Dans le cas de géométries plus complexes, il faut étudier les particules perdues (surface traversée en dernier, cellule rencontrées avant disparition, ...etc).

4.1.2. Introduction des caractéristiques de la source:

Le code MCNP5 considère les sources isotropes par défaut, la définition de la source notée : SDEF (Source Definition) permet de spécifier l'énergie des neutrons émis, sinon le code considère l'énergie d'émission par défaut égale à 14 MeV.

Dans notre cas, nous introduisons l'intensité d'émission de la source isotrope Am-Be (notée WGT), la nature des particules émises (par=1 pour le neutron) ainsi que la distribution du spectre d'émission en énergie de la source Iso (tableau4.2) sous la forme de groupes d'émission φ_i , représentant des intervalles d'énergie d'émission des neutrons entre E_i et E_{i+1} :

$$\varphi_i = \int_{E_i}^{E_{i+1}} \varphi_E dE \dots (4.1)$$

où ϕ_E est l'émission spectrale de la source.

Les valeurs ϕ_i données sont des valeurs expérimentales normalisées à l'unité:

$$\sum_{i=1}^n \phi_i = 1 \quad (s^{-1}) \quad \dots (4.2)$$

Tableau 4.2 : Groupes d'émission de la source Iso ($^{241}\text{Am-Be}$) [24]

$E_i(\text{MeV})$	$\phi_i(s^{-1})$	$E_i(\text{MeV})$	$\phi_i(s^{-1})$
4,14E-07	-	5,68	2,33E-02
0,11	1,44E-02	5,89	2,06E-02
0,33	3,34E-02	6,11	1,82E-02
0,54	3,13E-02	6,32	1,77E-02
0,75	2,81E-02	6,54	2,04E-02
0,97	2,50E-02	6,75	1,83E-02
1,18	2,14E-02	6,95	1,55E-02
1,4	1,98E-02	7,18	1,75E-02
1,61	1,75E-02	7,39	1,68E-02
1,82	1,92E-02	7,61	1,88E-02
2,04	2,23E-02	7,82	1,84E-02
2,25	2,15E-02	8,03	1,69E-02
2,47	2,25E-02	8,25	1,44E-02
2,68	2,28E-02	8,46	9,68E-03
2,9	2,95E-02	8,68	6,52E-03
3,11	3,56E-02	8,89	4,26E-03
3,32	3,69E-02	9,11	3,67E-03
3,54	3,46E-02	9,32	3,81E-03
3,75	3,07E-02	9,53	5,06E-03
3,97	3,00E-02	9,75	6,25E-03
4,18	2,69E-02	9,96	5,52E-03
4,39	2,86E-02	10,2	4,68E-03
4,61	3,18E-02	10,4	3,70E-03
4,82	3,07E-02	10,6	2,78E-03
5,04	3,33E-02	10,8	1,51E-03
5,25	3,04E-02	11	3,63E-04
5,47	2,74E-02		

Les caractéristiques de la source sont introduites dans le fichier Input de la manière suivante:

```
Sdef cel=1 erg=d1 par=1 WGT=2.2E6

si1 h 4.14e-7 0.11 0.33 0.54 0.75 0.97 &
      1.18 1.40 1.61 1.82 2.04 2.25 &
      2.47 2.68 2.90 3.11 3.32 3.54 &
      3.75 3.97 4.18 4.39 4.61 4.82 &
      5.04 5.25 5.47 5.68 5.89 6.11 &
      6.32 6.54 6.75 6.96 7.18 7.39 &
      7.61 7.82 8.03 8.25 8.46 8.68 &
      8.89 9.11 9.32 9.53 9.75 9.96 &
      10.20 10.40 10.60 10.80 11.00

sp1 0.00e+0 1.44e-2 3.34e-2 3.13e-2 2.81e-2 2.50e-2 &
     2.14e-2 1.98e-2 1.75e-2 1.92e-2 2.23e-2 2.15e-2 &
     2.25e-2 2.28e-2 2.95e-2 3.56e-2 3.69e-2 3.46e-2 &
     3.07e-2 3.00e-2 2.69e-2 2.86e-2 3.18e-2 3.07e-2 &
     3.33e-2 3.04e-2 2.74e-2 2.33e-2 2.06e-2 1.82e-2 &
     1.77e-2 2.04e-2 1.83e-2 1.63e-2 1.68e-2 1.68e-2 &
     1.88e-2 1.84e-2 1.69e-2 1.44e-2 9.68e-3 6.52e-3 &
     4.26e-3 3.67e-3 3.81e-3 5.06e-3 6.25e-3 5.52e-3 &
     4.68e-3 3.70e-3 2.78e-3 1.51e-3 3.63e-4
```

Figure 4.3: Caractéristiques de la source dans le fichier Input

Avec `erg=d1`, la distribution d'énergie de la source précisée en « si 1 » par les intervalles d'énergie dans l'ordre croissant avec les probabilités « sp1 » pour chacune de ces énergie.

4.1.3. Composition atomique des matériaux :

La composition atomique exacte des matériaux composant chaque cellule (tableau 4.3) est définie dans le fichier Input avec le choix des sections efficaces d'interaction associées aux différents noyaux atomiques considérés. **+composition atomique en % ds tab**

Tableau 4.3 : Matériaux utilisés dans la simulation

N° de cellule	Cellule	Matériau dans la cellule	Densité (g/cm ³)
1	Source	Américium-Béryllium	0.482
2	Blindage de la source	Acier inoxydable	7.9
8	Echantillon	Eau	1
12	Porte- échantillon	Aluminium	2.7
11	Ecran	Cadmium	8.642
5	Réflecteur	Polyéthylène	0.94
9	Environnement (laboratoire)	Air ambiant	0.0012084
18	Détecteur	Hélium 3	0.0001002
20	Enveloppe du détecteur	Aluminium de pureté nucléaire	2.7

4.1.4. Spécification des résultats souhaités (tallies) et exécution du programme:

La nature des résultats que l'on souhaite obtenir avec le code MCNP5 est précisée avec l'un des « *tallies* » prévus pour le calcul du flux de particules tel que: F1 et F2 (Flux à travers la surface), F4 (Flux moyen sur un volume) ou F5 (Flux en un point).

Dans notre cas, le tally « F4 » (associé à « E4 » pour l'énergie) calcule le flux moyen des neutrons d'énergie inférieure à 0.4 eV sur le volume de « la cellule 18 » (représentant le détecteur) par la notation suivante dans le fichier Input :

```
f4: n 18
e4: 4.e-7
```

Ce calcul est effectué en utilisant l'intégrale:

$$F_4 = \iiint_{V,t,E} \phi(\vec{r}, E, t) dE dt \frac{dV}{VT} \dots (4.3)$$

où : $\phi(\vec{r}, E, t)$ est le flux de particules d'énergie E à la position $\vec{r}$ et à l'instant t traversant le volume V. dV étant l'élément de volume autour de la position $\vec{r}$ et T, le temps d'irradiation.

L'erreur sur la simulation :

L'erreur sur la simulation donnée par la méthode de Monte-Carlo est l'erreur statistique, elle varie avec le nombre d'histoires, c'est le nombre de particules créées dans la source et l'environnement de la modélisation. Plus ce nombre est grand, plus l'erreur statistique diminue, mais le temps de calcul devient plus important.

On note que le temps de calcul dépend aussi de la complexité de la géométrie et des dimensions du dispositif.

4.2. Validation de la modélisation du dispositif expérimental :

La validation consiste à évaluer l'écart entre les valeurs simulées du flux thermique moyen et celles mesurées expérimentalement en utilisant les deux techniques de mesure du flux neutronique décrites dans le chapitre précédent, à savoir, le comptage direct avec le détecteur (^3He) et la méthode des feuilles d'activation.

A cet effet, nous avons calculé à l'aide du code MCNP5 pour la modélisation précédente le flux moyen des neutrons thermiques rétrodiffusés dans la cellule du détecteur (cellule 18) pour différentes valeurs de l'épaisseur de l'échantillon d'eau. Les résultats sont présentés sur la figure (4.4).

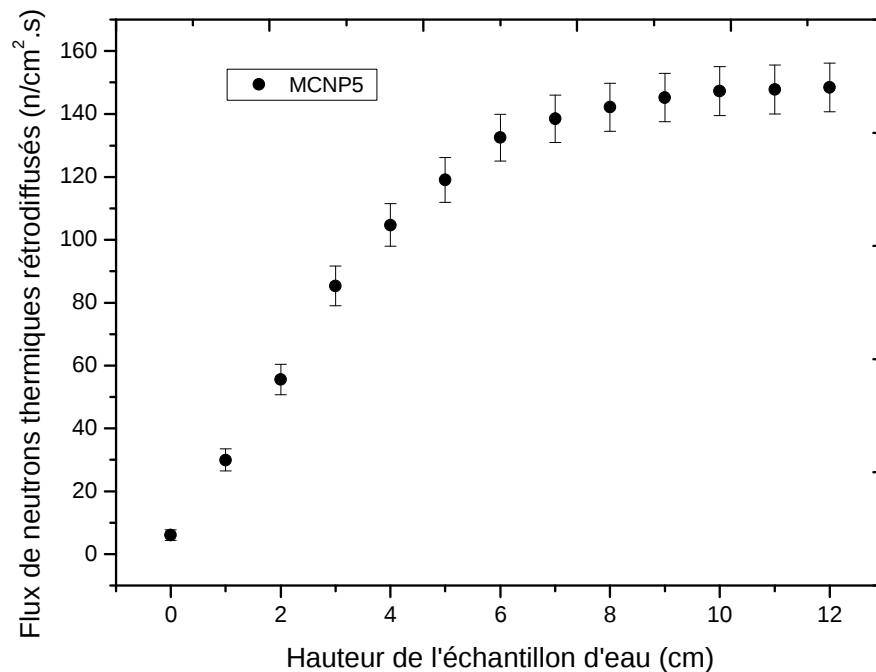


Figure 4.4: Courbe de variation du flux des neutrons thermiques rétrodiffusés en fonction de l'épaisseur de l'échantillon par simulation.

4.2.1. Mesures expérimentales du flux de neutrons thermiques au moyen du détecteur (^3He) :

La validation des résultats de la simulation a été effectuée au laboratoire de la division des techniques nucléaires (DTN) du Centre de Recherche Nucléaire d'Alger (CRNA), par des mesures expérimentales du flux moyen des neutrons thermiques rétrodiffusés par un échantillon d'eau.

La méthode expérimentale directe consiste à mesurer le flux neutronique rétrodiffusé par l'échantillon d'eau contenu dans un porte échantillon cylindrique en aluminium d'un diamètre de 26 cm et de 12 cm de hauteur. L'aluminium a été choisi car il présente une faible absorption des neutrons, il a donc peu d'influence sur les résultats de l'expérience.

Nous mesurons dans un premier temps le bruit de fond en utilisant le porte échantillon vide, puis la source de neutrons ($^{241}\text{Am-Be}$) est tirée manuellement de son blindage et placée dans son compartiment en dessous du détecteur et de l'échantillon d'eau des-ionisée pour l'irradiation.

