



HAL
open science

Détection de rayonnements neutroniques à base de gadolinium

Jonathan Nicolas Dumazert

► **To cite this version:**

Jonathan Nicolas Dumazert. Détection de rayonnements neutroniques à base de gadolinium. Instrumentations et Détecteurs [physics.ins-det]. Université de Caen Normandie, 2016. Français. NNT : 2016CAEN2029 . tel-01443333

HAL Id: tel-01443333

<https://hal.science/tel-01443333>

Submitted on 23 Jan 2017

HAL is a multi-disciplinary open access archive for the deposit and dissemination of scientific research documents, whether they are published or not. The documents may come from teaching and research institutions in France or abroad, or from public or private research centers.

L'archive ouverte pluridisciplinaire **HAL**, est destinée au dépôt et à la diffusion de documents scientifiques de niveau recherche, publiés ou non, émanant des établissements d'enseignement et de recherche français ou étrangers, des laboratoires publics ou privés.



Normandie Université

THESE

Pour obtenir le diplôme de doctorat

Spécialité Constituants Élémentaires et Physique Théorique

Préparée au sein de l'Université de Caen Normandie

Détection de rayonnements neutroniques à base de gadolinium

**Présentée et soutenue par
Jonathan DUMAZERT**

**Thèse soutenue publiquement le 17 novembre 2016
devant le jury composé de**

M. Jean-Claude ANGELIQUE	Professeur des Universités, Université de Caen	Président du jury
Mme Louise STUTTGE	Chargée de Recherche CNRS, HDR, Université de Strasbourg	Rapporteur
M. Gérard MONTAROU	Professeur des Universités, Université de Clermont-Ferrand	Rapporteur
Mme Raffaella DE VITA	Chercheur, INFN, Gênes, Italie	Examineur
M. Jean-Marc FONTBONNE	Ingénieur CNRS, HDR, Université de Caen	Examineur
Mme Laurence MECHIN	Directrice de Recherche CNRS, HDR, Université de Caen	Directeur de thèse
M. Stéphane NORMAND	Ingénieur Chercheur CEA, HDR, CEA Saclay	Co-directeur de thèse
M. Romain COULON	Ingénieur Chercheur CEA, CEA Saclay	Encadrant de thèse

Thèse dirigée par Stéphane NORMAND et Laurence MECHIN, conduite au sein du Laboratoire Capteurs et Architectures Electroniques (LCAE), CEA LIST



ED SIMEM



CEA LIST



PRESENTATION DE LA THESE

Cette thèse s'insère dans le contexte de l'instrumentation nucléaire, plus spécifiquement celui de la détection et du comptage neutroniques, à température ambiante et en temps réel, pour des applications en radioprotection et en prévention du risque nucléaire et radiologique. Son objet sociétal est motivé par la recherche d'alternatives aux compteurs à gaz d'hélium 3, isotope qu'une pénurie mondiale rend sujet à d'importantes fluctuations de valeur sur les marchés d'échanges.

L'élément gadolinium présente la plus grande section efficace d'interaction avec les neutrons thermiques répertoriée, grâce à ses isotopes 157 et 155. Les travaux menés explorent différentes voies de mise en œuvre du gadolinium en vue de réaliser une détection et un comptage neutroniques.

Trois pistes ont été suivies en parallèle dans le projet de recherche : la détection à base de scintillateurs plastiques, la détection à base de matériaux semi-conducteurs et la détection par transition de phase magnétique dans le gadolinium. Les deux premières prolongent un art déjà fourni et portent principalement sur la conception, le dimensionnement et l'évaluation de systèmes innovants, telle qu'elle est pratiquée au sein du Laboratoire Capteurs et Architectures Electroniques (LCAE) du CEA Saclay, qui a accueilli la thèse.

L'ensemble des produits de réaction émis après l'absorption d'un neutron thermique par un noyau de gadolinium 157 ou 155 forme le *terme source* utile pour la détection dans les différents types de capteurs. Ce terme source a été décrit à partir de données de référence pour le terme gamma prompts, et de calculs pour le terme électrons prompts et rayons X associés.

Une méthode de détection et de comptage neutroniques à base de scintillateurs plastiques dopés au gadolinium (complexe de $Gd(TMHD)_3$), compensés par des scintillateurs dopés au bismuth (complexe tri-aromatique de bismuth(III)), a été modélisée et testée au sein du laboratoire. Une réjection efficace d'une ambiance de césium 137, jointe à un signal compensé significatif en présence d'un émetteur de californium 252, a offert une première validation du concept. La réponse à une source d'américium 241 du schéma à deux scintillateurs a, par ailleurs, pointé la nécessité d'une linéarisation de la compensation en fonction de l'énergie du rayonnement gamma ambiant.

Une méthode à base d'un cœur métallique de gadolinium, inséré dans un scintillateur plastique de grand volume, a également été introduite. Un signal significatif entre 3 et 8 MeV en présence d'une source de californium 252 autorise une discrimination, par la hauteur des impulsions, de la radioactivité gamma naturelle. Une sensibilité totale au rayonnement neutronique du même ordre de grandeur que celui d'une sphère de Bonner à hélium 3 permettra de dégager des voies de consolidation de la réjection gamma à haute énergie. L'accès à des informations portant sur la distribution spectrale du rayonnement neutronique est également envisagé.

Le principe d'une compensation de capteurs couverts de feuilles de gadolinium par des capteurs identiques couverts de feuilles de terbium a fait l'objet de deux études. Le schéma de détection a reçu une première validation expérimentale *via* une exposition à des sources de césium 137 et de californium 252, pour des milieux plastiques dopés au bismuth ainsi que des cristaux de tellure de cadmium et zinc. L'exploitation des effets photoélectriques et des

propriétés spectroscopiques dans les semi-conducteurs denses, ainsi que la signature additionnelle des captures neutroniques dans le cadmium, ouvrent notamment la voie à une mesure sensible et consolidable dans la dernière étude.

L'étude théorique portant sur la mise en œuvre, dans le même système de détection, de la section efficace d'absorption des neutrons thermiques et de la transition ferromagnétique-paramagnétique du gadolinium, a été conclue par une non-faisabilité pratique. La nature de la signature produite, photons et électrons, conduit en effet à un dépôt très peu localisé et par conséquent à des modifications de propriétés magnétiques locales immesurables pour une masse de gadolinium supérieure à la centaine de picogrammes.

Les perspectives à court et moyen terme, ouvertes par les études conduites dans cette thèse, sont détaillées en conclusion.

REMERCIEMENTS

Cette thèse a été réalisée grâce à un Contrat de Formation par la Recherche (CFR), dans le cadre des sujets phares 2013 du Haut-Commissariat à l'Énergie Atomique. La thèse a été accueillie par le Laboratoire Capteurs et Architectures Electroniques (DRT/LIST/DM2I/LCAE) du CEA Saclay.

Je remercie en premier lieu mes deux directeurs de thèse, L. Méchin et S. Normand, pour leur direction solide et bienveillante tout au long de ces trois années. La distance géographique n'a rien ôté à votre présence, qui a été de tous les moments de nécessité. J'espère avoir la bonne fortune de collaborer avec vous deux aussi longtemps que possible.

J'adresse à mon encadrant de thèse R. Coulon l'expression de ma reconnaissance la plus profonde. Cette thèse est le produit d'une rencontre authentique, et son aboutissement tributaire de l'engagement extraordinaire qui a été le tien. « Il y a des services si grands qu'on ne peut les payer que par l'ingratitude », dit-on. Si la dette d'intelligence, de confiance et de soutien que j'ai à ton égard est bel et bien immense, je saurai faire mentir le célèbre auteur. A de nombreuses années d'amitié et de collaboration fructueuse !

Je tiens à témoigner à A. Bounouh, chef de laboratoire puis de département, ma gratitude pour l'estime et la foi qu'il a placées en moi, tout autant que pour le cadre de travail serein et stimulant qu'il a su établir, en successeur émérite de Stéphane. En me recrutant au sein de l'équipe, tu m'as fait un honneur qui est également un défi : je tâcherai de m'en montrer digne.

Je n'aurais pu réussir cette thèse sans la générosité ni l'expertise de mes trois responsables thématiques : K. Boudergui (électronique et systèmes), F. Carrel (mesures physiques) et M. Hamel (chimie). Travailler à la croisée de vos compétences durant ces trois années a été un véritable privilège. Vous m'avez tous trois communiqué le goût de l'ambition scientifique, de la précision et de la pédagogie, et je vous remercie pour les projets exaltants que nous avons menés ensemble. Je dois également beaucoup à G. Bertrand, al-chimiste hors pair qui, avec Matthieu, a poussé l'art plus loin que je ne l'aurais cru possible, V. Kondrasovs, dont l'autorité de physicien nucléaire m'a souvent servi de boussole, et G. Corre, qui a transformé mes mesures en or : vous m'avez tant appris et donné dans des domaines où vous excellez.

Comment oublier mes compagnons de route et de conversation ? A M. Michel, mon premier exemple du doctorant accompli, P. Blanc, dont la fougue et l'audace m'ont toujours inspiré, T. Peyret, en qui j'ai reconnu un alter ego aux ressources incommensurables, Y. Moline, avec qui il est impossible de s'ennuyer, E. Rohée, le condisciple irréprochable dans les heures les plus gaies comme les plus incertaines, Q. Lecomte, qui a si vite rejoint le cercle de mes proches, J. Gameiro, avec lequel j'ai tant d'affinités, T. Brouchet que j'ai eu tant de joie à retrouver entre ces murs, H. Lemaire, dont la gentillesse et la culture sont un refuge, E. Montbarbon, ma parfaite stagiaire qui réussit tout ce qu'elle entreprend, V. Simic et L. Rocha, qui donnent tous deux le modèle de l'excellence du cœur, G. Sannié, mon aîné riche de tant de sciences, H. Hamrita, qui n'a jamais échoué à illuminer mes journées, J.-M. Bourbotte, pour d'aériens échanges, et M. Bakkali, dont la bonté et le courage indiquent le Nord, je dis : merci du fond du cœur.

Je tiens à adresser mes remerciements les plus vifs à l'ensemble des membres du LCAE,

ainsi qu'aux représentants du LM2S (T. Montagu), du DISC (D. Chambellan, B. Rattoni), du SPR (F. Dupanloup, C. Lyron) et de la direction du DM2I (M. Gmar, A. Nguyen, O. Gal, S. Han) : chacun d'entre vous a, comme on dit, fait la différence à un certain moment.

Mes ultimes remerciements, mais non les moindres, sont adressé à mes très proches : Alexia, mes parents, Laura, Catherine et l'ensemble de ma famille et de mes amis. Ce mémoire, qui n'aurait pas vu le jour sans vous, vous est justement dédié.

TABLE DES MATIERES

INTRODUCTION : POSITIONNEMENT DE LA THESE DANS LE CONTEXTE DE LA DETECTION ET DU COMPTAGE NEUTRONIQUES	1
1. <i>Les caractéristiques fondamentales du rayonnement neutronique</i>	1
2. <i>Les applications de la détection et du comptage neutroniques</i>	2
2.1. Protection contre les rayonnements neutroniques.....	3
2.2. Contrôle de l'activité neutronique dans le cycle du combustible	3
2.3. Détection de matière nucléaire.....	4
3. <i>Réactions nucléaires d'intérêt pour la détection et le comptage neutroniques</i>	4
3.1. Section efficace d'interaction, Q de réaction et typologie des produits de réaction....	5
3.2. L'hélium 3.....	6
3.3. Isotopes alternatifs à l'hélium 3	6
CHAPITRE I : LA CAPTURE RADIATIVE DES NEUTRONS THERMIQUES PAR LES NOYAUX DE GADOLINIUM 157 ET 155	11
1. <i>Sections efficaces de capture radiative des neutrons thermiques et Q de réaction</i>	11
2. <i>Le terme source gamma prompt associé aux réactions de captures radiatives $^{157}\text{Gd}(n, \gamma)$ et $^{155}\text{Gd}(n, \gamma)$</i>	12
2.1. Terme source gamma prompt extrait de la base de données PGNAA de l'AIEA.....	12
2.2. Terme source photonique prompt généré avec la librairie ENDF/B-VII.0	16
2.3. Régions d'intérêt dans le spectre photonique prompt et premières pistes de travail .	18
3. <i>Electrons de conversion interne, rayons X et électrons Auger</i>	19
3.1. Les électrons de conversion interne	19
3.2. Rayons X et électrons Auger	21
4. <i>L'atténuation du terme source photonique</i>	23
4.1. La diffusion de Rayleigh-Thompson	24
4.2. L'effet photoélectrique.....	24
4.3. L'effet Compton.....	25
4.4. La matérialisation.....	26
4.5. La réaction photo-nucléaire	26
5. <i>Le parcours des électrons</i>	27
5.1. La perte d'énergie radiative	28

TABLE DES MATIERES

5.2. La perte d'énergie par interaction coulombienne	28
CONCLUSION DU CHAPITRE ET EXPOSITION DE LA DEMARCHE.....	29
SECTION A : LE GADOLINIUM EN SCINTILLATION PLASTIQUE POUR LA DETECTION ET LE COMPTAGE NEUTRONIQUES	33
CHAPITRE II : INTRODUCTION A LA SCINTILLATION PLASTIQUE, PRINCIPE ET NOTIONS-CLES	35
PARTIE I : Introduction à la scintillation plastique	35
1. Mécanismes de scintillation dans la matière organique	35
1.1. Principe des détecteurs à scintillation	35
1.2. Système π -électronique et diagramme énergétique de Perrin-Jablonski.....	35
1.3. La fluorescence prompte, la phosphorescence et la fluorescence retardée.....	36
2. Les différents types de scintillateurs organiques.....	38
2.1. Les cristaux moléculaires organiques	38
2.2. Les scintillateurs organiques liquides	38
2.3. Les scintillateurs plastiques	39
PARTIE II : Critères de mérite pour la caractérisation des scintillateurs plastiques	41
1. Les critères de mérite pour la détection de rayonnements par scintillation	41
1.1. Critères de mérite chimiques	41
1.2. Critères de mérite physiques	42
1.3. Critères de mérite économique-industriels	43
2. Modèle de Birks : le rendement de scintillation et la constante de Birks	43
2.1. Le rendement de scintillation.....	43
2.2. Les phénomènes d'extinction de luminescence	44
2.3. Constante de Birks et équation modifiée	45
3. Fonction de transfert simplifiée de la mesure	46
3.1. L'efficacité de collecte des photons de scintillation par le système de conversion...	47
3.2. Le système de conversion des photons de scintillation en photoélectrons	47
4. La détermination du rendement lumineux	49
5. La discrimination par la forme des impulsions	50
CHAPITRE III : SCHEMA DE COMPTAGE NEUTRONIQUE PAR COMPENSATION A BASE DE SCINTILLATEURS PLASTIQUES DOPES AU GADOLINIUM ET AU BISMUTH.....	53

TABLE DES MATIERES

PARTIE I : Présentation de la méthode de détection et de comptage	53
1. Principe de la méthode de détection.....	54
2. Mode de réalisation à deux voies d'acquisition	55
2.1. Le capteur physique	55
2.2. Numériseur et composant programmable	56
2.3. Logiciel et interface homme-machine	56
3. Mode de réalisation à une voie d'acquisition	57
PARTIE II : Préparation des milieux plastiques scintillants	57
1. Le dopage des plastiques scintillants en éléments lourds pour la détection des rayonnements.....	57
2. Etude bibliographique et choix d'un ligand acétylacétonate non-aromatique pour l'incorporation du gadolinium	58
3. Préparation du milieu plastique scintillant dopé au gadolinium	59
4. Scintillateurs plastiques dopés au bismuth pour la compensation.....	61
4.1. Justification de l'incorporation de bismuth dans le scintillateur de compensation ...	61
4.2. Préparation du milieu plastique scintillant dopé au bismuth	62
PARTIE III : Etude multiparamétrique des scintillateurs plastiques dopés au gadolinium et au bismuth.....	63
1. Composition des scintillateurs plastiques dopés au gadolinium et au bismuth	63
2. Montage et chaîne d'acquisition	65
3. Evolution du rendement lumineux en fonction du chargement en PPO et en dopant organométallique.....	66
PARTIE IV : Etude par simulation de la signature des captures neutroniques dans le scintillateur plastique dopé au gadolinium	68
PARTIE V : Etalonnage en énergie des milieux plastiques scintillants.....	72
PARTIE VI : Comparaison des coefficients de compensation expérimentaux aux résultats de simulation en présence de rayonnements photoniques	75
PARTIE VII : Estimation du coefficient de compensation pour la détection et le comptage neutroniques.....	80
1. Estimation du coefficient de compensation de la réponse photonique sans a priori sur la distribution énergétique du bruit de fond	80
2. Estimation du coefficient de compensation de la réponse photonique avec un a priori sur la distribution énergétique du bruit de fond	81
3. Estimation du coefficient de compensation de la réponse neutronique rapide.....	82
PARTIE VIII : Dimensionnement du système à deux capteurs	84
1. Isolation des deux scintillateurs	84