Le comptage est lancé pendant un temps (t_c) variant entre 30 et 60 seconde, on mesure à chaque épaisseur de l'eau le taux de comptage correspondant à l'aide du ratemeter associé au détecteur ^3He . Cet appareil de mesure donne directement le nombre de coups que l'on divise par le temps de comptage, pour obtenir une valeur proportionnelle au flux thermique moyen notée I , telle que: $I = \text{nombre de coups} / t_c \text{ (cps)} \dots(4.4)$

Le rendement du détecteur utilisé étant de 21.8 coups par seconde (cps) pour un flux thermique de 1 ($\text{n.cm}^{-2}.\text{s}^{-1}$). Ainsi, les mesures du flux des neutrons thermiques rétrodiffusés pour les différentes épaisseurs de l'échantillon d'eau sont présentées sur la figure (4.5).

Pour chaque épaisseur d'eau, six mesures ont été effectuées afin de réduire l'erreur statistique sur les taux de comptage déterminés.

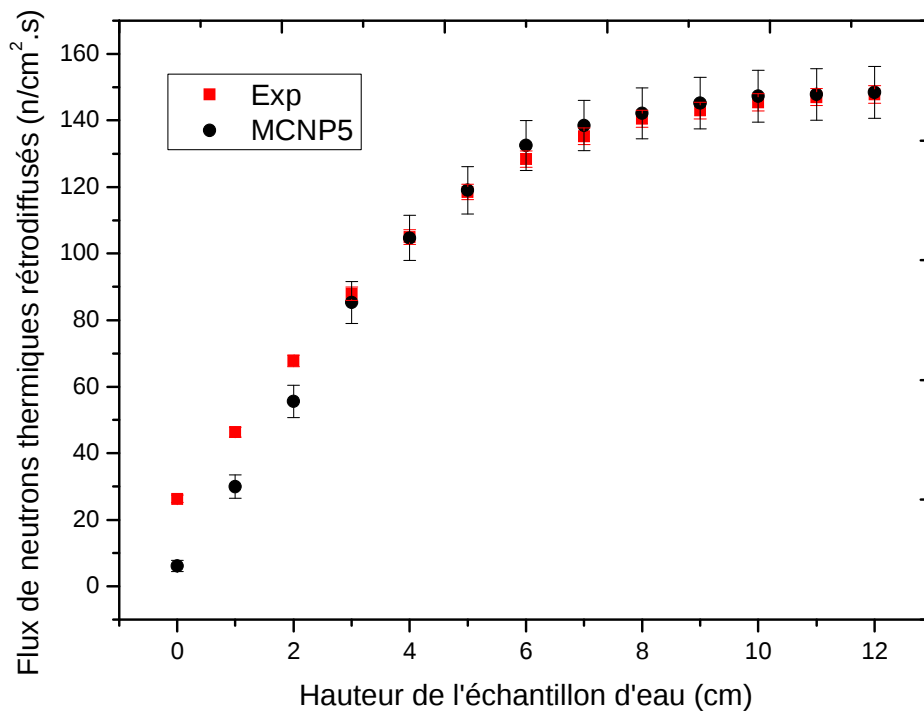


Figure 4.5: Courbe de variation du flux des neutrons thermiques rétrodiffusés en fonction de l'épaisseur de l'échantillon

Discussion et comparaison des résultats:

La courbe obtenue montre que le flux augmente pour se stabiliser à partir d'une épaisseur de 10 cm d'eau, c'est la valeur à partir de laquelle les variations du flux rétrodiffusé sont minimales. Cette saturation s'explique par le fait qu'un certain équilibre est atteint entre la diffusion et l'absorption des neutrons thermiques dans ce volume.

En adoptant l'épaisseur de 10 cm, le volume optimal correspondant est alors de $5309,29 \text{ cm}^3$. Il y a lieu d'ajouter qu'utiliser le dispositif avec ce volume optimal de l'échantillon à analyser situé sur le plateau de saturation permet de réduire sensiblement les erreurs induites par les variations de volumes sur l'intensité du flux.

L'erreur statistique sur les valeurs expérimentales représente l'écart type sur les six mesures effectuées pour chaque épaisseur.

L'erreur statistique sur la simulation est donnée par MCNP5, elle varie avec le nombre d'histoires, ce nombre a été choisi égal à 1 million, afin d'assurer une erreur statistique inférieure à 10 %.

Ce nombre d'histoires choisi est suffisant du fait que le code MCNP5 traite le transport des neutrons thermiques comme étant celui d'un gaz, alors que les neutrons plus énergétiques sont suivis individuellement au cours de leur parcours. C'est la raison pour laquelle l'erreur statistique tolérée pour les neutrons thermiques est plus grande (10%) que l'erreur admise pour les neutrons rapides (qui ne doit pas dépasser les 3%).

Cependant, d'autres erreurs interviennent dans la simulation et sont plus importantes que l'erreur statistique. Ce sont les erreurs dues à la modélisation, essentiellement l'erreur sur la position de la source de neutrons et celle du détecteur dans le dispositif modélisé.

Ajoutons à cela l'erreur sur la densité des matériaux et les impuretés qu'ils contiennent étant donné que nous ne disposons pas uniquement de matériaux de pureté nucléaire.

Notons enfin que les mesures expérimentales du flux moyen des neutrons thermiques rétrodiffusés et les valeurs obtenues par simulation sont en bon accord pour tous les points excepté les premières valeurs en dessous de 3 cm d'épaisseur d'eau.

En fait, le code MCNP5 présente souvent un écart par rapport aux valeurs réelles au niveau (ou assez proche) des interfaces. Ceci peut s'expliquer dans notre cas par le fait que le nombre de neutrons rétrodiffusés étant assez faible (dans le volume correspondant à 3 cm d'épaisseur d'eau), les erreurs de simulation se font d'autant plus ressentir.

Plus particulièrement, l'influence de l'erreur sur la densité des matériaux et les impuretés qu'ils contiennent (particulièrement, l'aluminium du porte échantillon), devient considérable lorsque le nombre de neutrons rétrodiffusés par l'eau est faible.

4.2.2. Les mesures expérimentales du flux thermique moyen par les feuilles d'activation:

Dans le but de confirmer les mesures effectuées avec le détecteur ^3He , nous avons utilisé les feuilles d'activation pour mesurer le flux moyen des neutrons thermiques arrivant dans le volume où était placé le détecteur, pour un échantillon d'eau avec le volume optimal déterminé précédemment ($5309,29 \text{ cm}^3$).

La méthode consiste à activer les feuilles d'indium afin de réaliser la réaction nucléaire $^{115}\text{In}(n, \gamma)^{116}\text{In}$. Le flux des neutrons rétrodiffusés est alors déduit par la mesure du rayonnement γ émis (par le radioélément produit $^{116\text{m}}\text{In}$).

Les feuilles d'indium utilisées sont des pastilles d'un diamètre de 10 mm, leur épaisseur est de 0.1 mm. Nous avons utilisé l'indium pour des raisons de facilité de mise en œuvre de la méthode. En effet, les flux de neutrons thermiques que nous mesurons étant relativement faibles ($10^2 \text{ n.cm}^{-2}.\text{s}^{-1}$), nous irradiions jusqu'à obtenir des activités de saturation afin d'avoir une bonne statistique de comptage et donc une meilleure précision dans les mesures.

La période utile de l'Indium étant de 54.3 minutes, quelques heures suffisent pour atteindre ces activités de saturation.

Parmi les isotopes de l'indium, l' ^{115}In est celui qui est caractérisé par les valeurs les plus grandes pour l'abondance isotopiques et la section efficace de capture neutronique. Les radio-isotopes formés par irradiation sont alors constitués essentiellement de l' ^{116}In et de ses deux isomères m1 et m2, comme le montre le schéma de décroissance sur la figure (4.6).

L' ^{116}In et son isomère $^{116\text{m}}\text{In}$ vont décroître en émettant un β pour donner l'isotope stable ^{116}Sn selon la réaction suivante : $^{116}_{49}\text{In} \rightarrow ^{116}_{50}\text{Sn} + e^- + \bar{\nu}$

Tandis que l' ^{116}In décroît de l'état fondamental (1^+) vers l'état fondamental (0^+) du ^{116}Sn en émettant un β , les états isomériques de l' ^{116}In vont décroître vers les états excités du ^{116}Sn donnant alors lieu à l'émission de gammas de différentes énergies.

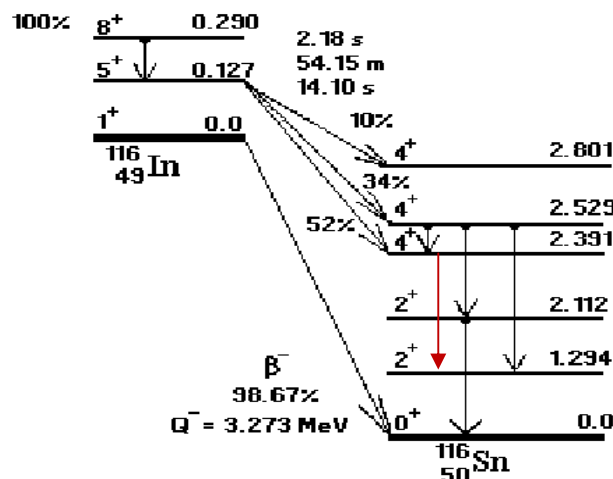


Figure 4.6: Schéma de désintégration de $^{116\text{m}}\text{In}$ [29]

Mesure des gammas avec le détecteur Ge(Hp) :

Les mesures expérimentales ont été effectuées selon les étapes suivantes :

- L'irradiation des feuilles d'indium pendant 3 heures,
- la calibration en énergie de la chaîne de détection et mesure de l'efficacité de détection γ ,
- le comptage (durant 2 heures) après un temps de décroissance de 5 mn, puis l'analyse du spectre obtenu.

Nous avons effectué cette procédure relativement longue (nécessitant une journée) deux fois pour chaque position d'irradiation :

- la première fois avec la feuille d'indium nue où la mesure du flux regroupe les contributions thermique et épi-thermique en terme de taux de réaction.
- la deuxième fois avec la feuille d'indium dans une capsule de cadmium, où la mesure ne présente que la composante épi-thermique du flux moyen.

La soustraction de ces deux mesures permet d'obtenir la valeur du flux thermique moyen.

Les positions d'irradiation montrées en figure (4.7) sont fixées sur la surface de la feuille de cadmium qui couvrait précédemment le détecteur dans la mesure directe (§ 4.2.1).

Puis, ces positions sont élevées à un niveau intermédiaire de ce volume. Enfin, elles sont élevées au niveau supérieur du volume (juste au dessous du porte-échantillon).

L'ensemble de ces positions couvre ainsi, quasiment tout le volume du détecteur dans le dispositif.

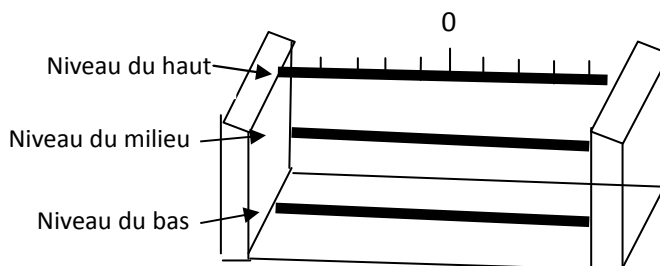


Figure 4.7: Positions d'irradiations sur la feuille d'indium

Nous avons ensuite préparé la chaîne de détection en effectuant sa calibration en énergie avec des sources radioactives standards de calibration (cobalt ^{60}Co et césium ^{137}Cs) émettrices de gammas dont l'énergie et l'intensité sont connues avec précision : les raies caractéristiques du ^{60}Co sont les 1173,2 KeV et 1332,5 KeV, celle du ^{137}Cs est de 661,6 KeV.

Enfin, nous avons utilisé pour la détection des gammas, le détecteur Ge(HP) (germanium hyper pur) de marque « ORTEC ». Le cristal du semi-conducteur est refroidi à l'azote liquide à la température de : (-160°C) afin d'améliorer sa résolution en énergie.

La salle doit être aussi maintenue à une température assez basse pour assurer le bon fonctionnement des circuits électroniques des différents composants de la chaîne de détection.

Après vérification des connexions de tous les composants électroniques de la chaîne, on applique une tension de polarisation au détecteur semi-conducteur Ge(HP) en augmentant la tension très lentement jusqu'à atteindre (- 3000 Volt) qui est la tension nominale de fonctionnement du détecteur.

Calcul de l'efficacité du détecteur Ge(Hp) :

L'utilisation du détecteur de rayonnement gamma Ge(HP) pour la mesure de l'activité nécessite une connaissance précise de ses caractéristiques, particulièrement sa résolution en énergie qui est de 1.9 KeV à l'énergie 1332 KeV, et son efficacité de détection $\varepsilon(E_\gamma)$ en fonction de l'énergie des gammas collectés.

Pour le calcul de l'efficacité par la méthode expérimentale, nous avons besoin de sources d'activités connues. A cet effet, la source de gammas (^{152}Eu) d'activité $A=1721.21$ (Bq) est choisie pour ses nombreuses raies caractéristiques, dont les principales sont notées avec leurs probabilités d'émission dans le tableau (4.4).

Tableau 4.4 : Principales raies γ caractéristiques de ^{152}Eu . [29]

$E_\gamma(\text{keV})$	121.78	244.69	344.28	444.00	778.90
Intensité (%)	28.2	7.4	26.4	3.07	13.0
$E_\gamma(\text{keV})$	867.38	964.05	1085.83	1112.00	1408.03
Intensité (%)	4.16	14.48	10.14	13.55	20.7

L'efficacité absolue de détection $\varepsilon(E_\gamma)$ représentée sur la figure (4.8), s'exprime en pratique au moyen de l'effet photoélectrique (effet prépondérant aux basses énergies), par le rapport de l'aire sous le pic photoélectrique au nombre de gammas émis par la source pendant le temps

de comptage. Elle est calculée par la relation suivante:
$$\varepsilon_\gamma = \frac{N}{AI_\gamma t_c} \dots (4.4)$$

où : N : est le comptage net sous le pic photoélectrique du spectre obtenu,
 I_γ : le rapport d'embranchement
 t_c : le temps de comptage
 A : l'activité de la source

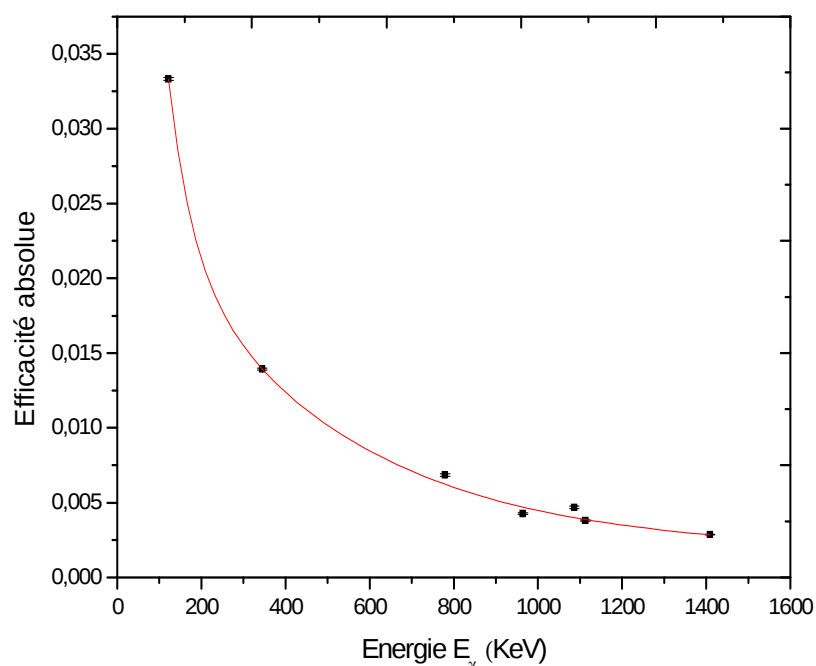


Figure 4.8 : Courbe d'efficacité du détecteur Ge(Hp)

Les mesures du flux thermique moyen:

Après la détermination de l'activité induite A (dans le chapitre précédent § 3.3.2.1) en mesurant les gammas émis par les feuilles d'activation, nous pouvons enfin déduire les valeurs du flux de neutrons thermiques rétrodiffusés par l'expression:

$$\varphi_{th} = \frac{(N_{\gamma} - N_{\gamma,cd})\lambda}{\frac{m}{M}N_A\theta\sigma_0\varepsilon_{\gamma}I_{\gamma}gG_{th}(1-e^{-\lambda t_i})e^{-\lambda t_d}(1-e^{-\lambda t_c})} \dots (4.5)$$

où : N_{γ} est le comptage net sans la capsule de cadmium,

$N_{\gamma,cd}$ est le comptage net avec la capsule de cadmium,

G_{th} est le facteur d'auto-atténuation des neutrons dans la feuille d'indium elle-même,

il vaut (0.867) pour la feuille utilisée de 10 mm de diamètre et 0.1 mm d'épaisseur.

g est le facteur de Westcott, il vaut (1.019) pour l'indium utilisé [27].

Les valeurs du flux thermique ont été calculées pour les raies gamma aux énergies 416 KeV, 1097 KeV et 1293 KeV. Elles sont représentées sur la figure (4.9) pour le pic photoélectrique d'énergie 416 KeV, qui présente la meilleure efficacité de détection.

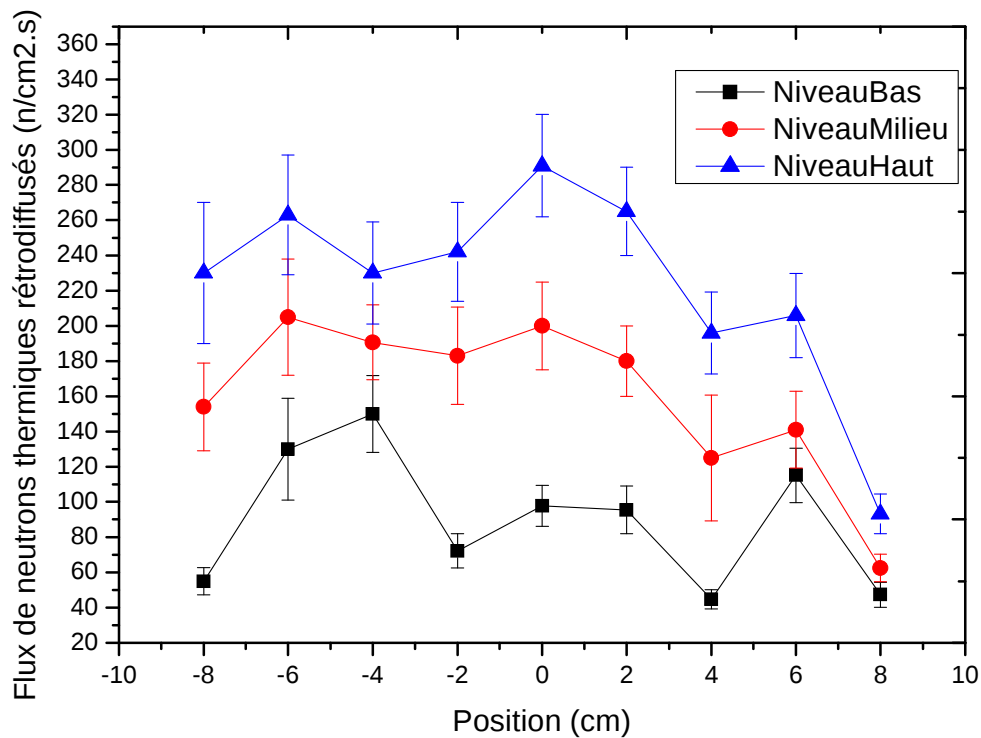


Figure 4.9 : Mesures du flux de neutrons thermiques rétrodiffusés par les feuilles d'activation

Analyse des erreurs sur les mesures du flux thermique par les feuilles d'activation :

La mesure du flux par les feuilles d'activation est sujette à plusieurs causes d'erreurs qui peuvent influencer les résultats des mesures. Ces erreurs peuvent apparaître à chaque étape de l'expérience (irradiation, mesure des activités ou calcul du flux), on en distingue deux types :

- **Les erreurs aléatoires**, qui découlent du phénomène de désintégration radioactive qui est un processus aléatoire, et représente une source inévitable d'incertitude sur les mesures.

- **Les erreurs expérimentales**, sont systématiques et regroupent les incertitudes suivantes [28] :

1. Incertitudes dues aux comptages : sont les erreurs liées à l'appareillage électronique utilisé, elles affectent la mesure des surfaces nettes des photo-pics. Ce sont le phénomène d'empilement et le temps mort.

L'incertitude due à l'empilement est rendue négligeable en travaillant avec des taux de comptage relativement faibles, ne dépassant pas les 2000 cps/s.

La correction due au temps mort du codeur est faite automatiquement par l'analyseur.

De plus, nous avons pris en considération l'incertitude due aux statistiques de comptage dans l'erreur sur le contenu du pic par la formule:

$$\Delta N / N = \sqrt{N + 2B} / N$$

où N est le nombre de coups sous le pic et B celui constituant du bruit de fond.

2. Incertitude sur la mesure de l'efficacité du détecteur: celle-ci est donnée par :

$$\frac{\Delta \varepsilon}{\varepsilon} = \left[\left(\frac{\Delta N}{N} \right)^2 + \left(\frac{\Delta A_0}{A_0} \right)^2 + \left(\frac{\Delta I_\gamma}{I_\gamma} \right)^2 \right]^{1/2}$$

où : $\frac{\Delta I_\gamma}{I_\gamma}$ est l'erreur relative sur l'intensité I_γ des raies gamma.

3. Incertitude sur la mesure du flux : est donnée par :

$$\frac{\Delta \phi}{\phi} = \left[\left(\frac{\Delta N}{N} \right)^2 + \left(\frac{\Delta \sigma}{\sigma} \right)^2 + \left(\frac{\Delta \varepsilon}{\varepsilon} \right)^2 + \left(\frac{\Delta I_\gamma}{I_\gamma} \right)^2 \right]^{1/2}$$

où : $\Delta \sigma / \sigma$ est l'erreur relative sur la section efficace de la réaction nucléaire utilisée.

4. Incertitudes dues à la géométrie de détection : celles-ci peuvent être minimisées en prenant quelques précautions, telles qu'une géométrie reproductible, et cela en utilisant des supports fixés sur l'axe du détecteur où l'on peut placer les échantillons (feuilles d'activation ou sources de calibration), à des positions fixes d'une mesure à l'autre.