TABLE DES MATIERES

2. Contribution de la signature d'une capture radiative dans le scintillateur de détection au comptage affiché par le scintillateur de compensation	84
3. Validation des coefficients de compensation de l'activité photonique et neutronique rapide après assemblage des deux capteurs et de l'atténuateur	85
PARTIE IX : Lissage non linéaire et test d'hypothèse pour la détection neutronique.....	86
1. Lissage non linéaire des signaux de comptage sur les deux voies	87
1.1. Lecture et rangement des données	87
1.2. Calcul du vecteur d'estimées	87
1.3. Test d'hypothèse	88
1.4. Adaptation de la fenêtre pour le calcul de l'estimée.....	89
2. Test d'hypothèse pour la détection neutronique.....	89
PARTIE X : Résultats expérimentaux obtenus avec les scintillateurs plastiques H3 et E2 .	91
1. Estimation de la sensibilité neutronique avec la source de californium 252 en l'absence de bruit de fond.....	92
2. Influence de la radioactivité de fond sur l'estimation de l'activité neutronique.....	97
2.1. Bruit de fond dans la salle de mesure	97
2.2. En présence d'une source de césium 137	98
2.3. En présence d'une source d'américium 241	99
CONCLUSION DU CHAPITRE ET PERSPECTIVES	100
CHAPITRE IV : SCHEMA DE COMPTAGE NEUTRONIQUE PAR UNE SPHERE DE PLASTIQUE SCINTILLANT AVEC UN CŒUR DE GADOLINIUM	105
PARTIE I : Etude bibliographique	105
PARTIE II : Présentation de la méthode de détection et de comptage.....	106
1. Principe de la méthode de détection.....	106
1.1. Justification préliminaire de l'intérêt du cœur de gadolinium	107
1.2. Terme source gamma prompt à haute énergie des captures radiatives $Gd(n, \gamma)$	109
2. Mode de réalisation à un scintillateur.....	110
2.1. Le capteur physique	110
2.2. Numériseur, composant programmable, logiciel et interface homme-machine	111
3. Mode de réalisation à deux scintillateurs et discrimination neutron / gamma	111
3.1. Mode de réalisation à deux scintillateurs.....	111
3.2. Scintillateur plastique discriminant neutron / gamma	112
PARTIE III : Dimensionnement d'un détecteur neutronique efficace par simulation.....	114

TABLE DES MATIERES

<i>1. Dimensionnement par simulation d'un premier prototype pour l'évaluation des facteurs de mérite</i>	114
<i>2. Etude par simulation en vue de maximiser l'efficacité de détection neutronique</i>	119
PARTIE IV : Préparation du milieu plastique scintillant et montage de la chaîne d'acquisition et de traitement des impulsions.....	122
<i>1. Préparation du milieu plastique scintillant</i>	122
<i>2. Montage et chaîne d'acquisition</i>	122
PARTIE V : Etalonnage en énergie du scintillateur plastique	123
PARTIE VI : Mesures préliminaires et dimensionnement d'un écran de plomb pour l'évaluation des performances du prototype à matrice de polystyrène en présence d'un émetteur mixte	124
PARTIE VII : Résultats expérimentaux obtenus avec le prototype à matrice de polystyrène	126
<i>1. Mesure de bruit de fond en l'absence de source radioactive</i>	126
<i>2. Courbes de stabilité en débit de dose des taux de comptage affichés en présence de sources neutronique et photonique</i>	127
<i>3. Estimation de la sensibilité neutronique en présence d'une source de californium blindée</i>	130
<i>4. Estimation des limites de détection neutronique en présence de sources photoniques.</i> ..	131
CONCLUSION DU CHAPITRE ET PERSPECTIVES	134
CHAPITRE V : SCHEMA DE COMPTAGE NEUTRONIQUE PAR COMPENSATION A BASE DE SCINTILLATEURS PLASTIQUES DOPES AU BISMUTH ET DE CONVERTISSEURS DE GADOLINIUM ET DE TERBIUM	139
PARTIE I : Etude bibliographique sur l'utilisation de convertisseurs de gadolinium en détection neutronique	139
PARTIE II : Présentation de la méthode de détection et de comptage.....	142
<i>1. Principe de la méthode de détection et de comptage</i>	142
<i>2. Mode de réalisation du schéma de détection et de comptage</i>	143
2.1. Le capteur physique	143
2.2. Numériseur, composant programmable, logiciel et interface homme-machine	145
PARTIE III : Préparation du milieu plastique scintillant et montage de la chaîne d'acquisition et de mesure	145
<i>1. Préparation du milieu plastique scintillant</i>	145
<i>2. Montage et chaîne d'acquisition</i>	147

TABLE DES MATIERES

PARTIE IV : Etude par simulation de la signature des captures neutroniques dans le scintillateur plastique dopé au bismuth et couvert de gadolinium.....	147
PARTIE V : Compensation de la réponse photonique et neutronique rapide par la couverture de terbium.....	151
PARTIE VI : Etalonnage en énergie du scintillateur plastique dopé au bismuth.....	154
PARTIE VII : Test d'hypothèse pour la détection et le comptage neutroniques	156
PARTIE VIII : Résultats expérimentaux obtenus avec le scintillateur plastique dopé au bismuth et les couvertures de gadolinium et de terbium	158
1. Etude du principe : réjection des rayonnements gamma et détection neutronique.....	159
2. Estimation de la sensibilité aux neutrons thermiques	161
CONCLUSION DU CHAPITRE ET PERSPECTIVES	163
SECTION B : LE GADOLINIUM POUR LA DETECTION ET LE COMPTAGE NEUTRONIQUES A BASE DE SEMI-CONDUCTEURS	167
CHAPITRE VI : INTRODUCTION A LA DETECTION DE RAYONNEMENTS A BASE DE SEMI-CONDUCTEURS, PRINCIPE ET NOTIONS-CLES.....	169
PARTIE I : Introduction à la détection à base de semi-conducteurs.....	169
1. Principe de la détection à base de semi-conducteurs.....	169
2. Mécanismes de génération du signal dans un matériau semi-conducteur.....	169
2.1. Structure en bandes des solides.....	169
2.2. Electrons et trous.....	170
2.3. Création des porteurs de charge par un rayonnement ionisant	170
PARTIE II : Mise en œuvre des matériaux semi-conducteurs pour la détection de rayonnements.....	171
1. Les critères de mérite pour la détection à base de matériaux semi-conducteurs.....	171
2. Résolution en énergie idéale des capteurs à base de semi-conducteurs	172
3. Mobilité des porteurs de charge et piégeage.....	173
4. Principaux matériaux semi-conducteurs pour la détection de rayonnements	174
5. Courant induit et collecte des porteurs de charge dans un détecteur à base de semi-conducteur	176
6. Chaînes électroniques associées aux détecteurs à base de semi-conducteurs.....	177
CHAPITRE VII : SCHEMA DE COMPTAGE NEUTRONIQUE PAR COMPENSATION A BASE DE DETECTEURS CdZnTe ET DE CONVERTISSEURS DE GADOLINIUM ET DE TERBIUM.....	181

TABLE DES MATIERES

PARTIE I : Etude bibliographique sur la détection neutronique à base de détecteurs semi-conducteurs denses	181
PARTIE II : Présentation de la méthode de détection et comptage	183
PARTIE III : Détecteur CdZnTe et chaîne d'acquisition et de mesure.....	184
1. <i>Le capteur de tellure de cadmium et zinc (CdZnTe)</i>	184
2. <i>Chaîne d'acquisition et de mesure</i>	184
PARTIE IV : Optimisation de l'épaisseur du convertisseur de gadolinium et étude par simulation de la signature des captures neutroniques dans le détecteur CdZnTe	185
PARTIE V : Compensation de la réponse photonique par la couverture de terbium.....	191
PARTIE VI : Etalonnage en énergie du détecteur CdZnTe	192
PARTIE VII : Test d'hypothèse pour la détection et le comptage neutroniques	194
PARTIE VIII : Résultats expérimentaux obtenus avec le détecteur CdZnTe et les couvertures de gadolinium et de terbium	194
1. <i>Etude du principe : réjection des rayonnements gamma, détection neutronique et contributions caractéristiques</i>	198
2. <i>Estimation de la sensibilité aux neutrons thermiques</i>	200
CONCLUSION DU CHAPITRE ET PERSPECTIVES	200
SECTION C : DETECTION DE RAYONNEMENTS PAR TRANSITION DE PHASE MAGNETIQUE DANS LE GADOLINIUM	203
CHAPITRE VIII : ETUDE DE FAISABILITE SUR UNE DETECTION NEUTRONIQUE PAR TRANSITION DE PHASE MAGNETIQUE DANS LE GADOLINIUM.....	205
PARTIE I : Modèle phénoménologique de Weiss du gadolinium magnétique	205
1. <i>Modèle statistique du gadolinium paramagnétique</i>	206
2. <i>Modèle phénoménologique de Weiss appliqué au gadolinium ferromagnétique</i>	209
PARTIE II : Modèle macroscopique de perturbation des propriétés magnétiques du gadolinium	211
PARTIE III : Etude préliminaire sur la faisabilité d'une détection neutronique.....	212
CONCLUSION DU CHAPITRE ET PERSPECTIVES	214
CONCLUSION GENERALE ET PERSPECTIVES DE LA THESE.....	217
ANNEXE I : Calcul de la densité de probabilité h associée à l'énergie T_p des protons de recul de première diffusion	221

TABLE DES MATIERES

ANNEXE II (COMPLEMENT AU CHAPITRE IV) : Algorithme adapté à une mise en œuvre en réseau pour la détection de radio-émetteurs en mouvement	225
1. <i>Travaux précédents et principe de l'algorithme</i>	225
2. <i>Formalisme mathématique</i>	226
3. <i>Code de simulation pour la comparaison des algorithmes</i>	227
3.1. Simulation du signal de radioactivité.....	227
3.2. Calcul du vecteur-produit des trames temporelles.....	228
3.3. Test d'hypothèse pour la détection d'une source en mouvement à vitesse constante	228
4. <i>Résultats</i>	230
4.1. Piéton	231
4.2. Véhicule	231
5. <i>Conclusions</i>	233
 VALORISATION SCIENTIFIQUE ET ENCADREMENT	 235

TABLE DES FIGURES

Figure I.1 : Spectre de raies gamma promptes après capture radiative $^{157}\text{Gd}(n, \gamma)$ (AIEA)... 13

Figure I.2 : Spectre de raies gamma promptes après capture radiative $^{155}\text{Gd}(n, \gamma)$ (AIEA)... 13

Figure I.3 : Spectre pondéré de raies gamma promptes après capture radiative $\text{Gd}(n, \gamma)$ (AIEA)..... 14

Figure I.4 : Spectre en énergie de l'émission gamma prompte après capture radiative $^{157}\text{Gd}(n, \gamma)$ (Sakurai *et al.*, 2002). 14

Figure I.5 : Configuration simulée au moyen du code MCNPX2.6.0 pour l'estimation du terme source photonique de la librairie ENDF/B-VII.0 (Moritz 1.23). 16

Figure I.6 : Distribution spectrale du taux de photons émis par capture $^{157}\text{Gd}(n, \gamma)$ estimée au moyen du tally 4 (MCNPX2.6.0). 17

Figure II.1 : Diagramme de Perrin-Jablonski et illustration des mécanismes de la luminescence. 37

Figure II.2 : Représentations topologiques de l'anthracène et du (*E*)-stilbène. 39

Figure II.3 : Représentations topologiques du toluène, du xylène, du *p*-terphényle et du POPOP. 40

Figure II.4 : Représentations topologiques du styrène, du PPO et du Bis-MSB..... 41

Figure II.5 : Rendement quantique de la photocathode η_Q en fonction de la longueur d'onde λ (reproduit avec la permission de Hamamatsu Photonics). 48

Figure III.1 : Schéma de principe de mise en œuvre de la méthode de détection..... 55

Figure III.2 : Schéma de principe du composant programmable. 57

Figure III.3 : Représentations topologiques de l'acac et du $\text{Gd}(\text{TMHD})_3$ 59

Figure III.4 : Scintillateurs plastiques dopés au gadolinium, à l'euporium et au terbium, éclairage naturel (a) et UV (b)..... 60

Figure III.5 : Représentation topologique du 1,4-BuMA..... 61

Figure III.6 : Représentation topologique du BiPh_3 62

Figure III.7 : Schéma de principe du traitement des impulsions (carte de numérisation PGN). 65

Figure III.8 : Impulsion de scintillation en sortie du photomultiplicateur (Lecroy). 62

Figure III.9 : Evolution du rendement lumineux en fonction du chargement massique PPO pour différents chargements en élément bismuth (Séries A à E). 67

Figure III.10 : Evolution du rendement lumineux en fonction du chargement massique PPO pour différents chargements en élément gadolinium (Séries F à J). 67

Figure III.11 : Configuration simulée au moyen du code MCNPX2.6.0 pour l'estimation de la signature d'une capture neutronique dans le scintillateur dopé au gadolinium (Moritz 1.23). 70

Figure III.12 : Distribution en énergie simulée avec la librairie ENDF/B-VII.0 de la signature d'une capture neutronique dans le scintillateur dopé au gadolinium. 70

Figure III.13 : Distribution en énergie simulée avec le terme source explicite de la signature d'une capture neutronique dans le scintillateur dopé au gadolinium (avec et sans GEB). 71

TABLE DES FIGURES

Figure III.14 : Spectres en amplitude du scintillateur H1.	73
Figure III.15 : Spectres en amplitude du scintillateur H3.	74
Figure III.16 : Spectres en amplitude du scintillateur E2.	74
Figure III.17 : Courbes d'étalonnage en énergie des scintillateurs H1, H3 et E2.	74
Figure III.18 : Coefficient de compensation $Q_{H3/E2}$ en fonction de l'énergie en comptage total.	78
Figure III.19 : Coefficient $Q_{H3/E2}$ en fonction de l'énergie pour un comptage sur F_1	78
Figure III.20 : Coefficient $Q_{H3/E2}$ en fonction de l'énergie pour un comptage sur F_2	78
Figure III.21 : Coefficient de compensation $Q_{H3/H1}$ en fonction de l'énergie en comptage total.	79
Figure III.22 : Coefficient $Q_{H3/H1}$ en fonction de l'énergie pour un comptage sur F_1	79
Figure III.23 : Coefficient $Q_{H3/H1}$ en fonction de l'énergie pour un comptage sur F_2	79
Figure III.24 : Spectre de l'émission neutronique du californium 252 (Anderson <i>et al.</i> , 1999)	82
Figure III.25 : Spectre gamma prompt et retardé du californium 252 (Smith <i>et al.</i> , 1956)	92
Figure III.26 : Distribution $K = g(t_K)$ évaluée pour $\widehat{N}_{H3}^t = 18$ cp, $\widehat{N}_{H3}^t = \bar{Q} \cdot \widehat{N}_{E2}^t$	94
Figure III.27 : Spectres en énergie des scintillateurs H3 et E2 pour la mesure en présence de la source de californium 252 thermalisée.	95
Figure III.28 : Taux de comptage $\widehat{\lambda}_n$ et $\widehat{\lambda}_{n/\gamma}$ en comptage total en fonction du facteur d'élargissement t_K	95
Figure III.29 : Taux de comptage $\widehat{\lambda}_n$ et $\widehat{\lambda}_{n/\gamma}$ sur F_1 en fonction du facteur d'élargissement t_K	96
Figure III.30 : Taux de comptage $\widehat{\lambda}_n$ et $\widehat{\lambda}_{n/\gamma}$ sur F_2 en fonction du facteur d'élargissement t_K	96
Figure III.31 : Scintillateurs plastiques dopés au gadolinium, de volume 97 cm ³ (a) et 13 cm ³ (b), éclairage naturel et UV.	101
Figure IV.1 : Modèle du spectre de fission spontanée du californium 252 sur [25 meV ; 20 MeV].	108
Figure IV.2 : Modèle du spectre des protons de recul de première diffusion sur [25 meV ; 20 MeV].	108
Figure IV.3 : Schéma de principe de mise en œuvre de la méthode de détection.	110
Figure IV.4 : Schéma de principe d'une consolidation de la mesure à base de deux scintillateurs plastiques.	110
Figure IV.5 : Modèle du spectre d'émission neutronique de l'américium-béryllium (AIEA).	113
Figure IV.6 : Modèle du spectre des protons de recul de première diffusion de l'américium-béryllium.	114
Figure IV.7 : Evolution du taux de capture $\tau_{cn,Gd}$ en fonction du rayon R	117
Figure IV.8 : Evolution du taux de dépôt $\tau_{\gamma,Gd}$ en fonction du rayon R pour différents seuils de comptage.	118