4.2.3. Discussion et comparaison des résultats:

La valeur du flux moyen des neutrons thermiques rétrodiffusés déduite des mesures effectuées avec les feuilles d'activation (figure 4.9) est de $(160 \pm 22) \text{ n/cm}^2.\text{s}$

Cependant, la valeur maximale du flux des neutrons thermiques rétrodiffusés atteinte au niveau du pallier de saturation (figure 4.5) avec le détecteur ^3He est de $(147 \pm 2) \text{ n/cm}^2.\text{s}$

Nous pouvons noter que ces valeurs sont comparables, nous observons tout de même un léger écart qui laisse supposer que la calibration actuelle du détecteur ^3He ne correspond pas à celle donnée par le constructeur (la sensibilité utilisée de $21.8 \text{ cps pour } 1 \text{ n.cm}^{-2}.\text{s}^{-1}$).

En fait, le détecteur a été acquis en 1998, sa sensibilité aurait tendance à baisser avec le temps, la quantité et la pression du gaz ont pu diminuer à ce jour, et pourraient avoir une influence sur sa réponse.

4.2.4. Conclusion :

Nous pouvons constater en comparant les deux techniques de mesure du flux de neutrons rétrodiffusés, qu'il y a un gain de temps considérable en utilisant la méthode de rétrodiffusion neutronique avec le détecteur ^3He . En effet, l'expérience prend moins d'une journée pour effectuer toutes les mesures nécessaires, alors que la méthode des feuilles d'activation a nécessité plusieurs mois pour terminer les mesures.

Enfin, l'intérêt de recourir à la simulation devient évident du fait qu'elle offre la possibilité de calculer avec précision et efficacité les différentes grandeurs physiques souhaitées. L'avantage étant de pouvoir simuler différentes expériences en relativement peu de temps, et de faire varier les paramètres de la simulation de nombreuses fois en évitant les difficultés liées à l'expérience (temps et matériel coûteux...).

4.3. L'optimisation du dispositif expérimental par simulation:

L'optimisation du dispositif expérimental consiste à simuler ce dernier en faisant varier les dimensions et les matériaux le composant.

4.3.1. Choix du matériau réflecteur:

Le matériau réflecteur doit être un milieu modérateur peu capturant pour les neutrons, il contient des noyaux légers, ralentissant mieux les neutrons. Enfin, ce matériau doit être assez dense pour contenir suffisamment de noyaux diffuseurs, ce qui nous amène à choisir en pratique les matériaux hydrogénés tels que la paraffine, le polyéthylène ou le plexiglas.

A cet effet, nous avons effectué les calculs du flux de neutrons thermiques rétrodiffusés en fonction de l'épaisseur de l'échantillon d'eau, avec la modélisation précédente du dispositif expérimental pour les trois matériaux réflecteurs (tableau 4.5).

Les résultats de la simulation sont présentés sur la figure (4.10).

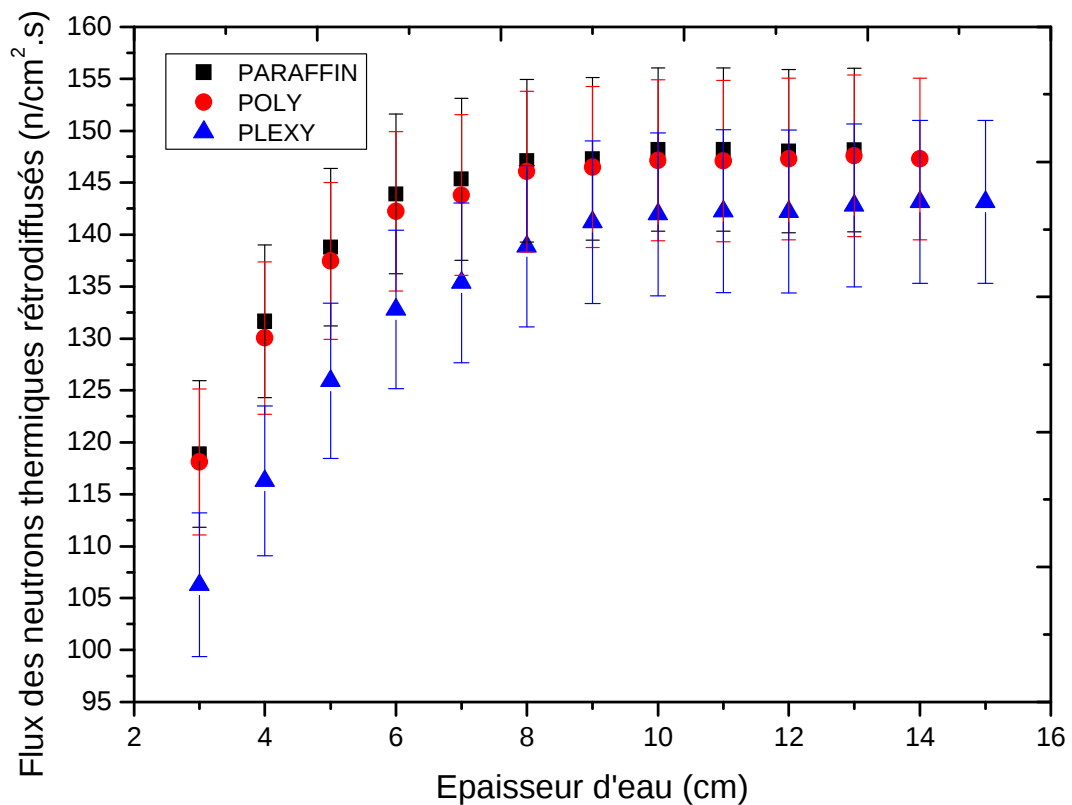


Figure 4.10 : Flux des neutrons thermiques rétrodiffusés pour différents matériaux en fonction de l'épaisseur de d'eau

Tableau 4.5 : Caractéristiques des matériaux réflecteurs utilisés dans la simulation

Matériau	Densité	% de H	% de C	% de O
Paraffine	0.93	67.5	32.5	0
Polyéthylène	0.94	67	33	0
Plexyglas	1.18	53.3	33.4	13.3

La simulation a été effectuée en utilisant la bibliothèque des sections efficaces standards de neutrons thermiques pour l'hydrogène du polyéthylène notée (poly.01t) dans le code MCNP5.

De plus, nous avons effectué pour chacun de ces matériaux, le calcul de doses en neutrons correspondant (détaillé plus loin, § 4.3.3).

Les résultats sont présentés sur la figure (4.11), à différentes distances du dispositif, en commençant à partir de 13 cm (qui est le rayon actuel du réflecteur).

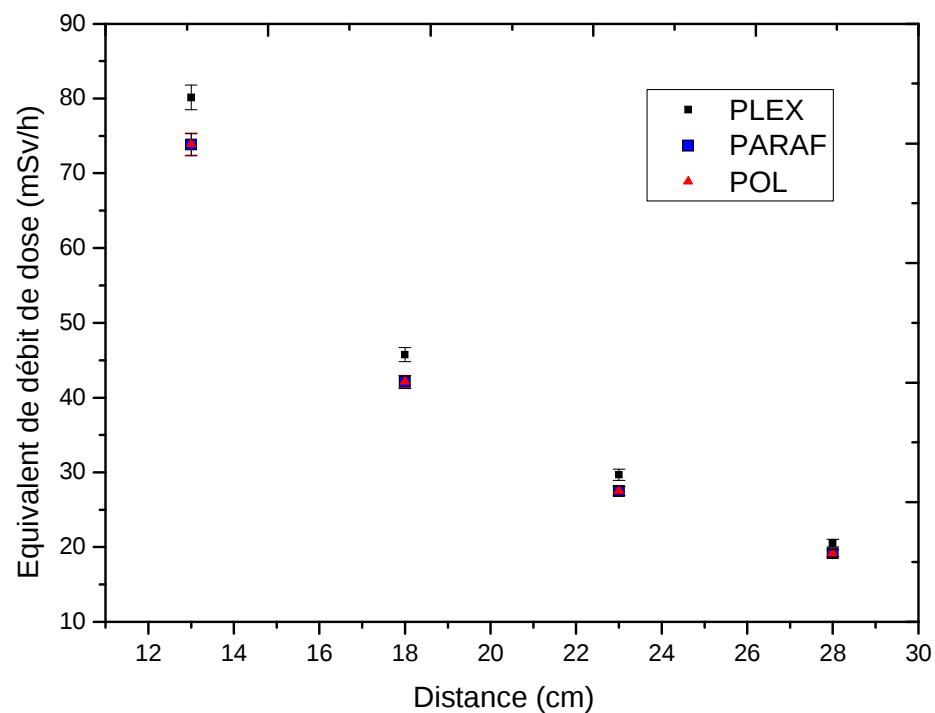


Figure 4.11: Débit d'équivalent de doses en neutrons en fonction de la distance.

Discussion des résultats de simulation:

Nous constatons des figures (4.10) et (4.11) que le polyéthylène donne le meilleur flux de neutrons rétrodiffusés, avec le débit d'équivalent de dose correspondant le plus faible.

Nous estimons que le polyéthylène reste donc le meilleur modérateur et réflecteur de neutrons dans notre cas. Comparé à la paraffine, il a de meilleures caractéristiques mécaniques. Nous choisissons de le garder pour notre dispositif expérimental.

4.3.2. Détermination des dimensions optimales du réflecteur et de l'échantillon:

Dans le but de réduire les effets géométriques sur la précision du calcul, nous tentons d'optimiser la dimension des matériaux utilisés de manière à obtenir le flux rétrodiffusé le plus important avec l'erreur la plus faible.

En faisant varier les dimensions (hauteur et largeur) de l'échantillon d'eau et du réflecteur (polyéthylène) dans le fichier Input, les calculs du flux des neutrons thermiques rétrodiffusés donnent les résultats présentés sur les figures (4.12), (4.13) et (4.14).