TABLE DES FIGURES

Figure IV.9 : Evolution du taux de dépôt τ_γ en fonction du rayon R pour différents seuils de comptage.	118
Figure IV.10 : Evolution du taux de dépôt τ_p en fonction du rayon R pour différents seuils de comptage.	119
Figure IV.11 : Distribution spatiale des captures radiatives dans le cœur de gadolinium ($r = 0,633$ cm, $R = 11,8$ cm).	120
Figure IV.12 : Comparaison des taux de dépôt $\tau_{\gamma,Gd}$ en fonction du seuil de comptage pour une sphère pleine de 8,4 g et une couronne sphérique de 84 g de gadolinium.	121
Figure IV.13 : Montage expérimental pour l'acquisition de spectres (matrice de polystyrène).	123
Figure IV.14 : Spectres en énergie du scintillateur à matrice de polystyrène en réponse à des sources de césium 137 et de sodium 22.	123
Figure IV.15 : Evolution du taux de comptage affiché en fonction de l'épaisseur du blindage pour différents seuils de comptage.	126
Figure IV.16 : Evolution du taux de comptage dans le local d'essai en l'absence de source radioactive en fonction du seuil.	127
Figure IV.17 : Courbes de stabilité en présence d'une source de californium 252 et d'une ambiance de césium 137 pour différents seuils de comptage.	129
Figure IV.18 : Courbes de stabilité en présence d'une source de californium 252 et d'une ambiance de cobalt 60 pour différents seuils de comptage.	129
Figure IV.19 : Limites de détection neutroniques dans une ambiance de césium 137 pour différentes durées d'intégration (seuil à 5 MeVee).	132
Figure IV.20 : Limites de détection neutroniques dans une ambiance de cobalt 60 pour différentes durées d'intégration (seuil à 5 MeVee).	133
Figure IV.21 : Montage expérimental pour l'acquisition de spectres (matrice de polyvinyltoluène).	135
Figure IV.22 : Spectre en énergie du scintillateur à matrice de polyvinyltoluène en réponse à une source de sodium 22.	136
Figure V.1 : Schéma de principe pour la détection des neutrons (Abdushukurov <i>et al.</i> , 2007).	144
Figure V.2 : Schéma de détection des neutrons en compensation (Kandlakunta <i>et al.</i> , 2012).	144
Figure V.3 : Schéma de détection des neutrons en compensation (Aoyama <i>et al.</i> , 2012).	144
Figure V.4 : Schéma de principe de mise en œuvre de la méthode de détection.	144
Figure V.5 : Eclairage UV du scintillateur plastique dopé au bismuth (à gauche) et du scintillateur EJ- 200 de référence (à droite).	147
Figure V.6 : Configuration simulée au moyen du code MCNPX2.6.0 pour l'estimation de la signature d'une capture neutronique dans le scintillateur dopé au bismuth (Moritz 1.23).	148
Figure V.7 : Distribution en énergie simulée avec la librairie ENDF/B-VII.0 de la signature d'une capture neutronique dans le scintillateur dopé au bismuth.	149
Figure V.8 : Distribution en énergie simulée avec le terme source explicite de la signature d'une capture neutronique dans le scintillateur dopé au bismuth (avec et sans GEB).	149

TABLE DES FIGURES

Figure V.9 : Réponse spectrale simulée du scintillateur plastique dopé au bismuth en présence d'une ambiance photonique à 662 keV, couvert d'une plaque de gadolinium ou de terbium (sans GEB).	152
Figure V.10 : Réponse spectrale simulée du scintillateur plastique dopé au bismuth en présence d'une ambiance photonique à 122 keV, couvert d'une plaque de gadolinium ou de terbium (sans GEB).	153
Figure V.11 : Spectres en énergie du scintillateur plastique dopé au bismuth en réponse à des sources d'américium 241, de cobalt 57 et d'euporium 152.	155
Figure V.12 : Courbe d'étalonnage en énergie du scintillateur plastique dopé au bismuth....	156
Figure V.13 : Distribution de la probabilité K en fonction du facteur d'élargissement t_K	157
Figure V.14 : Montage expérimental pour l'acquisition de spectres (voie de détection).	159
Figure VI.1 : Structure en bandes d'un matériau isolant (a), conducteur (b) et semi-conducteur (c).	171
Figure VI.2 : Schéma-bloc fonctionnel d'une chaîne électronique associée à un détecteur à semi-conducteur.	178
Figure VII.1 : Réponse du cristal de CdTe à un faisceau de neutrons thermiques (Fasasi <i>et al.</i> , 1988).	185
Figure VII.2 : Réponse du cristal de CdTe avec une couverture de gadolinium à un faisceau de neutrons thermiques (Miyake <i>et al.</i> , 2011).	185
Figure VII.3 : Cristal CZT/500(S) (reproduit avec la permission de Ritec SIA).	185
Figure VII.4 : Spectromètre CdZnTe (CEA, LIST).	185
Figure VII.5 : Configuration simulée au moyen du code MCNPX2.6.0 pour l'estimation de la signature d'une capture neutronique dans le capteur CdZnTe (Moritz 1.23).	186
Figure VII.6 : Taux de capture τ_{cn} simulé avec le terme source explicite en fonction de l'épaisseur h	188
Figure VII.7 : Taux de dépôt τ_D simulé avec le terme source explicite en fonction de l'épaisseur h	188
Figure VII.8 : Taux de dépôt τ simulé avec le terme source explicite en fonction de l'épaisseur h	189
Figure VII.9 : Taux de dépôt τ simulé avec le terme source explicite en fonction de l'épaisseur h	189
Figure VII.10 : Distribution en énergie simulée de la signature d'une capture neutronique dans le capteur de CdZnTe (avec GEB).	190
Figure VII.11 : Spectres en amplitude du capteur CdZnTe en réponse à des sources d'américium 241, d'euporium 152, de césium 137 et de sodium 22.	193
Figure VII.12 : Courbe d'étalonnage en énergie du capteur CdZnTe.	193
Figure VII.13 : Ensemble {détecteur de CdZnTe + gadolinium} pour la voie de détection. .	194
Figure VII.14 : Montage expérimental pour l'acquisition de spectres (californium 252 + PEHD).	196
Figure VII.15 : Montage expérimental pour l'acquisition de spectres (californium 252 + bois boré).	196

TABLE DES FIGURES

Figure VII.16 : Différence des spectres obtenus avec le capteur CdZnTe couvert de gadolinium et de terbium (californium 252 + PEHD).....	196
Figure VII.17 : Différence des spectres obtenus avec le capteur CdZnTe couvert de gadolinium et de terbium (californium 252 + bois boré).	197
Figure VII.18 : Différence des spectres obtenus avec le capteur CdZnTe couvert de gadolinium et sans couverture (californium 252 + PEHD).....	197
Figure VII.19 : Différence des spectres obtenus avec le capteur CdZnTe couvert de gadolinium et sans couverture (californium 252 + bois boré).	198
Figure VIII.1 : Modèle de Weiss de l'aimantation du gadolinium en fonction de la température sous $B_{ext,1} = 0,1$ T (bleu) et $B_{ext,2} = 2$ T (rouge).	211
Figure VIII.2 : Evolution du facteur ΔT en fonction de la masse m de gadolinium.....	213
Figure VIII.3 : Evolution du facteur $\sigma(T_c)$ en fonction de la masse m de gadolinium.	213
Figure VIII.4 : Evolution du facteur RSB en fonction de la masse m de gadolinium.	214
Figure AII.1 : Evolution de FOM en fonction de t_K pour un piéton ($\lambda_b = 2000$ cps ; $RSB = 1$).....	232
Figure AII.2 : Evolution de FOM en fonction de t_K pour un véhicule ($\lambda_b = 2000$ cps ; $RSB = 1,5$).....	232

TABLE DES FIGURES

LISTE DES TABLEAUX

Tableau 0.1 : Interactions d'intérêt pour la détection et le comptage neutroniques..... 8

Tableau I.1 : Sections efficaces absolues et pondérées des isotopes du gadolinium pour la capture des neutrons thermiques. 11

Tableau I.2 : Energies de liaison des électrons dans l'élément gadolinium. 20

Tableau I.3 : Rendements de conversion interne par couche électronique. 21

Tableau I.4 : Taux d'émission des principaux électrons de conversion interne lors d'une capture $Gd(n, \gamma)$ 22

Tableau I.5 : Rendements d'émission X et Auger par conversion interne de la couche K. 23

Tableau I.6 : Principaux rayons X et électrons Auger émis lors de la désexcitation radiative du gadolinium..... 23

Tableau III.1 : Composition des scintillateurs plastiques dopés au bismuth. 64

Tableau III.2 : Composition des scintillateurs plastiques dopés au gadolinium. 64

Tableau III.3 : Numéros de canaux avec incertitudes (un écart-type) identifiés à 100 keV et 200 keV pour H1, H3 et E2..... 75

Tableau III.4 : Coefficients de compensation espérés et écarts-types associés en comptage total, et sur les plages d'énergie F_1 et F_2 81

Tableau III.5 : Quotients des taux de dépôt énergétique du terme source dans les scintillateurs de détection et de compensation..... 85

Tableau III.6 : Comparaison des coefficients de compensation pour les scintillateurs simulés séparément et assemblés en présence d'une raie de césium 137 à $E_\gamma = 662$ keV. 85

Tableau III.7 : Taux de comptage moyens en coups par seconde (cps) évalués avec les échantillons H3 et E2 sur les plages d'intérêt. 91

Tableau III.8 : Coefficients de compensation de l'ambiance photonique de la source californium 252 thermalisée en comptage total, et sur les plages d'énergie F_1 et F_2 93

Tableau IV.1 : Composition de la coquille scintillante à matrice de polystyrène..... 122

Tableau IV.2 : Coefficients d'atténuation photonique du plomb entre 1 et 10 MeV..... 124

Tableau V.1 : Composition du scintillateur plastique dopé au bismuth..... 146

Tableau V.2 : Taux de comptage estimés sur les plages de comptage d'intérêt et résultats des tests de détection neutronique (H_0 : absence de neutrons ; H_1 : présence de neutrons, $t_K = 1,96$). 160

Tableau VI.1 : Facteurs de mérite associés aux principaux matériaux semi-conducteurs pour la détection de rayonnements. 175

Tableau VII.1 : Taux de comptage estimés sur les plages de comptage d'intérêt et résultats des tests de détection neutronique (H_0 : absence de neutrons ; H_1 : présence de neutrons, $t_K = 4,4$). 198

LISTE DES TABLEAUX

Tableau IX.1 : Tableau récapitulatif des performances des schémas de détections (Chapitres III, IV et VII).	218
---	-----

INTRODUCTION : POSITIONNEMENT DE LA THESE DANS LE CONTEXTE DE LA DETECTION ET DU COMPTAGE NEUTRONIQUES

L'objet de cette thèse est l'étude de schémas innovants de mise en œuvre de l'élément gadolinium pour des applications de détection et de comptage neutroniques. La nature indirectement ionisante des neutrons impose, en instrumentation nucléaire, la conception de stratégies de mesure spécifiques. Après un rappel des caractéristiques fondamentales du rayonnement neutronique, le cadre applicatif visé par ces travaux sera délimité. Les propriétés d'interaction du gadolinium avec les neutrons thermiques seront enfin comparées à celles d'éléments alternativement employés. Cette comparaison nous permettra de justifier l'intérêt des travaux de recherche conduits sur le gadolinium dans le contexte scientifique et technique contemporain.

1. Les caractéristiques fondamentales du rayonnement neutronique

Le neutron, noté n ou 1_0n , est une particule subatomique ; il s'agit plus précisément d'un baryon, puisqu'il est constitué de trois quarks, et d'un fermion, de spin $S_n = \frac{1}{2}$ demi-entier, obéissant par conséquent à la statistique de Fermi-Dirac. Les propriétés caractéristiques du rayonnement neutronique qui intéressent l'homme de la mesure nucléaire se déclinent comme suit :

- le neutron possède une masse $m_n = 1,00866491597 \pm 0,00000000043$ u (unité de masse des atomes unifiée) ;
- son moment dipolaire vaut $\mu_n = -1,91304273 \pm 0,00000045 \mu_N$ (magnéton nucléaire), inutilisable pour la détection en raison des limites de sensibilité actuelles ;
- sa durée de vie moyenne à l'extérieur du noyau $\tau_n = 885,7 \pm 0,8$ s (seconde), ce qui en fait une particule libre instable ;
- sa charge coulombienne $\mu_n = 0$ C (Coulomb) est nulle.

Ainsi, le rayonnement neutronique appartient, de même que le rayonnement électromagnétique, à la catégorie des rayonnements non-chargés ou neutres : lors de son passage dans la matière, le neutron ne subit pas l'interaction coulombienne avec les électrons du milieu. En revanche, l'interaction des neutrons libres avec les noyaux de la matière, par diffusion ou par réaction nucléaire, génère des particules chargées, ou des rayonnements induisant à leur tour des particules secondaires chargées (tels que les rayons gamma). Ce sont ces particules qui ionisent le milieu de détection, permettant la collecte d'un signal induit par les porteurs de charge et par conséquent la détection du rayonnement incident [0.1]. Le rayonnement neutronique est, pour cette raison, qualifié de rayonnement *indirectement ionisant*. Le signal d'ionisation induit par les produits de ces interactions est désigné sous l'appellation de *signature* du rayonnement neutronique dans le milieu.

Les deux types d'interactions mises en jeu dans la détection indirecte du rayonnement neutronique sont la *diffusion* des neutrons par les atomes du milieu d'une part, et la *réaction nucléaire* des neutrons avec certains de ces atomes d'autre part. Dans le premier cas, si le transfert d'énergie cinétique du neutron au noyau est suffisamment élevé, le noyau chargé est mis en mouvement. Ce noyau, dit *noyau de recul*, ionise alors le milieu de détection au voisinage du point d'interaction. Dans le second cas, les produits de réaction nucléaire (particules alpha, protons, tritons, noyaux de lithium, rayonnements gamma ou fragments de fission), sont à l'origine de l'ionisation du milieu de détection. L'importance relative des diffusions et réactions nucléaires dépend à la fois de l'énergie cinétique T_n du neutron (liée à sa vitesse v par $T_n = \frac{1}{2}m_n v^2$) et de la composition atomique du milieu de détection.

En pratique, les diffusions neutroniques ne sont exploitables [0.1] que lorsque la masse atomique du noyau cible est suffisamment proche de celle du neutron incident, et que l'énergie cinétique initiale portée par le neutron se situe dans la plage dite *rapide*, soit de l'ordre de grandeur du MeV à la dizaine de MeV. C'est à ces conditions que la quantité d'énergie cinétique transférée autorise le recul du noyau cible. La diffusion des neutrons rapides par les noyaux d'hydrogène, et la collecte des charges induites sur la trace du proton de recul, sont ainsi à la base [0.2] de compteurs proportionnels gazeux (dihydrogène H_2 , méthane CH_4), dits à *protons de recul*, ainsi que de compteurs neutroniques à scintillation organique (monocristaux, liquides, plastiques), dont le capteur physique est également riche en matière hydrogénée.

A *contrario*, les réactions nucléaires utilisées en détection neutronique mettent principalement en jeu, ainsi qu'il sera décrit en détail dans le paragraphe 3, des isotopes à forte probabilité d'interaction avec les neutrons dits *thermiques* [0.1]. Il s'agit des neutrons dont l'énergie cinétique la plus probable est voisine de celle qui résulte de la seule agitation thermique, soit 25 meV à température ambiante (19 °C). Le plus notable de ces isotopes est l'hélium 3, dont l'interaction avec les neutrons thermiques sera étudiée dans le paragraphe 3. Pour que cette probabilité d'interaction soit exploitable, il est donc nécessaire que le rayonnement neutronique soit modéré, c'est-à-dire ralenti avant incidence sur le capteur, que ce soit par diffusion dans l'environnement de mesure avant d'atteindre le milieu de détection (par exemple dans le corps humain pour le cas des dosimètres portatifs) ou par le dimensionnement d'un modérateur hydrogéné placé autour du capteur (tel qu'il est mis en œuvre dans les sphères de Bonner à hélium 3). C'est vers la mise en œuvre de ce second type d'interactions entre le rayonnement neutronique et les noyaux de la matière que les travaux de cette thèse ont été orientés.

2. Les applications de la détection et du comptage neutroniques

La détection et le comptage neutroniques représentent un enjeu majeur et transdisciplinaire de la mesure nucléaire, dont le champ d'application est trop vaste pour être exhaustivement décrit ici. Ainsi, par exemple, l'instrumentation pour les hauts niveaux neutroniques au sein des réacteurs nucléaires [0.3], remplit une fonction de contrôle-commande. Elle permet de piloter le fonctionnement du réacteur dans ses différents régimes de puissance tout en assurant la détection de dérives accidentelles. Le cadre applicatif de cette thèse est quant à lui limité à la détection et au comptage, en temps réel, de bas niveaux neutroniques sur bruit de fond gamma de bas niveau.

2.1. Protection contre les rayonnements neutroniques

Le rayonnement neutronique étant neutre, il est peu atténué dans l'air et susceptible de pénétrer profondément dans la matière, ce qui justifie l'attention aiguë qui lui est accordée en radioprotection. La *dosimétrie* [0.4] est l'évaluation de la dose de rayonnement absorbée par le sujet. Cette évaluation doit rendre compte des conséquences de l'exposition en fonction des propriétés de l'émetteur de rayonnements et de l'interaction du rayonnement avec les cellules de l'organisme humain. Ces propriétés rassemblent notamment l'*activité* de l'émetteur, exprimée en désintégrations par seconde ou becquerels, et la nature de l'émission. Un gray est défini comme l'énergie absorbée par un kilogramme d'un milieu matériel homogène lorsque ce dernier est exposé à un joule d'énergie sous forme de rayonnement. La dose équivalente, représentative de l'exposition du sujet au rayonnement, notée H et exprimée en sievert (Sv), est obtenue par multiplication de la dose absorbée, notée D et exprimée en gray, et d'un coefficient de pondération noté W_R , traduisant les effets d'un type de rayonnement donné sur les cellules d'un organisme humain. Le rayonnement neutronique se voit en pratique affecter un coefficient W_R compris entre 5 et 20, en fonction de son énergie, comparable à celui des rayonnements alpha ($W_R = 20$) et significativement plus élevé que le W_R unitaire associé aux rayonnements gamma et bêta. La dose équivalente par unité de temps est dite *débit d'équivalent de dose* (ou plus couramment *débit de dose*) et s'exprime en sievert par heure ($\text{Sv}\cdot\text{h}^{-1}$) : c'est la grandeur de référence pour le suivi de l'exposition aux rayonnements, délivrée en sortie de radiamètre.