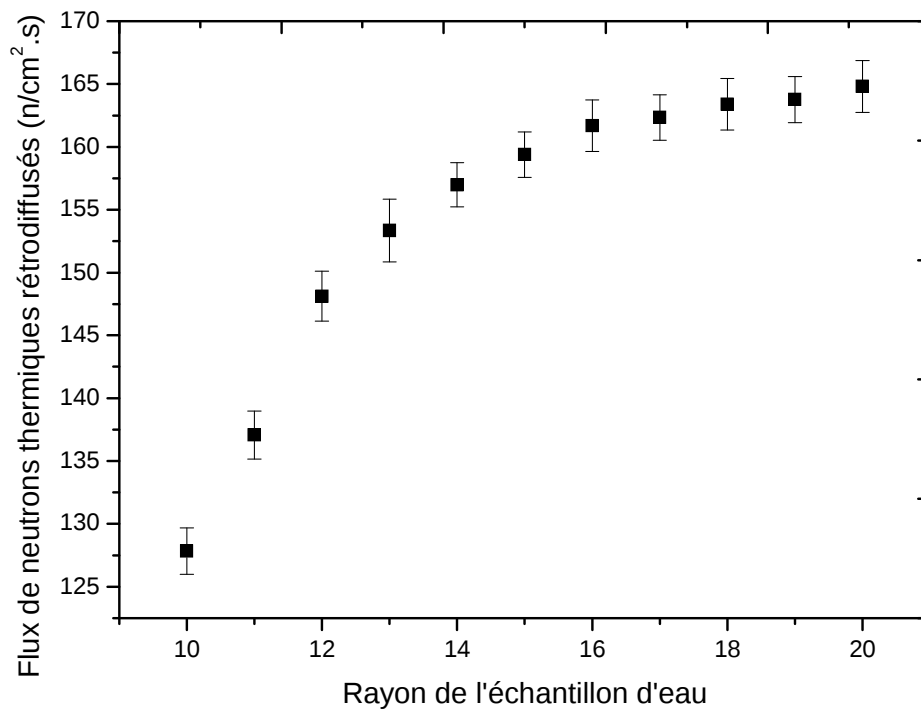


Figure 4.12: Variation du flux en fonction de la largeur de l'eau
-Hauteur fixée à 10 cm-

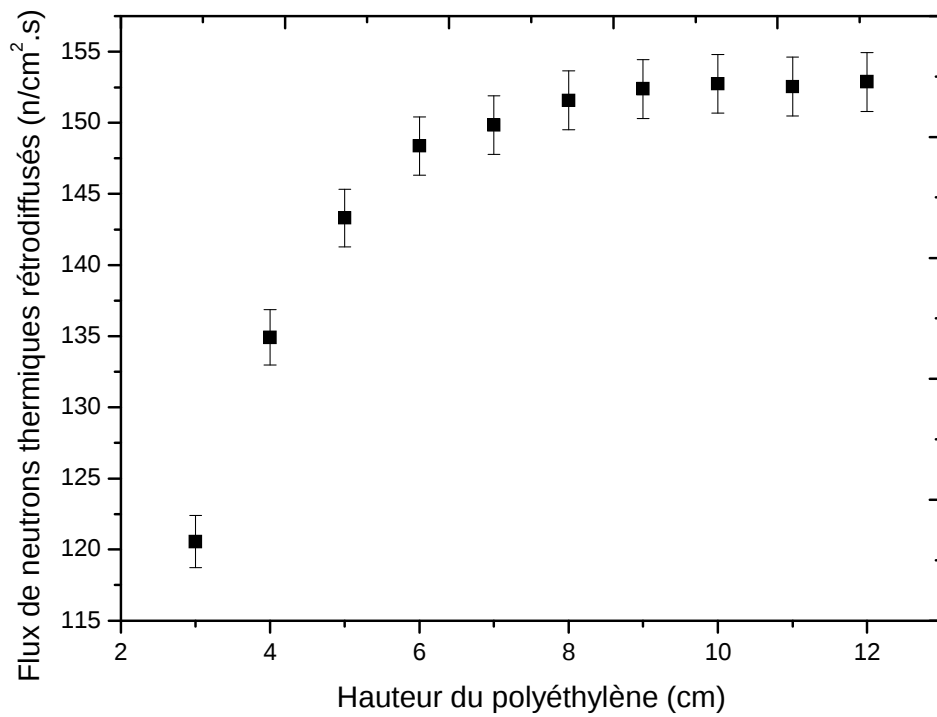


Figure 4.13: Variation du flux en fonction de la hauteur du polyéthylène
-Rayon fixé à 13 cm-

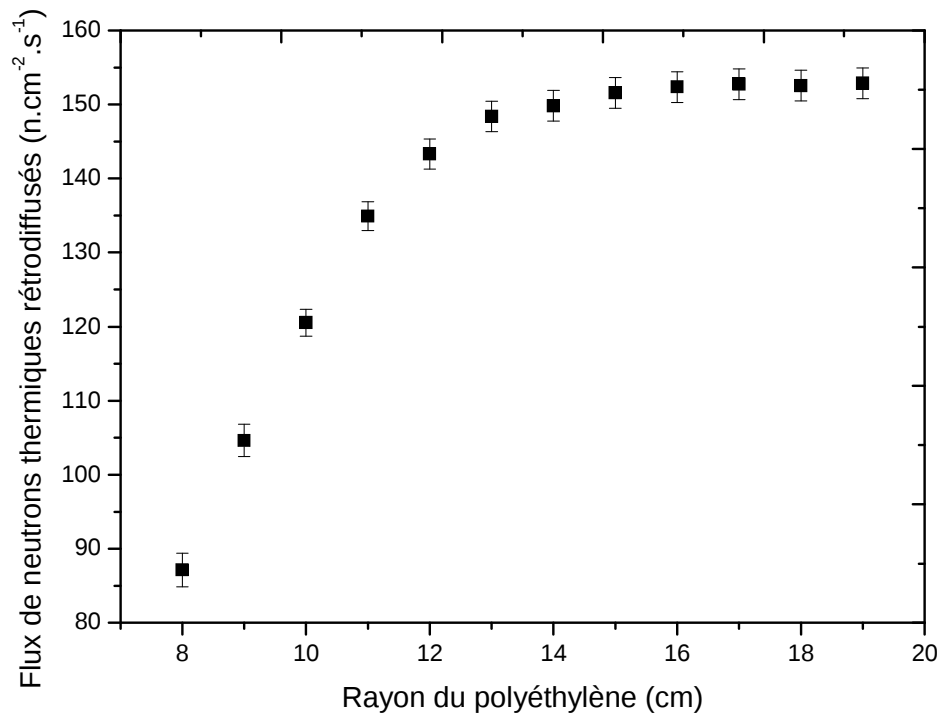


Figure 4.14: Variation du flux en fonction de la largeur du polyéthylène
-Hauteur fixée à 10 cm-

Discussion des résultats de simulation :

La hauteur optimale (10 cm) de l'échantillon d'eau a été déterminée auparavant à partir de la figure (4.5).

Cependant, nous constatons sur la figure (4.12) que la largeur de l'eau présente une saturation du flux de neutrons rétrodiffusés à partir de 18 cm de rayon du porte-échantillon utilisé.

Pour les dimensions optimales du réflecteur, les figures (4.13) et (4.14) indiquent que nous pouvons fixer la hauteur du polyéthylène à 10 cm, son rayon peut être légèrement augmenté à 15 cm.

4.3.3. Calcul de doses en neutrons et en gammas par simulation MCNP5:

L'équivalent de dose H (en sievert Sv) est la grandeur qui tient compte des effets biologiques dus à l'exposition aux rayonnements. Elle s'exprime par:

$$H (Sv) = D \cdot Q$$

où: D est la dose absorbée et Q, le facteur de qualité caractéristique du rayonnement (sans dimension).

Afin de s'assurer d'être dans les limites acceptables de doses par rapport aux normes internationales [06, 24], nous calculons l'équivalent de dose H à partir des facteurs de conversion $H^*(10)/\varphi$ entre la fluence φ des neutrons et l'équivalent de dose [25].

Enfin, le débit d'équivalent de dose $\dot{H} (Sv/h)$ est déduit par le rapport entre l'équivalent de dose et le temps d'irradiation.

4.3.3.1. Calcul du débit d'équivalent de doses en neutrons:

Nous avons calculé le débit d'équivalent de doses en neutrons à la sortie du dispositif, et cela pour différentes distances à partir de la paroi du réflecteur de polyéthylène qui correspond au rayon actuel de 13 cm.

A chacune de ces distances, nous avons déterminé la distribution énergétique du flux de neutrons (à la sortie du dispositif) et calculé le débit d'équivalent de dose à partir des facteurs de conversion $H^*(10)/\varphi$. Les résultats obtenus sont présentés sur la figure (4.15).

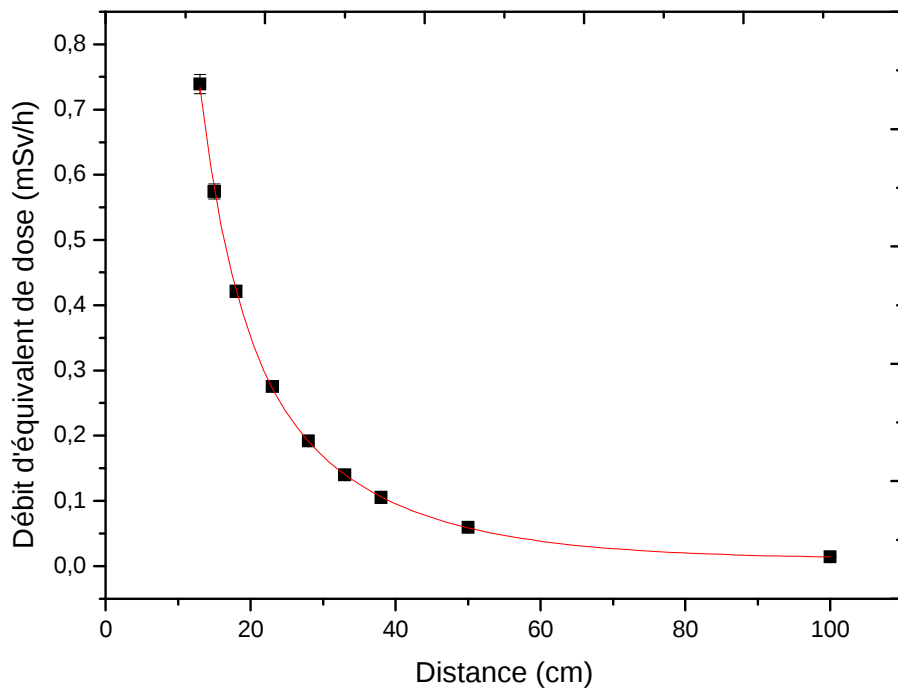


Figure 4.15: Débit d'équivalent de dose H total en fonction de la distance.

Un exemple de ce calcul effectué à la distance (13 cm) est résumé dans le tableau (4.6), les mêmes calculs ont été effectués pour chacune de ces distances (figure 4.15).

4.3.3.2. Calcul du débit d'équivalent de doses en gammas :

Le blindage de la source en acier inoxydable sert principalement à l'atténuation des rayonnements gammas émis par la source. Néanmoins, une partie de ces gammas atteint la sortie du dispositif. Nous calculons alors le débit d'équivalent de doses pour évaluer précisément cette quantité.

- **Les gammas prompts énergétiques (de 4.43 MeV) :** sont les gammas émis par la désexcitation du carbone $^{12}\text{C}^*$ simultanément avec l'émission du neutron. Le rapport d'émission de ces gammas aux neutrons étant : $R = N_\gamma / N_n = 0.57$, le calcul du débit d'équivalent de doses est effectué par l'expression :

$$H = \varphi \cdot [H^*(10)/\varphi] \cdot R$$

où : $H^*(10)/\varphi$, le facteur de conversion pour le gamma de 4.43 MeV vaut 14 (pSvcm²).

Le calcul MCNP5 donne alors pour H la valeur de $(1.22 \cdot 10^{-2} \text{ mSv/h})$, juste à la sortie du dispositif.

- **Les gammas de 60 KeV** : sont émis par l'américium radioactif accompagnant l'émission des α . Le rapport d'embranchement de cette réaction étant de 36%, et $H^*(10)/\varphi=0.51$, le calcul MCNP5 donne pour H la valeur de $(0.04 \cdot 10^{-2} \text{ mSv/h})$, juste à la sortie du dispositif.

- **Les gammas de 2223 KeV** : ne viennent pas directement de la source, mais sont émis suite à l'interaction des neutrons avec les noyaux d'hydrogène dans l'échantillon d'eau. Le calcul MCNP5 donne alors pour H la valeur de $(0.068 \cdot 10^{-2} \text{ mSv/h})$, juste à la sortie du dispositif.