Les environnements nécessitant un suivi spécifique du débit de dose neutronique sont multiples. Pour les travailleurs de l'industrie nucléaire, opérant dans les installations du cycle, il s'agit par exemple des ateliers de fabrication et de retraitement du combustible (uranium 235, plutonium 239), des centrales nucléaires, des sites d'entreposage et de décontamination des châteaux de transport du combustible irradié [0.5]. On contrôle en outre strictement l'irradiation des personnels (et des patients le cas échéant) travaillant à proximité des accélérateurs de particules à usage médical, de recherche ou industriel, ainsi que des utilisateurs de sources dédiées notamment à l'étalonnage de détecteurs [0.6]. Les accélérateurs regroupent des générateurs de neutrons par accélération de noyaux de deutérium et réactions deutérium-deutérium et deutérium-tritium, ainsi que des générateurs de réactions photo-nucléaires (γ, n) entre photons de haute énergie et noyaux de deutérium ou de béryllium. Les sources d'étalonnage peuvent être des sources de fission spontanée (californium 252) ou (α, n) radio-isotopiques (américium-béryllium, américium-lithium, plutonium-béryllium).

Le suivi dosimétrique est, dans la pratique, essentiellement assuré au moyen de sondes neutroniques affichant un débit de dose en temps réel (sphères de Bonner à compteur proportionnel d'hélium 3) et de dosimètres portatifs personnels, le plus souvent passifs, c'est-à-dire dont la lecture est différée (dosimètre à albedo, dosimètre photographique à émulsion nucléaire). Le déploiement de sondes neutroniques fondées sur des isotopes alternatifs à l'hélium 3 [0.7], ainsi que la fourniture de dosimètres neutroniques actifs ou opérationnels, lus en temps réel [0.8], forment deux enjeux majeurs de la recherche contemporaine en matière de protection contre les rayonnements neutroniques.

2.2. Contrôle de l'activité neutronique dans le cycle du combustible

Le comptage neutronique joue un rôle central dans le contrôle non destructif passif, c'est-à-dire sans stimulation externe, de la matière fissile tout au long du cycle du combustible nucléaire. Dans le cadre qui fait l'objet de cette thèse, il s'agit principalement d'applications

de suivi et d'inventaire de la matière fissile dans les usines de retraitement, de contrôle et de caractérisation de fûts de déchets nucléaires et d'installations nucléaires démantelées, de contrôle de criticité (évaluation et prévention des risques de réaction en chaîne de fission nucléaire incontrôlée) dans les usines de retraitement ou de fabrication du combustible [0.9].

2.3. Détection de matière nucléaire

La détection neutronique forme enfin l'un des piliers de la détection de matière nucléaire (plutonium, uranium enrichi en isotopes 233 et 235) dans le cadre de la prévention des risques Nucléaires, Radiologiques, Biologiques, Chimiques et Explosifs (abrégié *NRBC-E*) telle qu'ils sont définis dans le *Livre Blanc sur la Défense et la Sécurité Nationale* [0.10]. L'impératif est celui de la lutte contre :

- la prolifération des armements nucléaires ;
- le détournement et la contrebande de matière nucléaire pouvant être utilisée dans des programmes d'armement ;
- la réponse aux menaces de type bombe radiologique ou « bombe sale », c'est-à-dire toute bombe conventionnelle entourée de matériaux radioactifs destinés à être pulvérisés lors de l'explosion et à contaminer une zone géographique la plus étendue possible.

Les détecteurs de rayonnements neutroniques à cet usage peuvent être installés dans les lieux publics, aux points d'entrée et de sortie de sites sensibles, aux frontières nationales. Le pouvoir de pénétration des neutrons, dû à leur neutralité, complique le masquage de la matière fissile illégalement transportée, dont l'émission gamma et les produits de fission peuvent être, en revanche, atténués par blindage. La signature de l'interaction neutronique avec le milieu de détection, lorsqu'elle est discriminable du fond radioactif ambiant, conduit dès lors au déclenchement d'une alarme spécifique, signalant une potentielle introduction de matière nucléaire dans la zone [0.11]. Le taux de fausse alarme ou *faux positif* est particulièrement critique, pour des raisons pratiques évidentes, dans le cadre de la détection de matière nucléaire. Les détecteurs déployés pour ces applications doivent donc, outre une haute sensibilité neutronique, garantir une réjection du bruit de fond, notamment gamma, la plus robuste possible sur la plage d'activités ou de débits de dose la plus vaste possible [0.12].

3. Réactions nucléaires d'intérêt pour la détection et le comptage neutroniques

Les travaux de cette thèse sont axés sur la détection et le comptage des neutrons thermiques *via* l'interaction de ces derniers avec les noyaux du milieu de détection. Nous définirons d'abord les facteurs de mérite permettant d'identifier les réactions nucléaires d'intérêt entre neutrons thermiques et isotopes naturels. Dans un second temps, les caractéristiques de l'isotope d'hélium 3, mis en œuvre dans la majorité des sondes dosimétriques et des portiques de détection de matière nucléaire, seront présentées. Enfin, le positionnement de l'élément gadolinium par rapport à ce dernier isotope, ainsi qu'aux isotopes alternativement étudiés pour le remplacement de l'hélium 3, fera l'objet d'une discussion sur la base des facteurs de mérite détaillés précédemment. Cette discussion nous permettra de justifier l'exploration de schémas de mise en œuvre du gadolinium pour nos applications.

3.1. Section efficace d'interaction, Q de réaction et typologie des produits de réaction

La détection du passage des neutrons thermiques dans la matière est fondée sur les réactions nucléaires entre ces derniers et les noyaux de certains isotopes. Les produits de ces réactions sont alors susceptibles d'ioniser, directement (particules chargées) ou indirectement (photons), le milieu de détection. L'intérêt d'un isotope stable, présent dans la nature, et de la réaction associée pour la détection des neutrons thermiques, est évalué au regard de trois critères principaux [0.13] :

- la probabilité de réaction d'un neutron thermique avec un noyau de l'isotope ;
- la quantité moyenne d'énergie libérée par la réaction ;
- la nature et la distribution énergétique des particules produites par l'interaction, à l'origine de la signature de cette dernière dans le milieu de détection.

La probabilité de réaction est quantifiée [0.14] par une grandeur appelée *section efficace microscopique d'interaction* et notée σ . Cette section décrit la surface apparente du noyau cible pour la réaction considérée du point de vue du neutron incident. L'unité de la section efficace microscopique est le barn, noté b et défini par $1 \text{ b} = 10^{-24} \text{ cm}^2$. Ainsi, pour un neutron pénétrant dans un cylindre de section apparente S , la probabilité d'interaction P avec le noyau cible s'écrit : $P = \frac{\sigma}{S}$. Un isotope d'intérêt doit donc posséder la plus grande section efficace de réaction possible avec les neutrons thermiques.

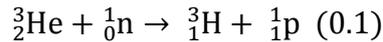
La quantité d'énergie libérée par la réaction, c'est-à-dire la différence entre l'énergie totale partagée par l'ensemble des particules présentes à l'état final et l'énergie totale portée par l'ensemble des particules présentes à l'état initial [0.15], est appelée le *Q de la réaction* (*Q-value* en anglais) et notée Q . La réaction est dite *exothermique* si elle possède une valeur de Q strictement positive. La réaction présentera un potentiel d'exploitabilité d'autant plus grand que le Q de réaction associée sera élevé, puisque la détection du rayonnement dépend de la quantité d'énergie déposée par les produits de réaction dans le capteur.

La quantité d'énergie déposée par les produits de réaction, qui se partage le Q de réaction, dans capteur donné, dépend de la nature et de la distribution énergétique de ces produits. Le but est de maximiser le rapport de la signature neutronique sur le bruit lié aux interactions des rayonnements du fond radioactif dans le capteur. A cette fin, les produits de réaction présentant un transfert d'énergie linéique élevé (soit les produits déposant la plus grande quantité d'énergie possible par unité de distance parcourue dans le capteur), c'est-à-dire les particules lourdes chargées (proton, particule alpha, noyau de lithium), sont favorables à la détection.

En fonction de leur nature, dans les cas où le détecteur autorise une discrimination des particules ionisantes par la forme des impulsions de signal recueillies, et de la distribution énergétique de la signature dans le milieu, les produits de la réaction seront également plus ou moins aisément différenciables de la contribution du fond radioactif aux comptages affichés. Cette discriminabilité participe du mérite d'un isotope et de la réaction associée en vue d'une détection neutronique.

3.2. L'hélium 3

L'hélium 3 est l'isotope le plus largement employé dans les compteurs neutroniques présents sur le marché. Le gaz inerte d'hélium 3 sous pression est contenu dans un tube, lui-même placé à l'intérieur d'un modérateur hydrogéné qui ralentit les neutrons. En effet, la section efficace de réaction mise en œuvre est celle des noyaux d'hélium 3 avec les neutrons thermiques (ou d'énergie cinétique la plus proche possible de $E_{th} = 25$ meV). Le modérateur permet donc de maximiser le taux de capture neutronique dans le gaz. La réaction de capture est notée ${}^3\text{He}(n, p)$ et explicitée selon l'Equation (0.1) :



La section efficace associée $\sigma_{E_{th}} = 5330$ b et la valeur de $Q = 0,764$ MeV. Cette dernière se partage entre un proton p et un noyau de tritium ${}^3\text{H}$, d'énergies cinétiques respectives $E_p = 0,573$ MeV et $E_{{}^3\text{H}} = 0,191$ MeV.

A titre de comparaison, la section efficace de diffusion inélastique ${}^1\text{H}(n, n')$ des neutrons rapides par l'hydrogène, selon les valeurs fournies par la librairie JEFF-3.1.1 [0.16], varie entre 28 et 0,7 b pour des neutrons d'énergie cinétique comprise entre 100 keV et 10 MeV, avec pour valeur à 1 MeV : $\sigma_{E=1 \text{ MeV}} \sim 4$ b. Ces valeurs illustrent l'intérêt de mettre en œuvre des réactions nucléaires entre neutrons lents et isotopes absorbeurs pour la conception de détecteurs sensibles.

Les particules chargées produites par la réaction ionisent directement le milieu gazeux, générant un nuage de charges à l'origine du signal détecté. Le déploiement de l'isotope sous forme gazeuse apporte en outre l'avantage d'une faible probabilité d'interaction avec les rayonnements gamma du fond radioactif. Les performances affichées par les détecteurs commerciaux [0.17] font état d'une sensibilité neutronique de l'ordre du coup par nanosievert neutron (c.nSv^{-1}) pour une vulnérabilité à l'ambiance gamma de l'ordre de 10^{-3} c.nSv^{-1} , soit un facteur de discrimination de l'ordre de 10^3 , robuste jusqu'à des débits de dose de l'ordre du mSv.h^{-1} . C'est donc la combinaison d'une forte sensibilité aux neutrons thermiques, issue de la section efficace de 5330 b, et de la réjection gamma du milieu gazeux qui font des détecteurs à hélium 3 la référence du marché.

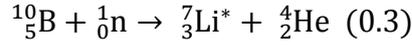
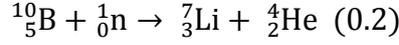
Les attentats du 11 septembre 2001 ont eu pour conséquence le déploiement d'un nombre croissant de détecteurs de matière nucléaire aux frontières. Ils sont ainsi à l'origine d'une explosion de la demande d'hélium 3, principalement fourni par les stocks d'armes nucléaires américains et russes, au cours de la décennie 2000 [0.18]. La menace de pénurie mondiale et les enjeux stratégiques attachés à l'hélium 3 ont généré des fluctuations de valeur importantes sur les marchés, lesquelles se répercutent sur le coût des détecteurs [0.19]. La recherche d'alternatives aux compteurs à hélium 3 forme par conséquent un sujet d'étude de premier plan dans le contexte contemporain.

3.3. Isotopes alternatifs à l'hélium 3

Les isotopes stables, présents dans la nature et possédant une section efficace d'interaction élevée avec les neutrons au voisinage de l'énergie thermique sont en nombre restreint. Les réactions associées aux principaux d'entre eux sont décrites comme suit [0.20] :

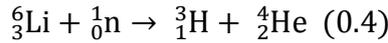
INTRODUCTION

- la réaction de capture $^{10}\text{B}(n, \alpha)$: les neutrons thermiques sont absorbés par les noyaux de l'isotope de bore 10, d'abondance isotopique voisine de 20 % dans le bore naturel, selon l'Equation (0.2) dans 6 % et selon l'Equation (0.3) dans 94 % des cas, suivant que le noyau de lithium 7 produit par la réaction est généré à son niveau d'énergie fondamental ou excité :



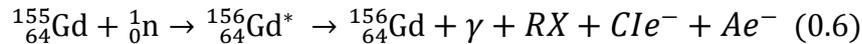
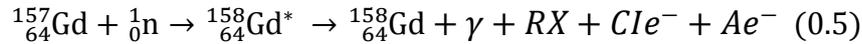
La section efficace associée $\sigma_{E_{th}} = 3840$ b et la valeur de $Q = 2,31$ MeV dans l'Equation (0.2) et $Q = 2,792$ MeV dans l'Equation (0.3). Cette dernière se partage, entre un noyau de lithium 7 ${}^7_3\text{Li}$ et une particule alpha ${}^4_2\text{He}$, d'énergies respectives $E_{{}^7_3\text{Li}} = 0,84$ MeV et $E_\alpha = 1,47$ MeV. Dans le cas de l'Equation (0.3), une raie gamma d'énergie $E_\gamma = 0,48$ MeV est émise suite à la désexcitation du noyau excité ;

- la réaction de capture ${}^6\text{Li}(n, \alpha)$: les neutrons thermiques sont absorbés par les noyaux de l'isotope de lithium 6, d'abondance isotopique voisine de 7,5 % dans le lithium naturel, selon l'Equation (0.4) :



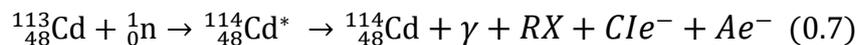
La section efficace associée $\sigma_{E_{th}} = 940$ b et la valeur de $Q = 4,78$ MeV. Cette dernière se partage entre un noyau de tritium ${}^3_1\text{H}$ et une particule alpha d'énergies respectives $E_{{}^3_1\text{H}} = 2,73$ MeV et $E_\alpha = 2,05$ MeV ;

- les réactions de capture radiative $^{157}\text{Gd}(n, \gamma)$ et $^{155}\text{Gd}(n, \gamma)$: les neutrons thermiques sont absorbés par les noyaux des isotopes de gadolinium 157 et 155, d'abondances isotopiques respectives voisines de 15,7 % et 14,8 % dans le gadolinium naturel, selon les Equations (0.5) et (0.6) respectivement :



Les sections efficaces associées sont respectivement $\sigma_{E_{th}} = 254000$ b pour l'isotope 157 et $\sigma_{E_{th}} = 60900$ b pour l'isotope 155. Les valeurs $Q = 7,937$ MeV pour l'Equation (0.5) et $Q = 8,536$ MeV pour l'Equation (0.6) sont partagées entre l'ensemble des produits de désexcitation des noyaux $^{158}_{64}\text{Gd}^*$ et $^{156}_{64}\text{Gd}^*$: rayons gamma notés γ , électrons de conversion interne notés CLe^- , rayons X notés RX et électrons Auger notés Ae^- ;

- la réaction de capture radiative $^{113}\text{Cd}(n, \gamma)$: les neutrons thermiques sont absorbés par les noyaux de l'isotope de cadmium 113, d'abondance isotopique voisine de 12,2 % dans le cadmium naturel, selon l'Equation (0.7) :



INTRODUCTION

La section efficace associée $\sigma_{E_{th}} = 20600$ b et la valeur $Q = 9,04$ MeV, partagée entre l'ensemble des produits de la désexcitation du noyau $^{114}_{48}\text{Cd}^*$: rayons gamma notés γ , électrons de conversion interne notés Cle^- , rayons X notés RX et électrons Auger notés Ae^- .

La recherche d'une alternative compétitive à la technologie basée sur l'isotope d'hélium 3 s'est majoritairement tournée vers les isotopes de bore 10 [0.21] et de lithium 6 [0.22]. Les sections efficaces de réaction de ces isotopes avec les neutrons thermiques sont plus faibles que celle de l'isotope d'hélium 3. Toutefois, le Q de ces réactions est plus élevé et les produits de réactions, notamment de type alpha, présentent l'avantage d'être, comme le proton de la réaction $^3\text{He}(n, p)$, des particules chargées à transfert d'énergie linéique élevé. Les particules alpha sont en outre discriminables de la contribution du fond gamma aux comptages affichés par certains capteurs, notamment des scintillateurs plastiques discriminants [0.23].

Les isotopes de gadolinium 155 et 157 offrent respectivement des sections efficaces de réaction avec les neutrons thermiques de un et deux ordres de grandeur supérieures à celles de l'hélium 3, du bore 10 et du lithium 6, pour des abondances isotopiques dans l'élément naturel comparables à celles des deux derniers isotopes. Les Q-values associées aux réactions $^{157}\text{Gd}(n, \gamma)$ et $^{155}\text{Gd}(n, \gamma)$ sont en outre supérieures d'un facteur à 3 à celle de $^{10}\text{B}(n, \alpha)$ et d'un facteur 1,5 à celle de $^6\text{Li}(n, \alpha)$. Ces deux excellents facteurs de mérite, qui justifient l'étude de schémas de détection neutronique fondés sur les captures radiatives du gadolinium conduite dans cette thèse, sont toutefois contrebalancés, à double titre, par la nature des produits des captures $^{157}\text{Gd}(n, \gamma)$ et $^{155}\text{Gd}(n, \gamma)$. La composante photonique de ces produits, qui domine largement [0.24] le terme de droite des Equations (0.5) et (0.6), forme d'une part un rayonnement neutre, sujet, en particulier à haute énergie, à un fort taux d'échappement dans la plupart des milieux envisageables pour la détection. La signature des produits de réaction dans le milieu de détection, d'autre part, qu'elle soit formée des électrons primaires Cle^- et Ae^- , ou des électrons secondaires générés lors de la diffusion des rayons γ et RX , n'est pas discriminable par nature de celle du fond gamma. L'étude de la nature et de la distribution énergétique de ce terme source de désexcitation, qui fera l'objet du Chapitre I, permettra de déterminer le potentiel d'exploitabilité du gadolinium pour les applications de détection et de comptage neutroniques détaillées dans le paragraphe 2. Les principes de cette étude pourront être adaptés à l'isotope de cadmium 113, dont la réaction de capture des neutrons thermiques présente une section efficace, une Q-value et une signature analogues à celles des deux isotopes d'intérêt de l'élément gadolinium. Le Tableau 0.1 ci-dessous résume les propriétés des interactions entre rayonnements neutroniques et isotopes naturels présentées dans cette introduction.

Interaction	Energie T_n	Section efficace (b)	Q-value (MeV)	Produits
$^1\text{H}(n, n')$	100 keV – 10 MeV	0,7 - 28	-	proton
$^3\text{He}(n, p)$	Thermique	5330	0,764	proton, ion tritium
$^{10}\text{B}(n, \alpha)$	Thermique	3840	2,792	alpha, ion lithium
$^6\text{Li}(n, \alpha)$	Thermique	940	4,78	alpha, ion tritium
$^{157}\text{Gd}(n, \gamma)$	Thermique	254000	7,937	photons, électrons
$^{155}\text{Gd}(n, \gamma)$	Thermique	60900	8,536	photons, électrons
$^{113}\text{Cd}(n, \gamma)$	Thermique	20600	9,04	photons, électrons

Tableau 0.1: Interactions d'intérêt pour la détection et le comptage neutroniques.

Références de l'Introduction :

- [0.1] T. W. Crane, M. P. Baker, "Neutron Detectors", *Passive Non-destructive Assay of Nuclear Materials*, Springfield VA, National Technical Information Service, pp. 379-406 (1991).
- [0.2] K.-H. Beckurts, K. Wirtz, *Neutrons Physics*, Springer-Verlag Berlin Heidelberg GmbH, pp. 59-61 (1964).
- [0.3] J.-P. Burel, "Instrumentation hors cœur des réacteurs", *Techniques de l'Ingénieur*, BN 3 451 (1999).
- [0.4] *Mémento de la radioprotection en exploitation*, Électricité de France, pp. 15-17 (2004).
- [0.5] K. Endo, "Radiation protection at nuclear fuel cycle facilities", *Radiation Protection Dosimetry*, Vol. 146, N° 1-3, pp. 119-122 (2011).
- [0.6] G. Knoll, *Radiation Detection and Measurement*, 4th Ed., John Wiley & Sons, Inc., New York, pp. 19-26 (2010).
- [0.7] J. H. Ely, E. R. Siciliano, A. T. Lintereur, M. T. Swinhoe, "Alternatives for Helium-3 in Multiplicity Counters", *IEEE Transactions on Nuclear Science*, Vol. 60, Iss. 2, pp. 510-514 (2013).
- [0.8] F. Bergmeier, M. Volnhals, M. Wielunski, W. Rühm, "Simulation and calibration of an active neutron dosimeter", *Radiation Protection Dosimetry*, Vol. 161, Iss. 1-4, pp. 126-129 (2014).
- [0.9] A. Lyoussi, "Mesure nucléaire non destructive dans le cycle du combustible. Partie 1.", *Techniques de l'Ingénieur*, BN 3 405 (2005).
- [0.10] J.-C. Mallet, *Livre blanc sur la Défense et la Sécurité nationale*, Odile Jacob, pp. 48, 102-104, 112 (2013).
- [0.11] R. C. Runkle, A. Bernstein, P. E. Vanier, "Securing special nuclear material: Recent advances in neutron detection and their role in non-proliferation", *Journal of Applied Physics*, Vol. 108, Iss. 11, pp. 1101-1121 (2010).
- [0.12] R. Kouzes, J. Ely, *PNNL-19360: Status Summary of ³He and Neutron Detection Alternatives for Homeland Security*, Pacific Northwest National Laboratory, Richland, Washington (2010).
- [0.13] G. Knoll, *Radiation Detection and Measurement*, 4th Ed., John Wiley & Sons, Inc., New York, pp. 519-520 (2010).
- [0.14] C. M. Diop, "Physique des réacteurs - les réactions nucléaires", *Techniques de l'Ingénieur*, BN 3 011 (2006).
- [0.15] K. S. Krane, *Introductory Nuclear Physics*, John Wiley & Sons, Inc., New York, pp. 380-381 (1988).
- [0.16] www.oecd-nea.org/janis/
- [0.17] A. Klett, B. Burgkhardt, "The new remcounter LB 6411: Measurement of neutron ambient dose equivalent H*(10) according to ICRP60 with high sensitivity", *IEEE Transactions on Nuclear Science*, Vol. 44, N° 3, pp. 757-759 (1997).
- [0.18] D. A. Shea, *The helium-3 shortage: supply, demand and options for Congress*, Congressional Research Service (2010).

INTRODUCTION

[0.19] *Managing critical isotopes, weaknesses in DOE's management of helium-3 delayed the federal response to a critical supply shortage*, GAO-11-472, U.S. Government Accountability Office, Washington, D.C. (2011).

[0.20] G. Knoll, *Radiation Detection and Measurement*, 4th Ed., John Wiley & Sons, Inc., New York, pp. 521-523 (2010).

[0.21] S. Normand, B. Mouanda, S. Haan, M. Louvel, "Study of a new boron loaded plastic scintillator", *IEEE Transactions on Nuclear Science*, Vol. 49, Iss. 2, pp. 577-582 (2002).

[0.22] R. D. Breukers, C. M. Bartle, A. Edgar, "Transparent lithium loaded plastic scintillators for thermal neutron detection", *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section A*, Vol. 701, pp. 58-61 (2013).

[0.23] N. Zaitseva, A. Glenn, H. P. Martinez, L. Carman, I. Pawelczak, M. Faust, S. Payne, "Pulse shape discrimination with lithium-containing organic scintillators", *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section A*, Vol. 729, pp. 747-754 (2013).

[0.24] Y. Sakurai, T. Kobayashi, "Experimental verification of the nuclear data of gadolinium for neutron capture therapy", *Journal of Nuclear Science and Technology*, Vol. 39, Sup. 2, pp. 1294-1297 (2002).

CHAPITRE I : LA CAPTURE RADIATIVE DES NEUTRONS THERMIQUES PAR LES NOYAUX DE GADOLINIUM 157 ET 155

Tout schéma de détection fondé sur la réaction entre un neutron thermique et l'un des isotopes listés dans le paragraphe 3 de l'Introduction repose sur l'identification et la quantification des produits de cette réaction. La première étape consiste donc à décrire la réaction de capture des neutrons thermiques par les noyaux de gadolinium, et notamment de la nature, l'énergie et la probabilité d'émission des produits de cette réaction. Ces derniers sont, en effet, à l'origine de la signature du rayonnement neutronique dans les différents milieux de détection. Nous désignerons l'ensemble de ces produits sous l'appellation de *terme source*.

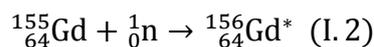
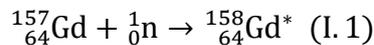
1. Sections efficaces de capture radiative des neutrons thermiques et Q de réaction

Comment justifier le choix du gadolinium comme élément absorbeur neutronique ? Le gadolinium se présente naturellement sous la forme d'une combinaison de 7 isotopes notés ${}^A_{64}\text{Gd}$, à chacun desquels est associée une section efficace microscopique d'interaction avec les neutrons thermiques notée σ_A . Le Tableau I.1, construit à partir des données [I.1] fournies par l'Agence Internationale de l'Energie Atomique (AIEA), présente les sections efficaces absolues associées à chacun des isotopes du gadolinium pour la capture des neutrons thermiques. Il contient également les sections efficaces $\sigma_{A,\text{pond}}$ pondérées par la fraction atomique P_A de l'isotope dans le gadolinium naturel.

Isotope ${}^A_{64}\text{Gd}$	Fraction atomique P_A (%)	σ_A (b)	$\sigma_{A,\text{pond}}$ (b)
${}^{152}_{64}\text{Gd}$	$0,2 \pm 0,01$	735 ± 20	$1,47 \pm 0,04$
${}^{154}_{64}\text{Gd}$	$2,18 \pm 0,03$	85 ± 12	$1,85 \pm 0,26$
${}^{155}_{64}\text{Gd}$	$14,80 \pm 0,12$	60900 ± 500	9013 ± 74
${}^{156}_{64}\text{Gd}$	$20,47 \pm 0,13$	$2,4 \pm 0,2$	$0,49 \pm 0,04$
${}^{157}_{64}\text{Gd}$	$15,65 \pm 0,02$	254000 ± 800	39751 ± 125
${}^{158}_{64}\text{Gd}$	$24,84 \pm 0,07$	$2,2 \pm 0,2$	$0,55 \pm 0,05$
${}^{160}_{64}\text{Gd}$	$21,86 \pm 0,19$	$1,4 \pm 0,3$	$0,31 \pm 0,07$

Tableau I.1 : Sections efficaces absolues et pondérées des isotopes du gadolinium pour la capture des neutrons thermiques.

La section efficace résultante du gadolinium naturel est donnée par $\sigma = \sum_A \sigma_{A,\text{pond}} = 48769 \pm 145$ b, dont 99,99 % sont fournis par les seuls isotopes 157 (81,5 %) et 155 (18,5 %). Dans la suite de cet exposé, le gadolinium naturel, considéré du point de vue de l'interaction avec les neutrons thermiques, sera donc simplifié en un système à deux isotopes absorbeurs $\{({}^{157}_{64}\text{Gd}, 81,5 \%); ({}^{155}_{64}\text{Gd}, 18,5 \%)\}$. Pour ces deux isotopes, les réactions de capture radiative sont respectivement notées ${}^{157}\text{Gd}(n, \gamma)$ et ${}^{155}\text{Gd}(n, \gamma)$ et décrites par les Equations (I.1) et (I.2) :



Il s'agit dans les deux cas de réactions fortement exothermiques, dont les Q de réaction, fournis par la base de données [I.2] du National Nuclear Data Center (NNDC), sont respectivement égales à $Q_{157} = 7937,39 \pm 0,06$ keV pour l'Equation (I.1) et $Q_{155} = 8536,35 \pm 0,07$ keV pour l'Equation (I.2). Après pondération par les coefficients calculés ci-dessus, on obtient un Q de réaction par capture radiative dans l'élément naturel $Q = 8048,2 \pm 0,6$ keV.

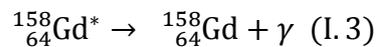
Nous obtenons ainsi, pour le gadolinium, une section efficace microscopique et un Q de réaction d'environ 49000 barns et 8 MeV, respectivement, soit deux facteurs de mérite exceptionnellement favorables pour la détection des neutrons. Toutefois, les équations de réaction, présentées dans le paragraphe suivant, font notamment apparaître des produits de nature électromagnétique (gamma prompts) qui sont :

- sujets à l'échappement dans la plupart des milieux de détection ;
- de même nature que la radioactivité gamma naturelle, de laquelle ils devront être discriminés.

Avant de conclure sur l'exploitabilité des réactions (I.1) et (I.2) en détection neutronique, nous devons donc étudier en détail le terme source produit après réaction nucléaire. Le choix des données nucléaires retenues pour modéliser ce terme source est en effet critique, aussi bien pour le dimensionnement des détecteurs que pour l'interprétation des résultats expérimentaux.

2. Le terme source gamma prompt associé aux réactions de captures radiatives $^{157}\text{Gd}(n, \gamma)$ et $^{155}\text{Gd}(n, \gamma)$

Un neutron thermique est capturé par un noyau ^{157}Gd ou ^{155}Gd . Le noyau excité $^{158}\text{Gd}^*$ ou $^{156}\text{Gd}^*$ des Equations (I.1) et (I.2) rejoint son niveau d'énergie fondamentale, c'est-à-dire son état quantique d'énergie la plus basse, par l'émission de rayonnements de nature électromagnétique. Ce rayonnement dit rayonnement *gamma prompt*, est propre à l'origine nucléaire de l'excitation [I.3], et noté γ dans les équations de désexcitation :



2.1. Terme source gamma prompt extrait de la base de données PGNAA de l'AIEA

Une première base de données nous a permis de quantifier un ensemble de raies intenses qui se détachent de l'émission prompte. La base retenue est celle d'analyse de gamma prompts par activation neutronique (*Prompt Gamma-Ray Neutron Activation Analysis* en anglais, abrégé PGNAA) fournie par l'AIEA. Cette base est construite à partir des données de mesures isotopiques compilées dans le fichier de données de structures nucléaires ENSDF (*Evaluated Nuclear Structure Data File*) et mise à jour à partir des mesures conduites sur le réacteur nucléaire de recherche de Budapest [I.4]. Elle dresse l'inventaire des raies gamma prompts identifiées lors des captures neutroniques à l'énergie thermique pour les deux

isotopes d'intérêt. Les spectres obtenus comportent 390 raies d'énergie comprise entre 79,51 keV et 7857,67 keV pour l'isotope 157 et 324 raies d'énergie comprise entre 57,592 keV et 6764,83 keV pour l'isotope 155. Les spectres complets portant en ordonnée le taux d'émission $P(E_\gamma)$ pour une capture neutronique (abrégé cn^{-1}) par l'isotope considéré sont présentés sur les Figures I.1 et I.2. Ces taux sont calculés à partir de la section efficace d'émission rapportée à l'isotope pour l'émission d'une raie E_γ , notée $\sigma_\gamma^A(E_\gamma)$, de la section efficace totale de réaction σ_0 de l'isotope avec les neutrons à l'énergie thermique et de la fraction atomique de l'isotope P_A selon :

$$P(E_\gamma) = \frac{\sigma_\gamma^A(E_\gamma)}{\sigma_0 P_A} \quad (I.5)$$

Le spectre résultant obtenu par la somme des deux spectres précédents pondérée par les coefficients calculés au paragraphe 1, et représentant par conséquent le taux d'émission par raie pour une capture neutronique dans le gadolinium naturel, est porté sur la Figure I.3.

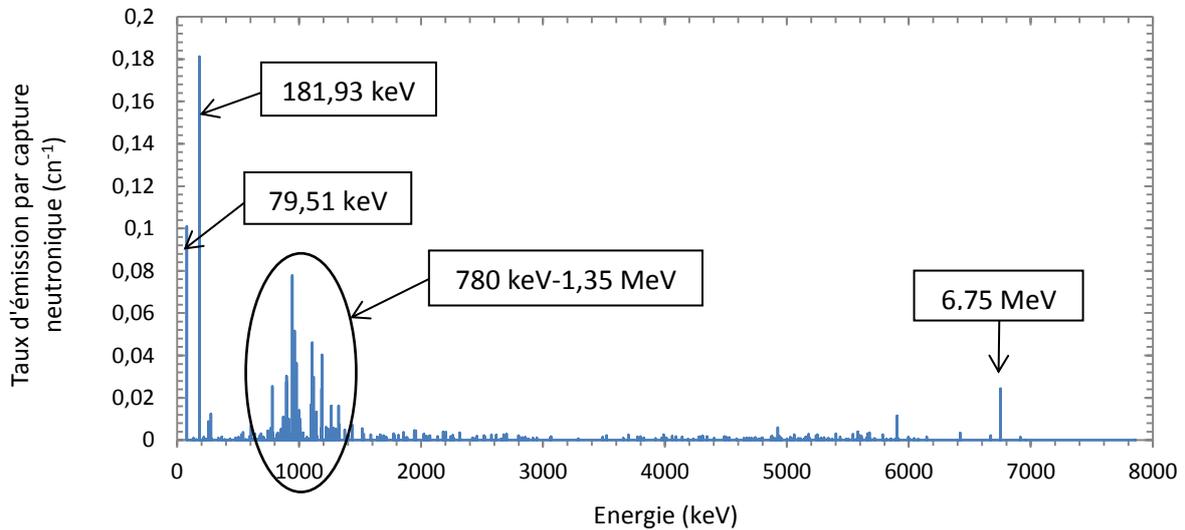


Figure I.1 : Spectre de raies gamma promptes après capture radiative $^{157}\text{Gd}(n, \gamma)$ (AIEA).