Discussion des résultats de calcul:

Nous constatons que les valeurs du débit d'équivalent de doses en gammas calculées juste à la sortie du dispositif (à la distance 13 cm de la source) sont très faibles comparées au débit d'équivalent de doses en neutrons (figure 4.15). Nous nous limiterons donc pour le calcul de doses en gammas à cette seule position (13 cm).

Estimation des limites réglementaires pour la durée d'exposition aux rayonnements :

Les organismes ICRP (Commission Internationale de Protection Radiologique) et ICRU (Commission Internationale des Unités Radiologiques) recommandent pour les expositions professionnelles (dans le rapport 74) [24,25], de ne pas dépasser la limite réglementaire annuelle de 20 mSv.

Cette limite correspond à une utilisation du dispositif expérimental durant 27 (heures/an), et cela sans aucune protection. Cette valeur est calculée pour le débit d'équivalent de doses en neutrons et en gammas à la position de 13 cm (juste à la sortie du dispositif), elle passe à une utilisation du dispositif durant 363 (heures/an) si l'on se place à 50 cm de la source, et encore à 1428 (heures/an) si l'on se place à 1 mètre de la source.

Conclusion :

Nous pouvons enfin estimer que notre dispositif expérimental d'analyse répond bien aux normes internationales de radioprotection.

Tableau 4.6 : Résultats de calcul du débit d'équivalent de dose à la distance 13 cm.

Energie (MeV)	Flux (n/scm ²)	dΦ	H/Φ	H (mSv/h)	dH
2,50E-08	416,38	0,0252	10,6	7,29E-04	1,84E-05
1,00E-07	1476,12	0,0134	12,9	0,00314	4,21E-05
2,00E-07	383,723	0,0284	13,5	8,55E-04	2,43E-05
5,00E-07	181,638	0,0452	13,6	4,08E-04	1,84E-05
1,00E-06	128,998	0,0536	13,3	2,83E-04	1,52E-05
2,00E-06	117,241	0,0547	12,9	2,50E-04	1,37E-05
5,00E-06	164,467	0,0516	12	3,26E-04	1,68E-05
1,00E-05	126,641	0,0538	11,3	2,36E-04	1,27E-05
2,00E-05	126,683	0,0557	10,6	2,22E-04	1,24E-05
5,00E-05	174,307	0,0495	9,9	2,85E-04	1,41E-05
1,00E-04	144,145	0,0529	9,4	2,24E-04	1,18E-05
2,00E-04	125,663	0,0544	8,9	1,85E-04	1,00E-05
5,00E-04	192,52	0,0509	8,3	2,64E-04	1,34E-05
1,00E-03	154,172	0,0486	7,9	2,01E-04	9,77E-06
0,002	156,424	0,0502	7,7	1,99E-04	9,98E-06
0,005	209,56	0,0437	8	2,77E-04	1,21E-05
0,01	180,888	0,0479	10,5	3,14E-04	1,50E-05
0,02	200,512	0,0456	16,6	5,50E-04	2,51E-05
0,03	114,868	0,0566	23,7	4,50E-04	2,54E-05
0,05	181,964	0,0463	41,1	0,00124	5,72E-05
0,07	135,841	0,0518	60	0,00135	6,97E-05
0,1	173,15	0,0467	88	0,00252	1,18E-04
0,15	228,038	0,0399	132	0,00497	1,98E-04
0,2	206,754	0,0443	170	0,0058	2,57E-04
0,3	392,963	0,0303	233	0,01512	4,58E-04
0,5	598,022	0,0242	322	0,0318	7,70E-04
0,7	543,912	0,0251	375	0,03368	8,45E-04
0,9	483,697	0,0259	400	0,03195	8,28E-04
1	204,383	0,0394	416	0,01404	5,53E-04
1,2	405,918	0,0276	425	0,02849	7,86E-04
2	1372,15	0,0144	420	0,09517	0,00137
3	1525,56	0,0135	412	0,10379	0,0014
4	1330,3	0,0139	408	0,08963	0,00125
5	1184,98	0,0145	405	0,07925	0,00115
6	947,874	0,016	400	0,06261	0,001
7	688,108	0,0191	405	0,04602	8,79E-04
8	620,676	0,0194	409	0,04192	8,13E-04
9	294,865	0,0282	420	0,02045	5,77E-04
10	185,586	0,0355	440	0,01348	4,79E-04
12	82,2969	0,0531	480	0,00652	3,46E-04
H total à la distance 13 cm (mSv/h)				0,73922	0,01452

Distribution énergétique du flux de neutrons à la sortie du dispositif expérimental:

La distribution énergétique du flux de neutrons à la sortie du dispositif expérimental (correspondant au rayon de 13 cm) est représentée sur la figure (4.16).

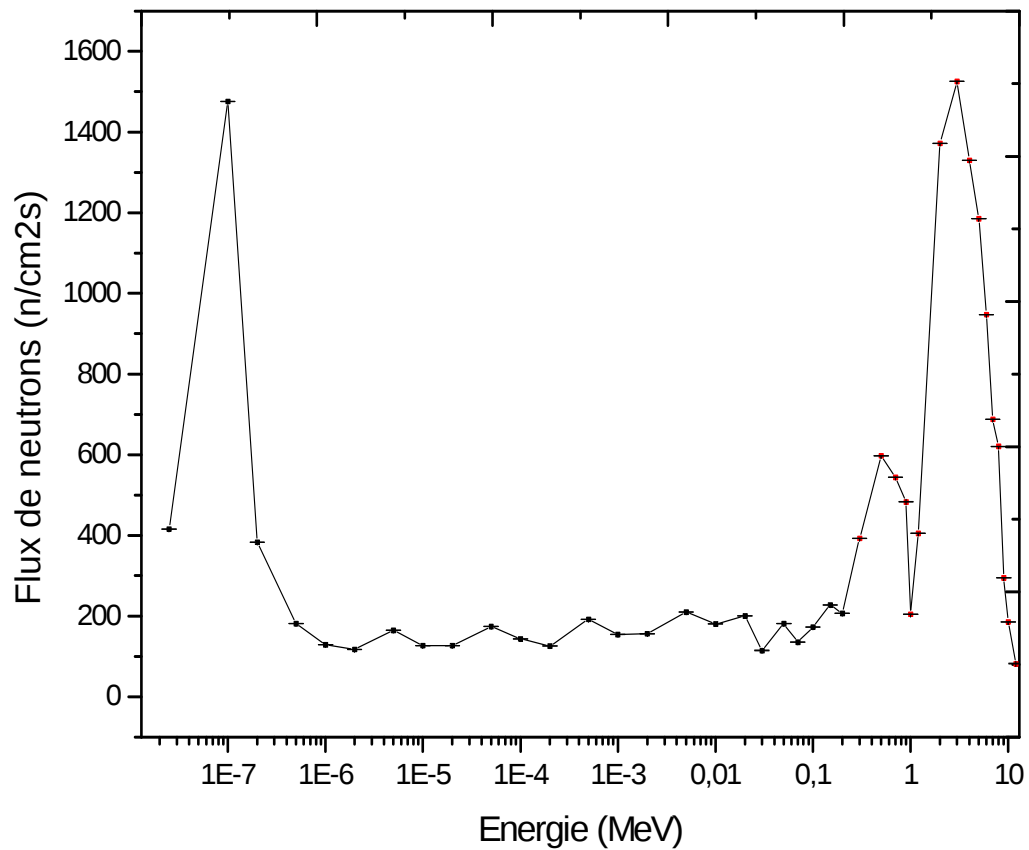


Figure 4.16: Distribution du flux de neutrons à la sortie du dispositif expérimental.

Nous la comparons au spectre énergétique Iso de la source (Am-Be) illustré en figure (4.17).

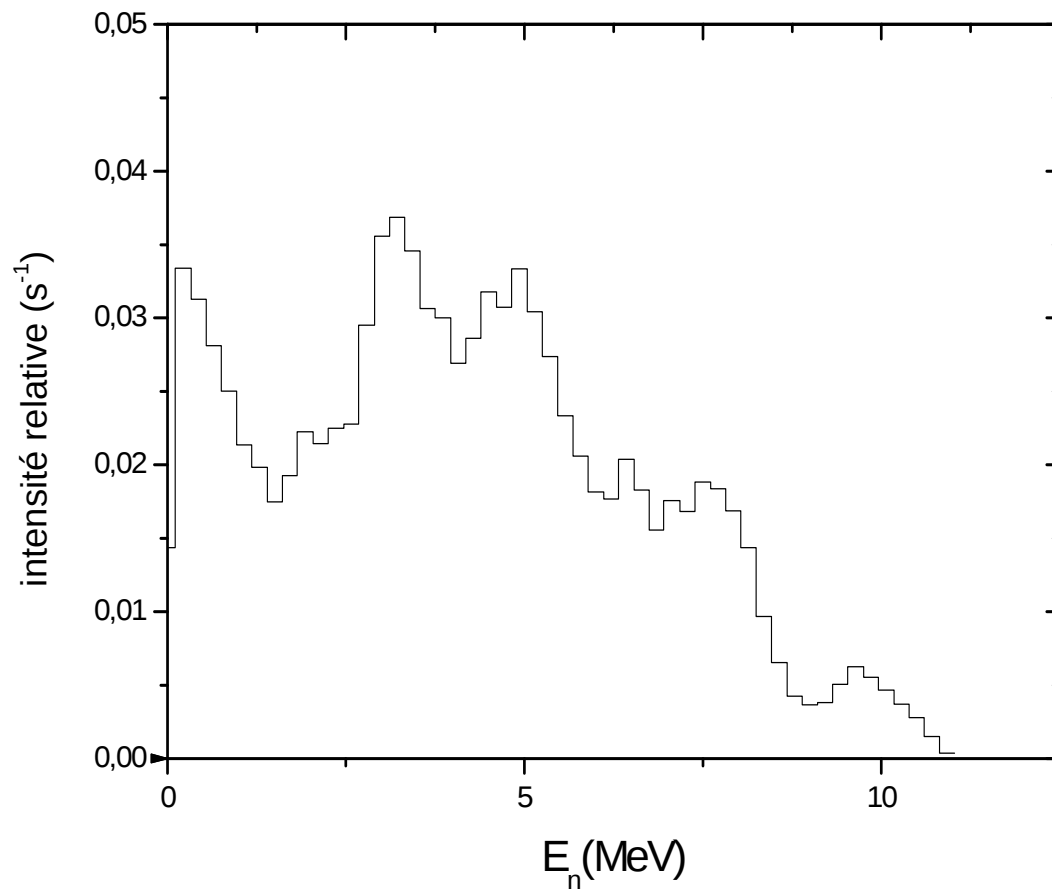


Figure 4.17: Spectre énergétique Iso de la source (Am-Be) [06]

Nous notons sur la figure (4.17), en plus des neutrons rapides, la présence d'une composante thermique non négligeable, due au ralentissement des neutrons dans le dispositif expérimental.

Chapitre 5 :

Application de la technique de rétrodiffusion neutronique à l'analyse des échantillons organiques avec le code MCNP5

Introduction :

Les techniques neutroniques d'analyse connaissent un usage croissant grâce à la disponibilité des sources compactes et portatives et le développement des méthodes de détection.

Les méthodes chimiques actuelles étant longues et destructives, l'intérêt de la technique de rétrodiffusion neutronique pour l'analyse réside dans sa précision et sa rapidité de dosage.