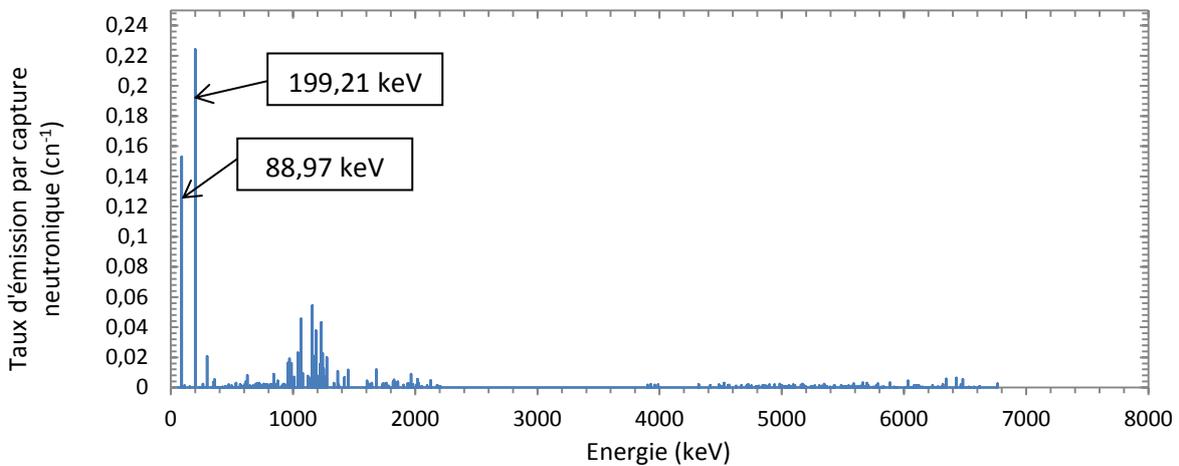


Figure I.2 : Spectre de raies gamma promptes après capture radiative $^{155}\text{Gd}(n, \gamma)$ (AIEA).

Les écarts-types qui encadrent les résultats portent aussi bien sur les incertitudes de mesure consignées dans la base PGNAA que sur les données de sections efficaces et d'abondances isotopiques utilisées dans les calculs.

Les taux d'émission que nous avons obtenus par calcul, pour les captures $^{157}\text{Gd}(n,\gamma)$ et $^{155}\text{Gd}(n,\gamma)$, sont en bon accord avec les données de la littérature. Ainsi, Gräfe *et al.* [I.5] citent, pour les deux raies les plus intenses de la capture $^{157}\text{Gd}(n,\gamma)$, soit $E_\gamma = 79,51 \text{ keV}$ et $E_\gamma = 181,931 \text{ keV}$, les taux d'émission gamma respectifs de $P(79,51 \text{ keV}) = 0,098 \pm 0,007 \text{ cn}^{-1}$ et $P(181,931 \text{ keV}) = 0,183 \pm 0,017 \text{ cn}^{-1}$. Ces taux sont compatibles à un écart-type avec les taux d'émission $P(79,51 \text{ keV}) = 0,10 \pm 0,01 \text{ cn}^{-1}$ et $P(181,931 \text{ keV}) = 0,18 \pm 0,01 \text{ cn}^{-1}$ calculés ici et portés sur la Figure I.1. Les mêmes auteurs citent, pour les deux raies les plus intenses de la capture $^{155}\text{Gd}(n,\gamma)$, soit $E_\gamma = 88,967 \text{ keV}$ et $E_\gamma = 199,213 \text{ keV}$ les taux d'émission de $P(88,967 \text{ keV}) = 0,209 \pm 0,031 \text{ cn}^{-1}$ et $P(199,213 \text{ keV}) = 0,316 \pm 0,019 \text{ cn}^{-1}$. Ces valeurs sont compatibles à deux écarts-types avec les taux d'émission $P(88,967 \text{ keV}) = 0,15 \pm 0,03 \text{ cn}^{-1}$ et $P(199,213 \text{ keV}) = 0,22 \pm 0,05 \text{ cn}^{-1}$ calculés ici et portés sur la Figure I.2. L'accord de nos résultats avec la littérature est ainsi illustré.

La superposition des spectres pondérés portée sur la Figure I.3 met en évidence la large prépondérance de la contribution de l'isotope 157 à la signature espérée pour la capture d'un neutron thermique dans le gadolinium naturel.

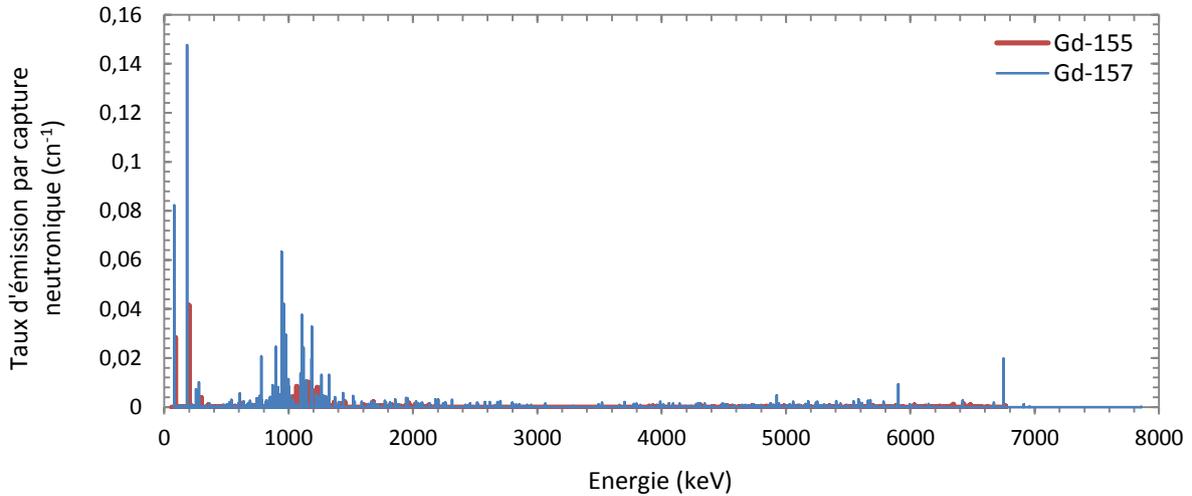


Figure I.3 : Spectre pondéré de raies gamma promptes après capture radiative $\text{Gd}(n,\gamma)$ (AIEA).

Le terme source gamma prompt obtenu pour les captures $^{157}\text{Gd}(n,\gamma)$ et $^{155}\text{Gd}(n,\gamma)$, est utile à l'interprétation de la signature des captures neutroniques, notamment à partir des raies les plus intenses émises à moins de 200 keV. Il ne rend toutefois pas compte de l'ensemble de l'énergie libérée sous forme radiative lors de la désexcitation des noyaux $^{158}_{64}\text{Gd}^*$ et $^{156}_{64}\text{Gd}^*$. Ainsi, l'énergie totale $Q_{\gamma,157}$ libérée par capture neutronique $^{157}\text{Gd}(n,\gamma)$ et portée par les $N_{\gamma,157} = 390$ raies du spectre représenté sur la Figure I.1 est calculée selon :

$$Q_{\gamma,157} = \sum_{N_{\gamma,157}} E_{\gamma,157} P(E_{\gamma,157}) \quad (\text{I.6})$$

soit $Q_{\gamma,157} = 2,0 \pm 0,2$ MeV. Le même calcul portant sur le spectre gamma prompt de la Figure I.2 admet pour résultat $Q_{\gamma,155} = 1,7 \pm 0,3$ MeV.

Le reste des Q de réaction cités au paragraphe 1 pour les réactions $^{157}\text{Gd}(n,\gamma)$ ($Q_{157} = 7,9$ MeV) et $^{155}\text{Gd}(n,\gamma)$ ($Q_{155} = 8,5$ MeV) est porté par un ensemble de raies gamma promptes indiscriminées, représenté dans la littérature sous la forme d'un continuum compris entre 0 et le Q de la réaction. Le spectre présenté sur la Figure I.4, pour le cas de la réaction $^{157}\text{Gd}(n,\gamma)$, est extrait d'une publication de référence de Sakurai *et al.* [I.6]. Nous retrouvons sur cette distribution les raies les plus intenses de la Figure I.1, avec des taux d'émission par capture neutronique du même ordre de grandeur que ceux calculés dans ce chapitre ($P(79,51 \text{ keV}) = 0,115 \text{ cn}^{-1}$). Le spectre met de surcroît en évidence un continuum de raies non discriminées, dont on constate que la fonction de densité de probabilité atteint un maximum de l'ordre de 10^{-2} cn^{-1} au voisinage de 2 MeV.

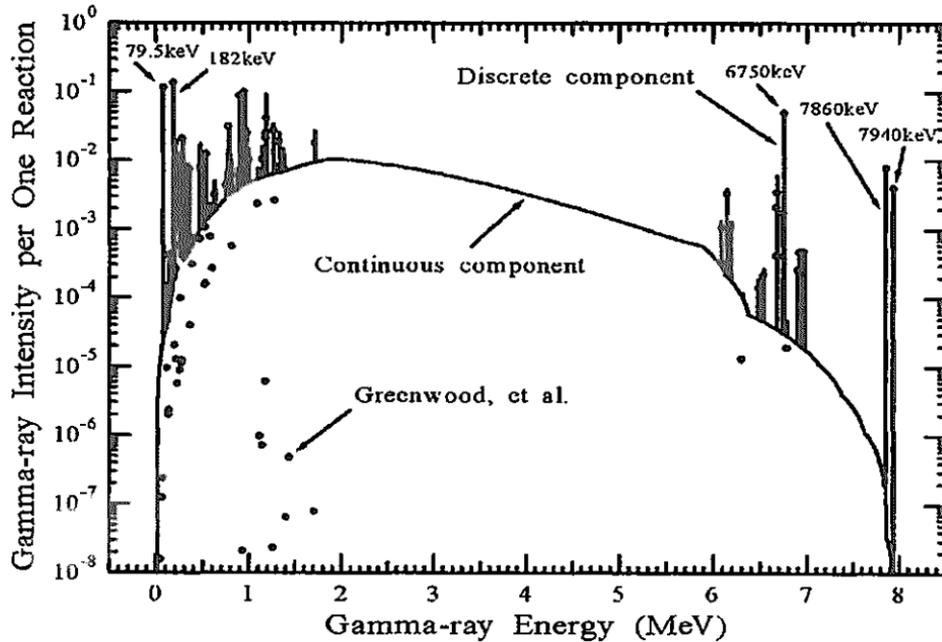


Figure I.4 : Spectre en énergie de l'émission gamma prompte après capture radiative $^{157}\text{Gd}(n,\gamma)$ (Sakurai *et al.*, 2002).

Les écarts entre le spectre de référence de la Figure I.4 et le spectre de raies discrètes de la Figure I.1 sont limités entre 0 et 200 keV. En effet, la fonction de densité de probabilité associée au continuum de la Figure I.4 n'excède pas 10^{-4} cn^{-1} sur cette plage, dominée par les deux raies intenses à $E_{\gamma} = 79,51 \text{ keV}$ et $E_{\gamma} = 181,931 \text{ keV}$ mentionnées ci-dessus. Nous retenons, par conséquent, un premier terme source explicite, celui de la Figure I.3 pour l'élément naturel, qui nous permettra de décrire la signature des pics intenses à basse énergie.

Un second terme source est, en revanche, nécessaire pour l'étude de la signature à plus haute énergie. La contribution du spectre discret de la Figure I.3 est, en effet, largement dominée par celle du continuum illustré par Sakurai *et al.* au-dessus de 200 keV. Cette description sera réalisée en utilisant les spectres d'émission prompte consignés dans la librairie de données nucléaires ENDF/B-VII.0 [I.7], disponible en complément du code MCNPX2.6.0 [I.8] de transport de particules dans la matière.

2.2. Terme source photonique prompt généré avec la librairie ENDF/B-VII.0

Le code MCNPX2.6.0 est un code de transport de particules développé par le Laboratoire National de Los Alamos (Nouveau-Mexique, Etats-Unis). Fondé sur une méthode probabiliste de type Monte-Carlo, il fournit un historique complet des interactions subies par chaque corpuscule, source ou secondaire, généré dans le milieu modélisé, jusqu'à ce que l'énergie cinétique du corpuscule ne devienne inférieure à une valeur plancher ajustable. Différentes librairies peuvent être utilisées en complément du code MCNPX2.6.0 de façon à générer les produits des captures radiatives $^{157}\text{Gd}(n, \gamma)$ et $^{155}\text{Gd}(n, \gamma)$. La librairie ENDF/B-VII.0, disponible au laboratoire et dont l'actualisation date de 2006, a été utilisée pour la génération directe du terme source photonique après capture.

Afin d'obtenir une représentation du spectre photonique prompt issu de la librairie de données, une configuration simple a été simulée : une source neutronique ponctuelle d'énergie $T_n = 25$ meV est placée au centre d'une bille de gadolinium 157 pur (100 %), de rayon $r = 10$ μm et de densité $\rho = 7,901$ $\text{g} \cdot \text{cm}^{-3}$. Au moyen du tally 4 dédié à l'évaluation du flux volumique de particules dans le code MCNPX2.6.0, complété par les options SD4 (normalisation) et E4 (distribution énergétique du flux), la densité spectrale d'émission photonique par génération neutronique est estimée à l'intérieur d'une sphère vide de rayon $R = 1$ cm, entourant la bille. Pour la configuration simulée, représentée sur la Figure I.5 (avec utilisation de la carte PTRAC pour la description du parcours des photons, et de l'interface homme-machine Moritz1.23 [I.9] pour la visualisation), 99,95 % des neutrons thermiques générés par la source sont capturés dans le gadolinium 157, et 99,9 % des photons émis après capture s'échappent de la bille, si bien que le taux de photons traversant la sphère vide par neutron thermique généré représente fidèlement le taux d'émission photonique par capture $^{157}\text{Gd}(n, \gamma)$. La distribution spectrale photonique obtenue est reproduite sur la Figure I.6.

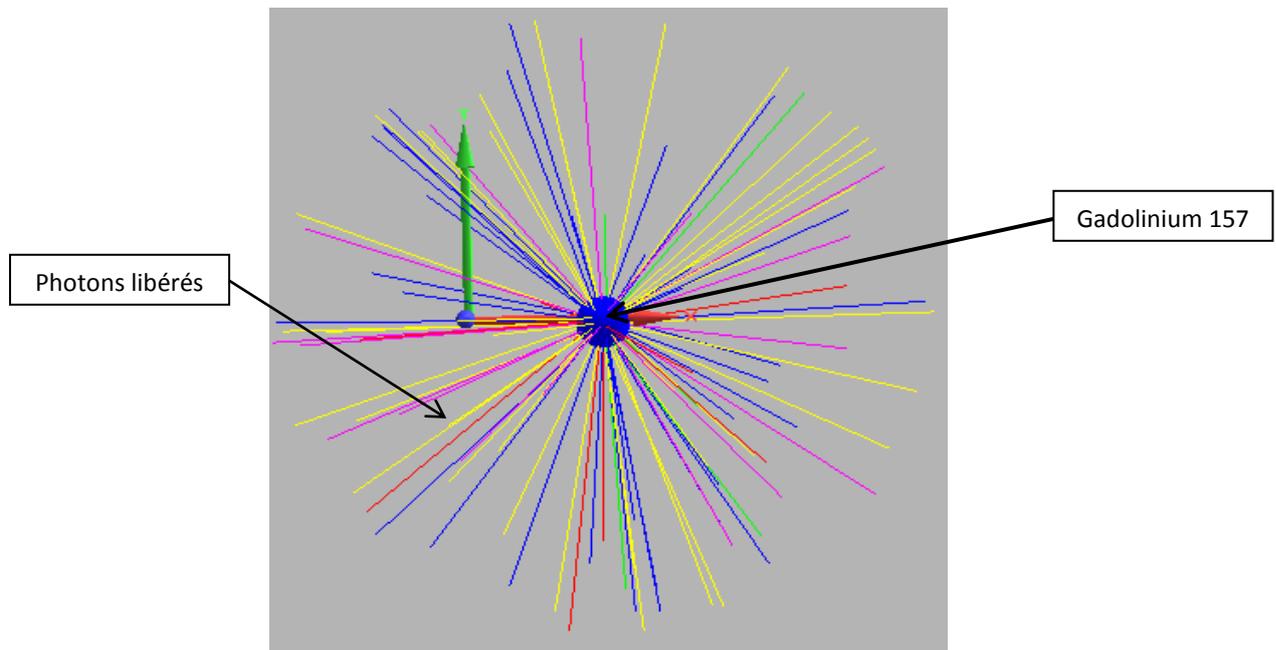


Figure I.5 : Configuration simulée au moyen du code MCNPX2.6.0 pour l'estimation du terme source photonique de la librairie ENDF/B-VII.0 (Moritz 1.23).

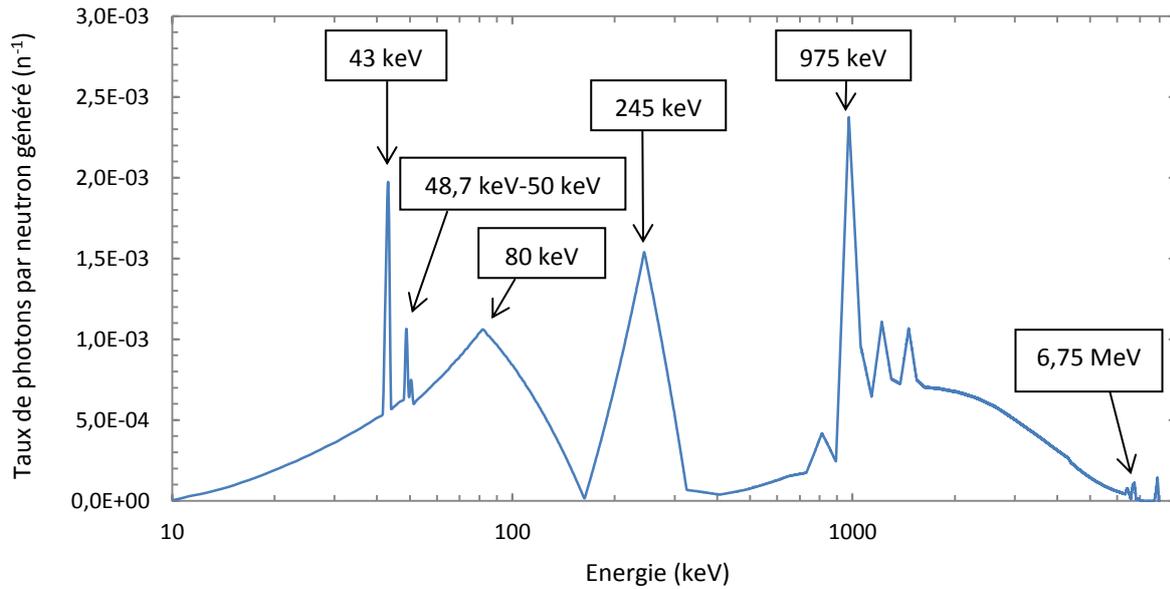


Figure I.6 : Distribution spectrale du taux de photons émis par capture $^{157}\text{Gd}(n, \gamma)$ estimée au moyen du tally 4 (MCNPX2.6.0).

L'énergie totale portée par la distribution de la Figure I.6 est égale à $7,86 \pm 0,05$ MeV, soit $99 \pm 0,1$ % du Q de réaction $Q_{157} \sim 7,94$ MeV attendue pour la réaction de capture $^{157}\text{Gd}(n, \gamma)$. Ce dernier résultat est en excellent accord avec la littérature. Sakurai *et al.* rappellent, en effet, qu'à l'issue d'une capture $^{157}\text{Gd}(n, \gamma)$, 99,2 % du Q de réaction est porté par les produits photoniques de la réaction. Le reste, à hauteur de 0,8 %, est porté par les électrons à basse énergie, sur lesquels nous reviendrons au paragraphe 3 de ce chapitre. Des résultats similaires sont obtenus pour la réaction de capture $^{155}\text{Gd}(n, \gamma)$. En conséquence, le choix d'utiliser la librairie ENDF/B-VII.0 pour l'étude de la signature, attribuable à l'ensemble de l'émission photonique après désexcitation des noyaux $^{158}_{64}\text{Gd}^*$ et $^{156}_{64}\text{Gd}^*$, est justifié.

Le profil de la distribution énergétique illustrée sur la Figure I.6 est identique à celui reproduit par Kandlakunta [I.10], obtenu selon une méthodologie similaire, par la simulation, au moyen du code MCNP5 [I.11], d'une feuille de gadolinium d'épaisseur égale à 12 μm irradiée par un faisceau de neutrons thermiques. La distribution spectrale générée n'admet pas une interprétation physique aussi évidente que les spectres de raies discrètes des Figures I.1 à I.3. Il est toutefois possible, outre la vérification du Q de réaction conduit ci-dessus, de tirer de la Figure I.6 les observations suivantes :

- le spectre met en évidence une contribution très significative (8 % des photons émis) de la composante à basse énergie, sous la forme de deux fronts, le premier compris entre 10 keV et 160 keV et atteignant un maximum à 80 keV, le second entre 160 keV et 325 keV et atteignant un maximum à 245 keV. Ces fronts sont en cohérence avec l'identification de raies très intenses sur cette plage à partir du spectre discret de la Figure I.1. Aucune des raies dominant l'émission gamma promptement identifiée sur la Figure I.1, en particulier les deux raies à $E_\gamma = 79,51$ keV et $E_\gamma = 181,931$ keV, n'est toutefois identifiable sur la Figure I.6 ;

- un continuum très étendu entre 325 keV et 8 MeV, dont la distribution est semblable à celle reproduite par Sakurai *et al.*, de densité croissante jusqu'à un maximum à 1,7 MeV (1,9 MeV dans la référence [I.6]) puis décroissante sous la forme d'une traîne jusqu'au Q de la réaction ;
- quatre pics se détachant du continuum à moyenne énergie, centrés respectivement en 815 keV, 975 keV (pour la plus intense), 1220 keV et 1460 keV, en cohérence avec le groupement de raies très intenses entre 780 keV et 1,35 MeV identifiables sur la Figure I.1 aussi bien que dans la référence [I.6]. Les plus intenses sont émis à $E_\gamma = 944,174$ keV ($0,0777$ c. n⁻¹) et $E_\gamma = 962,104$ keV ($0,0516$ c. n⁻¹) ;
- trois pics à haute énergie, centrés respectivement en 6,4 MeV, 6,75 MeV et 7,9 MeV, également identifiés sur le spectre reproduit par Sakurai *et al.*, et dont le second se détache très nettement à $E_\gamma = 6,75011$ keV ($0,0243$ c. n⁻¹) parmi les raies de la Figure I.1 ;

Trois pics à 43 keV, 48,7 keV et 50 keV peuvent de surcroît être identifiés sur la Figure I.5. Ces énergies correspondent aux énergies d'émission X des raies K_α , K_{β_1} et K_{β_2} du gadolinium, ici générées par le calcul, mais dont la contribution aux produits de réaction des Equations (0.5) et Equations (0.6) sera étudiée, à partir des spectres présentés sur les Figure I.1 à I.3, dans le paragraphe 3 de ce chapitre.

2.3. Régions d'intérêt dans le spectre photonique prompt et premières pistes de travail

La lecture des Figures I.1, I.2 et I.3 suggère une tripartition des raies qui dominent le spectre gamma prompt émis après capture neutronique au sein du gadolinium :

- deux doublets de raies très intenses à basse énergie (moins de 200 keV), respectivement à 79,51 keV et 181,931 keV pour l'isotope 157 (lesquelles dominent nettement la signature résultante dans l'élément naturel) et à 88,967 keV et 199,213 keV pour l'isotope 155 ;
- une forêt de raies à moyenne énergie (entre 200 keV et 3 MeV) ;
- une forêt de raies à haute énergie (plus de 3 MeV).

Quoique le terme source photonique de désexcitation généré par utilisation de la librairie ENDF/B-VII.0, représenté dans le cas d'une capture $^{157}\text{Gd}(n, \gamma)$ sur la Figure I.5, soit moins facilement interprétable, on retrouve, selon la discussion du paragraphe précédent :

- une émission de forme caractéristique et intense entre 10 et 300 keV ;
- un continuum de haute amplitude avec des raies intenses identifiables aux termes dominant la forêt de raies à moyenne énergie entre 300 keV et 3 MeV de la Figure I.3 ;
- une traîne importante à haute énergie, entre 3 et 8 MeV.

Cette analyse de l'émission photonique consécutive aux captures de neutrons thermiques oriente l'exploitation du gadolinium en détection neutronique vers deux grandes stratégies :

- la première vise à mettre en œuvre la signature dans le milieu de détection du terme source à basse énergie (jusqu'à 200-300 keV), à la fois très intense et, du fait même qu'il est peu énergétique, compatible avec le déploiement de capteurs photoniques peu denses et de faible ou moyen volume. La mesure devra toutefois être compensée de la contribution au signal des rayonnements photoniques attribuables à la radioactivité naturelle, indiscernables des premiers par leur nature ni leur énergie ;
- la seconde stratégie tend à tirer parti de la signature dans le milieu de détection du terme source à haute énergie, laquelle se distingue par un seuil en amplitude de la signature des rayonnements gamma les plus énergétiques émis par les radionucléides des chaînes de désintégration de l'uranium 238, de l'uranium 235 et du thorium 232, significativement présents dans la radioactivité naturelle jusqu'à une énergie de 2,614 MeV (thallium 208). Le dépôt d'une fraction significative de cette dernière signature nécessite toutefois un capteur de grande densité et / ou de volume élevé.

La suite de ce manuscrit présente différentes solutions techniques étudiées et mises en œuvre pour concrétiser ces deux stratégies.

3. *Electrons de conversion interne, rayons X et électrons Auger*

Quid de l'énergie de désexcitation des noyaux $^{158}_{64}\text{Gd}^*$ et $^{156}_{64}\text{Gd}^*$ qui n'est pas portée par l'émission gamma prompt ? Nous allons décrire dans ce paragraphe l'émission des électrons de conversion interne, rayons X et électrons Auger émis dans un mode de désexcitation nucléaire concurrent de l'émission gamma prompt, qui vient compléter le terme source à basse énergie.

3.1. Les électrons de conversion interne

Soit le terme source simplifié à basse énergie composé des doublets de raies, respectivement $\gamma_{1,157}$ ($E_{\gamma_{1,157}} = 79,51 \text{ keV}$) et $\gamma_{2,157}$ ($E_{\gamma_{2,157}} = 181,931 \text{ keV}$) pour l'isotope 157, et $\gamma_{1,155}$ ($E_{\gamma_{1,155}} = 88,967 \text{ keV}$) et $\gamma_{2,155}$ ($E_{\gamma_{2,155}} = 199,213 \text{ keV}$) pour l'isotope 155. Les séries de désexcitations auxquelles sont associées ces raies sont à l'origine de près de 97 % des électrons de conversion interne émis lors des captures radiatives [I.6], ce qui justifie la simplification ci-dessus. Nous ne considérerons dans la suite des calculs que les termes d'énergie supérieure à 20 keV et dont le taux d'émission est supérieur à 10^{-3} cn^{-1} . Le seuil de 20 keV correspond à la limite basse en énergie de discrimination des impulsions du bruit électronique dans les différents montages expérimentaux réalisés dans ces travaux de thèse.

Pour les quatre raies définies ci-dessus [I.12], qui dominent largement le spectre de raies de la Figure I.3 à moins de 200 keV, l'émission gamma prompt entre en concurrence avec un mode de désexcitation nucléaire dit de *conversion interne*. La fonction d'onde des électrons du cortège n'étant jamais exactement nulle à l'intérieur du noyau atomique, il existe une probabilité d'interaction directe entre électrons et nucléons. Lors d'une conversion interne, un électron du cortège acquiert directement l'énergie d'excitation du noyau, et est éjecté de l'atome.

Les électrons du cortège d'un atome se répartissent, en fonction de leur nombre quantique principal, sur des couches électroniques successivement notées K, L, M, N, O, P. Ces couches se subdivisent à leur tour en sous-couches que distinguent entre elles le moment cinétique orbital des électrons qui les occupent. Dans le cas de l'élément gadolinium, le remplissage des couches est résumé par la formule $(K)^2(L)^8(M)^{18}(N)^{25}(O)^9(P)^2$. Nous retenons dans ces calculs les sous-couches auxquelles sont associées des probabilités de conversion interne totales supérieures à 10^{-1} , soit les couches K, L et M.

L'énergie de liaison d'un électron occupant la sous-couche m , soit l'apport d'énergie nécessaire pour que cet électron en soit éjecté, est notée $E_{li,m}$. Le Tableau I.2 présente l'énergie de liaison [I.13] associée à chacune des sous-couches considérées dans l'analyse des conversions internes du gadolinium.

Sous-couche m	K	L ₁	L ₂	L ₃	M ₁	M ₂	M ₃	M ₄	M ₅
$E_{li,m}$ (keV)	50,24	8,38	7,93	7,24	1,89	1,69	1,55	1,22	1,19

Tableau I.2 : Energies de liaison des électrons dans l'élément gadolinium.

Pour chacune des quatre raies du terme source $\gamma_{i,j}$, $i \in \{1; 2\}$, $j \in \{157; 155\}$, et chacune des sous-couches m , on note $Cle^{-}_{i,j,m}$ l'électron de conversion interne éjecté en lieu et place du premier. Le rendement d'émission d'un électron de conversion interne de la couche m est désigné par $\eta_{Cle^{-}_{i,j,m}}$. Il est de plus défini, pour chaque raie, un coefficient de conversion interne $\alpha_{i,j}$ selon :

$$\forall i \in \{1; 2\}, \forall j \in \{157; 155\}, \alpha_{i,j} = \sum_m \eta_{Cle^{-}_{i,j,m}} \quad (I.7)$$

L'énergie $E_{Cle^{-}_{i,j,m}}$ à laquelle est émis l'électron de conversion interne est donnée par la différence entre l'énergie de la raie génératrice $E_{\gamma_{i,j}}$ et l'énergie de liaison de l'électron $E_{li,m}$:

$$\forall i \in \{1; 2\}, \forall j \in \{157; 155\}, \forall m \in \{K; L_1; L_2; L_3; M_1; M_2; M_3; M_4; M_5\},$$

$$E_{Cle^{-}_{i,j,m}} = E_{\gamma_{i,j}} - E_{li,m} \quad (I.8)$$

Dans un souci d'allègement du terme source, et conformément à la pratique, on calcule pour chaque couche principale K, L, M, un électron de conversion interne résultant. Le rendement d'émission de cet électron est obtenu par la somme des rendements d'émission des sous-couches associées, et son énergie est calculée comme le barycentre des énergies d'émission associées :

$$\forall i \in \{1; 2\}, \forall j \in \{157; 155\},$$

$$E_{Cle^{-}_{i,j,L}} = \frac{\sum_{m \in \{L_1; L_2; L_3\}} \eta_{Cle^{-}_{i,j,m}} \cdot E_{Cle^{-}_{i,j,m}}}{\sum_{m \in \{L_1; L_2; L_3\}} \eta_{Cle^{-}_{i,j,m}}} \quad (I.9)$$

$$\eta_{Cle^{-}_{i,j,L}} = \sum_{m \in \{L_1; L_2; L_3\}} \eta_{Cle^{-}_{i,j,m}} \quad (I.10)$$

$$E_{Cle^-_{i,j,M}} = \frac{\sum_{m \in \{M_1; M_2; M_3; M_4; M_5\}} \eta_{Cle^-_{i,j,m}} \cdot E_{Cle^-_{i,j,m}}}{\sum_{m \in \{M_1; M_2; M_3; M_4; M_5\}} \eta_{Cle^-_{i,j,m}}} \quad (I.11)$$

$$\eta_{Cle^-_{i,j,M}} = \sum_{m \in \{M_1; M_2; M_3; M_4; M_5\}} \eta_{Cle^-_{i,j,m}} \quad (I.12)$$

Le Tableau I.3 présente les rendements de conversion interne calculés par le programme BrIccS v2.3 [I.14] disponible *via* le NNDC. Les résultats obtenus sont en excellent accord avec les rendements présentés dans la littérature : ainsi, par exemple, les rendements de conversion interne $\eta_{Cle^-_{1,157,K}}$ et $\eta_{Cle^-_{1,155,K}}$ rapportés par Rösler *et al.* [I.15] valent respectivement 1,54 et 2,00 contre 1,559 et 2,017 dans le calcul présenté ici.

$j = 157$		$j = 155$		m
$i = 1$	$i = 2$	$i = 1$	$i = 2$	
$\eta_{Cle^-_{1,157,K}} = 2,017$	$\eta_{Cle^-_{2,157,K}} = 2,06 \cdot 10^{-1}$	$\eta_{Cle^-_{1,155,K}} = 1,559$	$\eta_{Cle^-_{2,155,K}} = 1,565 \cdot 10^{-1}$	K
$\eta_{Cle^-_{1,157,L}} = 3,021$	$\eta_{Cle^-_{2,157,L}} = 7,693 \cdot 10^{-2}$	$\eta_{Cle^-_{1,155,L}} = 1,789$	$\eta_{Cle^-_{2,155,L}} = 5,31 \cdot 10^{-2}$	L
$\eta_{Cle^-_{1,157,M}} = 7,144 \cdot 10^{-1}$	$\eta_{Cle^-_{2,157,M}} = 1,78 \cdot 10^{-2}$	$\eta_{Cle^-_{1,155,M}} = 4,225 \cdot 10^{-1}$	$\eta_{Cle^-_{2,155,M}} = 1,24 \cdot 10^{-2}$	M
$\alpha_{1,157} = 5,933$	$\alpha_{2,157} = 3,053 \cdot 10^{-1}$	$\alpha_{1,155} = 3,877$	$\alpha_{2,155} = 2,25 \cdot 10^{-1}$	

Tableau I.3 : Rendements de conversion interne par couche électronique.

A partir des rendements de conversion interne du Tableau I.3 et des probabilités d'émission des raies portées sur la Figure I.3, le taux d'émission des principaux électrons de conversion interne rapporté à une capture radiative $Gd(n, \gamma)$ est calculé. Les résultats sont portés dans le Tableau I.4, avec mention de l'isotope et de la raie d'origine, ainsi que de la couche occupée par l'électron éjecté.