5.1 Principe de l'analyse par la méthode de rétrodiffusion neutronique :

Les matériaux organiques étant riches en hydrogène, leur concentration peut être déterminée rapidement et de manière non destructive par la technique de rétrodiffusion neutronique [35].

En effet, le taux de réaction ($R = n_c \cdot \sigma \cdot \Phi$) montre bien que le nombre d'interactions des neutrons avec la matière par unité de volume et par seconde est proportionnel au flux de neutrons Φ traversant un échantillon de nombre de noyaux cibles n_c .

L'application de cette méthode [01, 35] nécessite l'établissement de courbes de calibration à partir du calcul du paramètre de réflexion η qui représente l'excès relatif du flux de neutrons rétrodiffusés par l'échantillon $(\Phi - \Phi_0)/\Phi_0$ normalisé par la densité ρ . Il s'exprime par la

formule :
$$\eta = \frac{1}{\rho} \frac{\Phi - \Phi_0}{\Phi_0} \dots (5.1)$$

où : ρ est la densité de l'échantillon organique, Φ le flux thermique rétrodiffusé par l'échantillon et Φ_0 le flux thermique rétrodiffusé à vide (sans échantillon).

5.2. Détermination du volume optimal des échantillons organiques:

Afin d'éviter les effets géométriques sur l'analyse, le volume optimal des échantillons organiques est déterminé en traçant la courbe de saturation du flux de neutrons rétrodiffusés en fonction de la hauteur de l'échantillon.

Nous effectuons ce calcul qui est d'un grand intérêt pour l'analyse, avec le code MCNP5 pour le composé organique C_7H_8O (alcool benzylique). Il devra être refait pour chaque échantillon organique avant l'analyse de ce composé.

Les résultats sont présentés sur la figure (5.1).

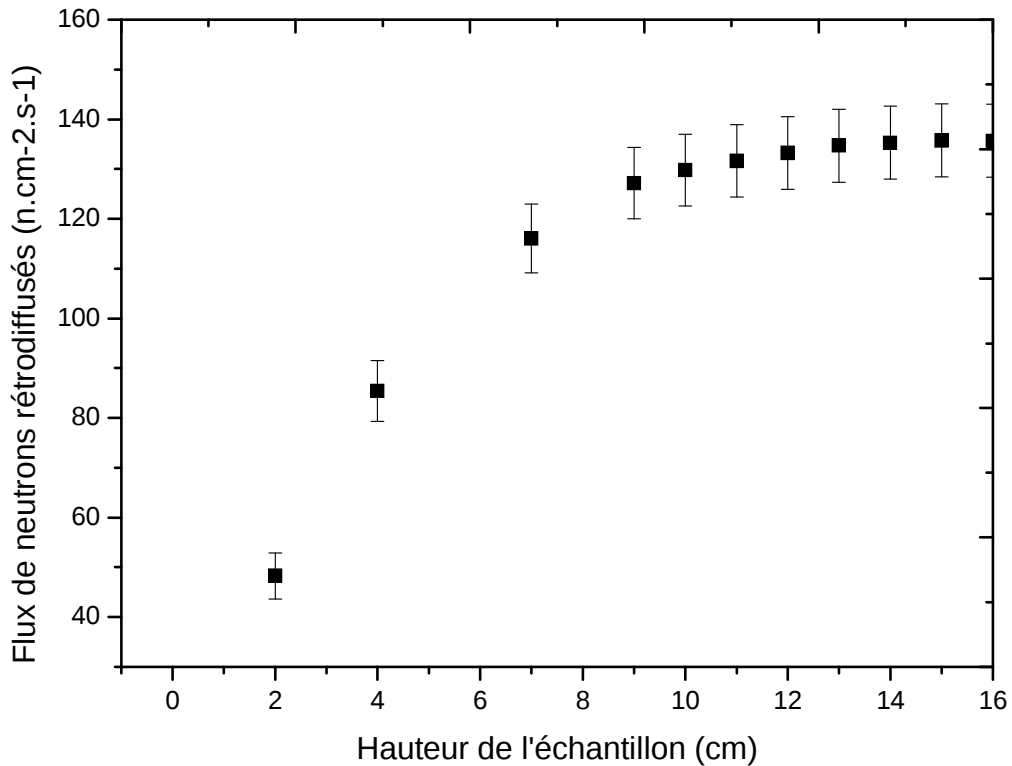


Figure 5.1: Variation du flux des neutrons thermiques rétrodiffusés en fonction de l'épaisseur de l'échantillon organique C_7H_8O

5.3. Caractérisation de la matière organique :

Le paramètre de réflexion η est d'une grande importance pour la caractérisation de la matière organique. Il permet d'établir les courbes de calibration afin de déterminer la teneur en un élément donné.

5.3.1. Détermination de la teneur en hydrogène des composés organiques:

Le calcul du paramètre de réflexion η a été effectué par simulation à partir du flux des neutrons rétrodiffusés, il permet d'établir la droite de calibration pour la teneur en hydrogène représentée sur la figure (5.2) à partir d'échantillons organiques de composition connue (tableau 5.1).

Tableau 5.1 : Teneur en Hydrogène et rapport (C+O)/H pour quelques composés organiques [01, 35].

Composé	Formule	Densité (g/cm ³)	Hydrogène (%)	(C+O)/H
A vide (BF)	Air	0.0012084		
Alcool benzylique	C ₇ H ₈ O	1.05	7.41	12.5
Benzene	C ₆ H ₆	0.873	7.68	12
Toluene	C ₇ H ₈	0.866	8.68	10.5
Paraxylene	C ₈ H ₁₀	0.861	9.41	9.6
Eau	H ₂ O	1	11.11	8
Ethylic alcohol	C ₂ H ₆ O	0.789	13.08	6.66
Acethylether	C ₄ H ₁₀ O	0.713	13.49	6.41
Hexane	C ₆ H ₁₄	0.659	16.24	5.14
Heptane	C ₇ H ₁₆	0.683	15.96	5.25

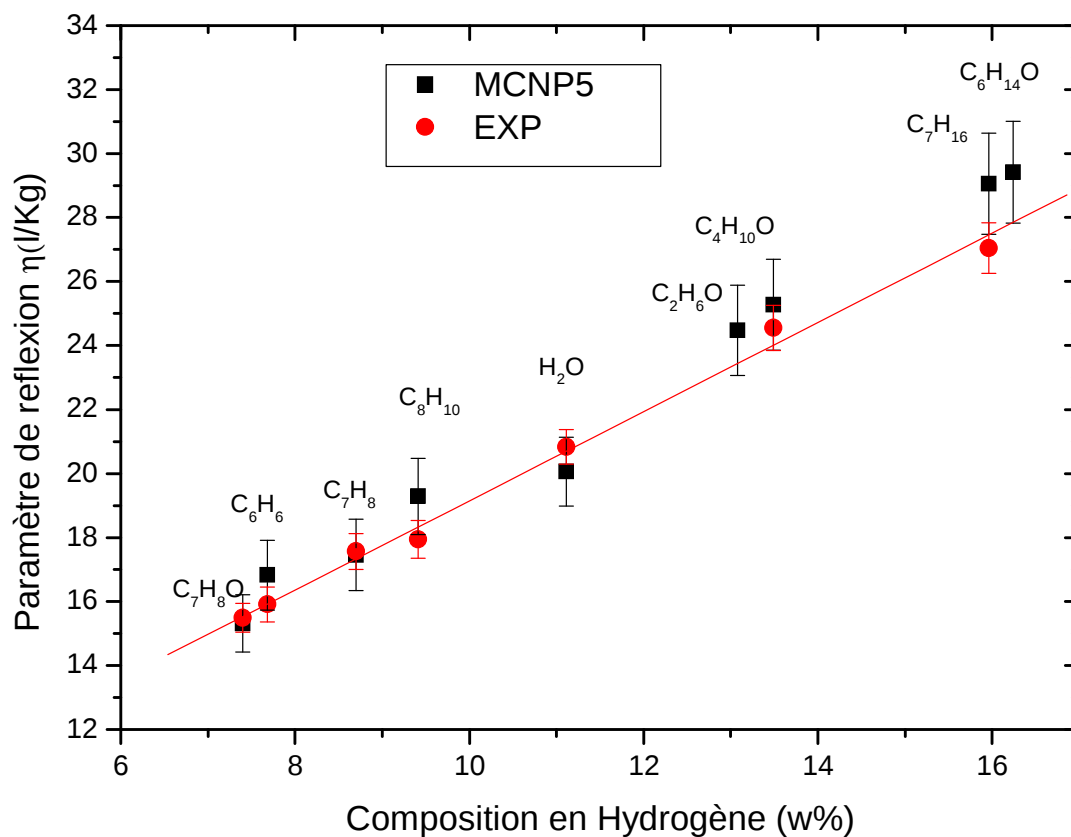


Figure 5.2: Droite de calibration pour la teneur en hydrogène

5.3.2. Etablissement de la courbe de calibration pour la détermination du rapport C/H et du rapport (C+O)/H :

De la même manière que précédemment, nous calculons le paramètre de réflexion η pour établir la courbe de calibration à partir des échantillons organiques de composition connue. Cette courbe permet de déterminer le rapport (C/H) et le rapport (C+O)/H pour d'autres composés organiques, elle est représentée sur la figure (5.3).

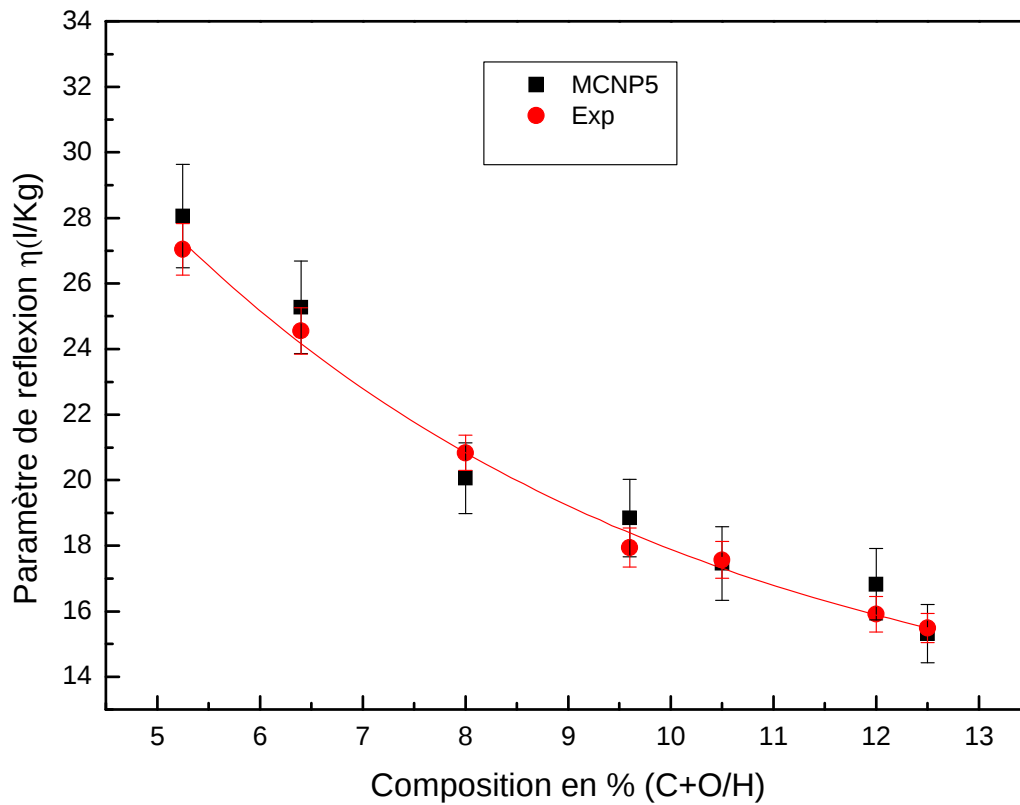


Figure 5.3 : Courbe de calibration pour la détermination du rapport (C+O)/H

5.3.3. Comparaison des résultats du calcul MCNP5 aux résultats expérimentaux tirés de la littérature:

Nous constatons que le paramètre de réflexion η est proportionnel à la concentration massique de l'hydrogène.

La comparaison des valeurs calculées avec MCNP5 dans les figures (5.2) et (5.3) aux mesures expérimentales effectuées dans un travail précédent [35] montre un bon accord.

Nous estimons que la simulation de l'analyse par la méthode de rétrodiffusion neutronique est possible pour les échantillons organiques.

Conclusion générale:

Le dispositif expérimental de la technique de rétrodiffusion neutronique a été simulé avec le code MCNP5. La validation expérimentale a été effectuée en utilisant deux techniques de mesure du flux moyen des neutrons thermiques rétrodiffusés par un échantillon d'eau, le comptage direct à l'aide du détecteur (^3He) ainsi que la méthode passive des feuilles d'activation.

Nous avons ensuite procédé à l'optimisation des dimensions et des matériaux composants le dispositif. Les résultats des calculs effectués par simulation ont montré que le rayon du réflecteur ainsi que la largeur du porte-échantillon doivent être légèrement augmentés.

Nous avons également étudié la réponse du dispositif pour d'autres matériaux réflecteurs tels que la paraffine et le plexiglas, nous avons conclu que le meilleur réflecteur reste le polyéthylène.

Les débits d'équivalent de doses en neutrons et en gammas ont été calculés avec le code MCNP5, elles sont acceptables et largement en dessous des limites réglementaires fixées par les normes internationales.

D'autre part, la simulation des expériences d'analyse des échantillons organiques a été effectuée afin de calibrer le dispositif pour le dosage de l'hydrogène et la détermination du rapport (C+O)/H, ces grandeurs étant indispensables pour la caractérisation de la matière organique.

Les simulations ont été validées par des mesures expérimentales faites précédemment. Elles nous permettent de prévoir à l'avance la réponse du système pour n'importe quel type d'échantillon organique.

Enfin, on peut dire en se basant sur les résultats obtenus dans notre étude, que le code de calcul MCNP5 est bien adapté à la simulation du transport des neutrons appliquée aux systèmes d'analyse utilisant la méthode de rétrodiffusion neutronique.

Cet outil indispensable à la modélisation des dispositifs expérimentaux offre la possibilité de calculer avec précision et efficacité les différentes grandeurs physiques souhaitées en évitant les difficultés liées à l'expérience.

L'avantage est alors de diminuer le nombre d'expositions aux sources radioactives afin de réduire les doses absorbées par l'opérateur, il permet ainsi d'effectuer un nombre important de simulations en assez peu de temps sur une large gamme d'énergie et de matériaux afin de prédire, d'estimer, de compléter ou d'étendre les résultats de l'expérience.

Perspectives :

En vue de compléter notre étude sur la rétrodiffusion neutronique, nous envisageons l'utilisation de sources radioactives de plus faible intensité (500 et 300 mCi) disponibles au CRNA. Dans ce cas, l'utilisation du dispositif pourra être prolongée sans risques supplémentaires en doses de neutrons et de gammas.

Nous étudierons aussi la possibilité de concevoir un blindage de protection pour l'opérateur utilisant le dispositif d'analyse.

De plus, nous pourrions effectuer une étude comparative par simulation entre deux géométries de détection, à savoir la géométrie actuelle de notre dispositif d'analyse (géométrie verticale : source-détecteur) et une géométrie côte à côte pour la source et le détecteur. Des études ont été menées dans ce sens et peuvent nous servir de base pour l'évaluation et la comparaison de nos résultats.

Enfin, ayant vérifié la possibilité d'appliquer la méthode de rétrodiffusion neutronique par simulation à l'analyse des échantillons organiques, nous envisageons son application à l'analyse des huiles de pétrole ainsi que pour le dosage du bitume dans les revêtements routiers.

Références bibliographiques:

- [01] Z. Idiri, K. Dekali, A. Amokrane, S. Bedek, L. Omari, M. Belamri, A. Azbouche, Radioanalytical & Nuclear Chemistry, vol.265, N°1 (2005).
- [02] Paul Reuss, Précis de Neutronique, EDP Science (2003).
- [03] J. Bussac, P. Reuss, Traité de neutronique, 2^{ème} édition (1985).
- [04] Paul Reuss, « Neutron Physics », EDP Science (2008).
- [05] Michel Soutif, Physique Neutronique, 1^{ère} édition (1962), Presse Universitaire, France.
- [06] Norme Internationale, Rayonnements neutroniques de référence -Iso 14152 (2001).
- [07] Glenn F. Knoll, "Radiation Detection and Measurement" (John Wiley & Sons, 1989).
- [08] Neutron Monitoring for Radiological Protection, Technical Report Series N°252, AIEA (1985).
- [09] J. M. Bordy, I. Aubineau-Laniece, J. Gouriou et J. Barthe, « La Méthode Monté Carlo: un essai sur les principales applications, les difficultés rencontrées et les perspectives », Journées codes SFRP (2006), Laboratoire National Henri Becquerel (LNHB), CEA Saclay.
- [10] Breismeister. J.F, « MCNP, A General Monte Carlo N-Particle Transport Code – Version 4C », Oak Ridge National Laboratory, Manuel LA-13709-M, Los Alamos (2000).
- [11] MCNP5, "A General Monte-Carlo N-particle Transport Code", Version 5 (Los Alamos National Laboratory), (2003).
- [12] Nelson W. R., Hirayama, Rogers DWO, "The EGS4 code system," , SLAC-265, Stanford, (1985).
- [13] Brun R., Hagelberg R., Hansroul M., Lassalle J. C., "Simulation program for particle physics experiments", User guide and reference manual CERNDD-78-2-REV, CERN-DD-78- 2, , 76 p, (1978).
- [14] Battistoni G., Ferrari A., Montaruli T., Sala P. R., "Comparison of the FLUKA calculations with CAPRICE94 data on muons in atmosphere", Astroparticle Physics, Vol. 17, n° 4, p. 477-488, (2002).
- [15] Salvat F. Ferandez-Varea J.M., Sempau J., "Penelope-a code system for Monte Carlo simulation of electron and photon transport" AEN NEA, (2003).
- [16] Emmett M. B., "Morse-CGA, a Monte Carlo radiation transport code with array capability", ORNL report 6174, Oak Ridge National Laboratory, (1985).
- [17] Both J.P., Derriennic H., Morillon B., Nimal J.C., "A Survey of TRIPOLI-4", The 8th International Conference on Radiation Shielding, Arlington, Texas, USA, Vol.1, p.373-380, (1994).

- [18] Abdellatif NACHAB, « Etudes expérimentales et modélisations Monte Carlo de l'auto-absorption gamma et de la dosimétrie active par capteurs CMOS », Thèse de Doctorat - Université Louis Pasteur- Strasbourg I, (France) et Université Chouaïb Doukkali El Jadida, (Maroc).
- [19] Marie Laure N. « DIANE, un code de simulation de l'interaction des neutrons avec la matière vivante - Application aux faibles doses de neutrons rapides sur des cellules tumorales humaines ». Thèse PhD », (2003).
- [20] K. Boukeffoussa, « Caractérisation de la distribution énergétique du flux de neutrons au voisinage d'une source $^{241}\text{Am-Be}$ à l'aide de détecteurs à seuil» Mémoire de Magister (2010).
- [21] "Data Formats and Procedures for the Evaluated Nuclear Data File, ENDF", Brookhaven National Laboratory.
- [22] "Evaluated Nuclear Data library, ENDL", Lawrence Livermore National Laboratory.
- [23] "Evaluated neutron activation cross section library, ACTL" Lawrence Livermore National Laboratory.
- [24] Norme Internationale, Rayonnements neutroniques de référence -Iso 8529-1, 2,3 (2001).
- [25] International Commission on Radiological Protection, "Conversion Coefficients for Use in Radiological Protection against External Radiation", ICRP 74, (1997).
- [26] Henri METIVIER, Principes et normes de radioprotection, EDP Sciences (2007).
- [27] Z. Idiri, H. Mazrou, A. Amokrane, S. Beddek, A. Azbouche
Nuclear Instruments & Methods in Physics Research A578 (2007) 279-288.
- [28] M. Belgaid, « Mesures de sections efficaces de réactions nucléaires induites par des neutrons d'énergie $E_n = 14.73 \text{ MeV}$ - Etude systématique des réactions du type (n, p) - (1991).
- [29] C. M. Lederer and V. S. Shirley, Table of Isotopes, (Wiley-Interscience, 1998).
- [30] R. Do'czi, M.A. Ali, M. Fayez-Hassan, Csikai J., Applied Radiation & Isotopes, 63 (2005a), 137–140.
- [31] J. Csikai, M. Buczko', Applied Radiation & Isotopes, 50 (1999), 487–490.
- [32] S. Abdul-Madjid, Abdulghani Melaibari, Basim Malki, Nuclear Instruments & Methods in Physics Research A119 (1996) 443-437.
- [33] J.Csikai, R. Do'czi, Applied Radiation & Isotopes, 65 (2007), 764 – 768
- [34] M . Buczko', Z. Dezso, J. Csikai, Radioanalytical & Nuclear Chemistry 25 (1975), 179–183.
- [35] N. Hadjebar, Mémoire de DEUA: « Dosage du bitume dans les revêtements routiers par la technique de rétrodiffusion neutronique » (2002)
- [36] ASTM D1416-79, « Moisture or volatile distillates in bituminous paving mixtures »(1979).

- [37] S.A.Jonah, A.M. El-Megreb, M. Varadi, J. Csikai, Radioanalytical & Nuclear Chemistry, 218 (1997) 193-195.
- [38] S.A. Jonah, I.I. Zakari, S.B. Elegba, Applied Radiation & Isotopes, 50 (1999)981.
- [39] E.H.K. Akaho, S.A. Jonah, C.P.K. Dagadu, B.T. Maaku, S. Anim-Sampong, .W.K. Kyere, Applied Radiation & Isotopes, 55 (2001) 617-622.
- [40] D.K. Mohapatra, C.P. Reddy, Applied Radiation & Isotopes, 55(2001) 693-696.
- [41] R. Doczi, B. Kiraly, J. Csikai, Proceedings of NEMEA 2003, EUR Report 21100, (2004).
- [42] G. Viesti, M . Lunardon, G . Nebbia, M . Barbui, M . Cinausero, G . D'Erasmus, M. Palomba, A . Pantaleo, J . ObhoXas, V . Valkovic, Applied Radiation and Isotopes 64 (2006) 706 – 716
- [43] V.R. Bom, C.P. Datema, C.W. E.VanEijk, Applied Radiation & Isotopes, 61(2004)21-25