3.2. Rayons X et électrons Auger

Après éjection d'un électron de la couche électronique m , une case quantique est laissée vide, qui est alors occupée par un électron d'une couche électronique notée p , nécessairement d'ordre plus élevé que la première (au sens de l'ordre lexicographique, on a donc $p > m$). Au cours de la transition qui conduit à l'occupation de la case vacante, un rayonnement électromagnétique dit *rayonnement X* et noté RX est émis, dont l'énergie résultante est égale à la différence entre les énergies de liaison des deux couches électroniques :

$$\forall (m, p), E_{RX} = E_{li,m} - E_{li,p} \quad (I.13)$$

Un mode de désexcitation concurrent de l'émission X est représenté par l'éjection d'un électron d'une couche notée n située entre les deux couches impliquées dans la transition X (on a donc $m < n < p$). Ce rayonnement est dit *rayonnement Auger* et noté Ae^- . L'énergie du rayonnement Auger égale la différence entre celle de la transition X sous-jacente et l'énergie de liaison de l'électron éjecté :

$$E_{Ae^-} = E_{RX} - E_{li,n} \quad (I.14)$$

Après prise en compte des rayonnements de conversion interne, X et Auger, la forme développée des équations de captures radiatives (0.5) et (0.6) du paragraphe 3.3 de l'Introduction est ainsi obtenue.

Energie de l'électron (keV)	Taux d'émission (cn ⁻¹)	Isotope	Energie d'origine (keV)	Couche occupée
29,27	0,166	157	79,51	K
38,73	0,044	155	88,967	K
71,9	0,248	157	79,51	L
77,9	0,059	157	79,51	M
81,3	0,051	155	88,967	L
131,69	0,030	157	181,931	K
148,97	0,006	155	199,213	K
174,1	0,011	157	181,931	L
180,12	0,003	157	181,931	M

Tableau I.4 : Taux d'émission des principaux électrons de conversion interne lors d'une capture Gd(n, γ).

Pour le seuil à 20 keV retenu dans cette étude, seuls les rayons X et électrons Auger émis consécutivement à la vacance, par conversion interne, de la couche K du gadolinium seront traités. De façon à alléger la représentation, on factorise l'émission X et Auger consécutive à l'éjection par conversion interne d'un électron de la couche K sous la forme d'une somme pondérée de cinq termes principaux :

- une raie X notée K_{α_1} d'énergie $E_{K_{\alpha_1}} = 42,996$ keV représentant les transitions par émission photonique entre les couches L_3 et K ;
- une raie X notée K_{α_2} d'énergie $E_{K_{\alpha_2}} = 42,309$ keV représentant les transitions par émission photonique entre les couches L_2 et K ;
- une raie X moyenne notée K_{β_1} d'énergie $E_{K_{\beta_1}} = 48,7$ keV représentant les transitions par émission photonique entre l'ensemble des sous-couches de la couche M d'une part et la couche K d'autre part ;
- une raie X moyenne notée K_{β_2} d'énergie $E_{K_{\beta_2}} = 50$ keV représentant les transitions par émission photonique entre l'ensemble des sous-couches de la couche N et O d'une part et la couche K d'autre part ;
- un électron moyen K-Augér noté Ke^- d'énergie $E_{Ke^-} = 34,9$ keV, soit l'énergie moyenne de l'émission K_{α} moins l'énergie de liaison moyenne de liaison des électrons de la couche L.

La somme de ces cinq signatures, pondérées par leurs rendements d'émission respectifs $\eta_{K_{\alpha_1}}, \eta_{K_{\alpha_2}}, \eta_{K_{\beta_1}}, \eta_{K_{\beta_2}}$ et η_{Ke^-} rapportés à une conversion interne, est égale à l'énergie de liaison de la couche K, soit 50,24 keV. La littérature fournit les intensités relatives des raies X [I.16], et fait état d'un rendement Auger pour Ke^- compris entre 10 et 14 % [I.17]. En

retenant la borne supérieure de ce dernier intervalle, on calcule les rendements d'émission par conversion interne de la couche K portés dans le Tableau I.5.

Rayonnement	K_{α_1}	K_{α_2}	K_{β_1}	K_{β_2}	Ke^-
Rendement d'émission	0,476	0,264	0,147	0,042	0,077

Tableau I.5 : Rendements d'émission X et Auger par conversion interne de la couche K.

A partir des données du Tableau I.5, des rendements de conversion interne de la couche K, pour chaque isotope et chaque raie source, et des taux d'émission des raies sources portées sur la Figure I.3, les taux d'émission des rayonnements X et Auger rapportés à une capture $Gd(n, \gamma)$ sont calculés. Les résultats obtenus sont portés dans le Tableau I.6. Notons que le terme source RX constitue un apport très significatif au spectre de raies photoniques prompts à basse énergie. Gräfe *et al.* [I.5] calculent ainsi un rapport 1,32 entre la somme des contributions de K_{α_1} et K_{α_2} et la raie la plus intense (181,931 keV) du spectre de la Figure I.1. Cette valeur est comparable au rapport de 1,23 calculé ici entre la somme des contributions de K_{α_1} et K_{α_2} et cette même raie, après pondération par le coefficient de 81,5 %, déterminé dans le paragraphe 1 pour l'isotope 157.

Rayonnement	K_{α_1}	K_{α_2}	K_{β_1}	K_{β_2}	Ke^-
Taux d'émission (cn^{-1})	0,118	0,065	0,036	0,010	0,019

Tableau I.6 : Principaux rayons X et électrons Auger émis lors de la désexcitation radiative du gadolinium.

Un terme source simplifié représentatif de l'émission Cle^- , RX et Ae^- sur la plage 20-200 keV rapporté à une capture $Gd(n, \gamma)$ est ainsi obtenu par la réunion des Tableaux I.4 et I.6. Ce terme sera simulé en complément du terme source gamma prompt représenté sur la Figure I.3, afin de modéliser une signature physiquement interprétable, induite par les raies les plus intenses identifiables après la désexcitation des noyaux $^{158}_{64}Gd^*$ et $^{156}_{64}Gd^*$.

Notons en conclusion de ce paragraphe, la contribution du terme source électronique simplifié, qui représente à lui seul un taux d'émission agrégé de 0,62 électron par capture $Gd(n, \gamma)$. Ces électrons portent une énergie totale de 42 keV par capture, soit environ $0,5 \pm 0,1$ % du Q de réaction. Cette fraction représente 63 % de la valeur de 0,8 % du Q de réaction émis sous forme électronique, citée par Sakurai *et al.*, le reste étant porté par des électrons de plus basse énergie négligés dans cette étude. Or les électrons forment un terme source directement ionisant. Le transfert d'énergie de ce terme au milieu de détection est par conséquent plus efficace que celui de la composante photonique des produits de réaction. Le terme source électronique forme ainsi une composante essentielle de la signature à basse énergie des captures neutroniques dans le milieu de détection, aussi bien au regard de l'intensité du signal recueilli que de l'interprétation physique de ce dernier.

4. L'atténuation du terme source photonique

Les équations développées (0.5) et (0.6) des réactions de capture radiative $^{157}Gd(n, \gamma)$ et $^{155}Gd(n, \gamma)$, présentées au paragraphe 3.3 de l'Introduction, mettent en évidence un terme source primaire de nature photonique (rayonnements gamma prompts et X) et électronique

(électrons de conversion interne et Auger), produit par la désexcitation des noyaux $^{158}_{64}\text{Gd}^*$ et $^{156}_{64}\text{Gd}^*$. Le terme source photonique est neutre et donc indirectement ionisant. L'interaction de chacun de ses termes avec le milieu de propagation est modélisée de façon statistique, par une probabilité d'occurrence associée à différents processus [I.18]. Certains de ces processus conduisent à la création d'électrons secondaires, directement ionisants et par conséquent à l'origine d'un signal détectable dans le milieu. Au niveau macroscopique, l'agrégation de l'ensemble des probabilités d'interaction photonique est traduite par un coefficient d'interaction massive, noté μ et exprimé en $\text{cm}^2.\text{g}^{-1}$. L'agrégation des probabilités d'interaction conduisant à la formation du terme source électronique secondaire, via la disparition des photons, est quant à elle représentée par un coefficient d'atténuation massive, noté μ_{att} et également exprimé en $\text{cm}^2.\text{g}^{-1}$. La quantité infinitésimale dN de photons disparaissant dans une épaisseur infinitésimale dr du milieu de propagation est alors donnée par l'équation d'atténuation linéique :

$$dN = -\mu_{att}\rho Ndr \quad (\text{I.15})$$

où ρ est la masse volumique du milieu exprimée en g.cm^{-3} . La quantité de photons N_{att} atténués dans le milieu de propagation, à l'origine du signal détectable, est alors exprimée par l'égalité :

$$N_{att} = N_0(1 - e^{-\mu_{att}\rho r}) \quad (\text{I.16})$$

où N_0 est le terme source photonique initial.

Les processus factorisés dans le coefficient μ se déclinent en cinq modes d'interaction : la diffusion de Rayleigh-Thompson, l'effet photoélectrique, l'effet Compton, la matérialisation et la réaction photo-nucléaire.

4.1. La diffusion de Rayleigh-Thompson

La diffusion de Rayleigh-Thompson est un type d'interaction entre un photon de faible énergie et le cortège électronique d'un atome du milieu de propagation, au cours duquel le photon incident est absorbé et réémis par l'atome sans que l'énergie du photon, notée $h\nu$, ne soit modifiée. Le coefficient d'interaction massive pour la diffusion de Rayleigh-Thompson, noté μ_{RT} , est proportionnel au numéro atomique Z du milieu de propagation et inversement proportionnel au carré de l'énergie $h\nu$ du photon incident :

$$\mu_{RT} \propto \frac{Z}{(h\nu)^2} \quad (\text{I.17})$$

La diffusion de Rayleigh-Thompson ne participe pas, par définition, à l'atténuation photonique représentée par l'Equation (I.16) : $\mu_{RT,att} = 0$.

4.2. L'effet photoélectrique

L'effet photoélectrique est un type d'interaction entre un photon et un électron atomique du milieu de propagation au cours duquel la totalité de l'énergie du photon incident, notée $h\nu$, est transférée à l'électron lié à l'atome par une énergie de liaison E_{li} , lequel est alors éjecté avec une énergie cinétique E_{e^-} donnée par :

$$E_{e^-} = h\nu - E_{li} \quad (\text{I. 18})$$

Le coefficient d'atténuation massique pour l'effet photoélectrique, noté $\mu_{pe,att} = \mu_{pe}$, est une fonction croissante et fortement non linéaire du numéro atomique Z du milieu de propagation, décroissante et fortement non linéaire de l'énergie du photon incident. On retient pour cette double dépendance la formule de tendance empirique :

$$\mu_{pe} \propto \frac{Z^\alpha}{(h\nu)^\beta} \quad (\text{I. 19})$$

où les exposants α et β varient respectivement entre 4 et 5 d'une part et 3 et 4 d'autre part [I.18, I.19]. L'effet photoélectrique est, dans la plupart des milieux de propagation, l'interaction contribuant à l'atténuation photonique dominante jusqu'à un ordre de grandeur 100 keV pour $h\nu$.

4.3. L'effet Compton

L'effet Compton est un type d'interaction entre un photon et un électron atomique du milieu de propagation au cours duquel une fraction de l'énergie du photon incident, notée $h\nu$, est transférée à l'électron lié à l'atome par une énergie de liaison E_{li} . L'électron est alors éjecté avec une énergie cinétique E_{e^-} . Le photon incident est quant à lui diffusé avec une énergie cinétique résiduelle notée $h\nu'$. Le bilan énergétique de la diffusion s'écrit :

$$h\nu = h\nu' + E_{li} + E_{e^-} \quad (\text{I. 20})$$

En négligeant l'énergie de liaison, généralement très faible devant les autres termes de l'Equation (I.20), l'énergie dite de *recul de l'électron* peut être exprimée sous la forme :

$$E_{e^-} = h\nu \left[1 - \frac{1}{1 + \frac{h\nu(1 - \cos(\theta))}{m_e c^2}} \right] \quad (\text{I. 21})$$

où m_e est la masse de l'électron et θ l'angle entre la direction de propagation du photon incident et celle du photon diffusé.

L'effet Compton peut ainsi être considéré [I.20] du point de vue de l'électron de recul (on parle alors d'*absorption Compton* ou de *recul Compton*) ou de celui du photon diffusé (on parle dans ce cas de *diffusion Compton*). Le coefficient d'atténuation massique pour l'effet Compton est égal à celui de recul Compton $\mu_{C,att} = \mu_{C,rec}$, lequel contribue au signal mesuré. Le coefficient de diffusion Compton $\mu_{C,diff}$ participe, quant à lui, à l'accroissement de la population photonique à énergie inférieure ou égale à $h\nu$, intégrée dans le facteur de build-up. Les coefficients $\mu_{C,rec}$ et $\mu_{C,diff}$ sont tous deux des fonctions de l'énergie $h\nu$ du photon incident :

$$\mu_{C,rec} = f(h\nu) \quad (\text{I. 22})$$

$$\mu_{C,diff} = g(h\nu) \quad (\text{I. 23})$$

La fonction f est croissante jusqu'à un maximum, atteint pour une énergie qui dépend du milieu de propagation, puis décroissante jusqu'à l'infini. La fonction g est quant à elle monotonement décroissante. L'évolution du coefficient somme μ_C avec l'énergie $h\nu$ est également monotonement décroissante et peut-être approchée par une loi en inverse [I.21] :

$$\mu_C \propto \frac{1}{h\nu} \quad (\text{I.24})$$

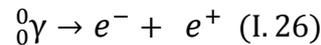
Le coefficient μ_C est par ailleurs proportionnel au quotient du numéro atomique et du nombre de masse du milieu de propagation :

$$\mu_C \propto \frac{Z}{A} \quad (\text{I.25})$$

Ce quotient, hormis pour l'hydrogène, varie peu avec l'élément considéré ($\frac{Z}{A} = 0,45 \pm 0,05$), si bien que la probabilité d'effet Compton dépend marginalement du numéro atomique du milieu de propagation, tout en dépendant fortement, d'après l'Equation (I.16), de la densité de ce dernier ainsi que de l'énergie du photon incident. Le recul Compton est, dans la plupart des milieux de propagation, l'interaction contribuant à l'atténuation photonique dominante pour des ordres de grandeur de $h\nu$ compris entre la centaine de keV et quelques MeV.

4.4. La matérialisation

La matérialisation ou *création de paire* est un type d'interaction entre un photon incident noté ${}^0_0\gamma$ et le champ coulombien d'un noyau atomique du milieu de propagation, au cours duquel le photon incident est annihilé pour donner naissance simultanément à un électron noté e^- et à l'antiparticule de ce dernier, un positon noté e^+ :

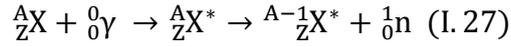


La matérialisation est un processus à seuil, qui nécessite que l'énergie du photon incident excède $h\nu = 2m_e c^2 = 1022$ keV, où m_e est la masse de l'électron et c la célérité de la lumière dans le vide. L'excédent énergétique est porté par la paire électron-positon sous forme d'énergie cinétique. Le positon s'annihile rapidement avec un électron du milieu de propagation pour générer deux photons de 511 keV chacun, émis à 180° d'angle l'un de l'autre.

Le coefficient d'atténuation massique pour la matérialisation, noté $\mu_{m,att} = \mu_m$, est une fonction fortement croissante de l'énergie du photon incident $h\nu$ entre 1022 keV et l'infini. La probabilité de matérialisation est proportionnelle au carré du numéro atomique Z du milieu de propagation, et le processus ne devient prédominant [I.18] qu'à partir d'un seuil variant, selon le milieu de propagation, entre 5 et 10 MeV.

4.5. La réaction photo-nucléaire

La réaction photo-nucléaire est un type d'interaction entre un photon incident noté ${}^0_0\gamma$ et le noyau d'un atome du milieu de propagation noté A_ZX , au cours duquel le photon incident est absorbé par le noyau qui se désexcite en émettant un ou plusieurs nucléons. L'Equation (I.27) présente un exemple de telle réaction dans lequel un seul neutron est émis après excitation :



La réaction photo-nucléaire ne devient un processus significatif [I.18] qu'à très haute énergie, au-delà de 10 MeV pour la plupart des isotopes, si bien qu'elle sera négligée dans la suite de ce manuscrit. La signature photonique des captures radiatives ${}^{157}\text{Gd}(n, \gamma)$ et ${}^{155}\text{Gd}(n, \gamma)$ est en effet bornée à 8 MeV, et les ambiances gamma dans lesquelles seront effectuées les mesures expérimentales inférieures à 3 MeV.

Il vient après étude des différents processus d'atténuation de la signature photonique que les coefficients d'interaction et d'atténuation massique de la signature photonique s'expriment sous la forme d'une somme de termes. Les importances relatives de ces termes varient aussi bien en fonction de l'énergie du rayonnement que des propriétés physiques (numéro atomique, densité) du milieu considéré :

$$\mu = \mu_{RT} + \mu_{pe} + \mu_C + \mu_m \quad (I.28)$$

$$\mu_{att} = \mu_{pe} + \mu_{C,rec} + \mu_m \quad (I.29)$$

5. Le parcours des électrons

Les électrons de conversion interne et Auger, mis en évidence dans les équations développées (0.5) et (0.6) des réactions de capture radiative ${}^{157}\text{Gd}(n, \gamma)$ et ${}^{155}\text{Gd}(n, \gamma)$, présentées au paragraphe 3.3 de l'Introduction, forment le terme source électronique primaire pour la détection des neutrons thermiques incidents. Ce dernier est complété par un terme source secondaire regroupant la totalité des électrons générés par effet photoélectrique, effet Compton et matérialisation, au cours de l'atténuation du terme source photonique primaire (rayonnements gamma prompts et X).

Le terme source électronique est chargé et par conséquent directement ionisant ; l'interaction de chacun de ses termes avec le milieu matériel de propagation est représentée par un pouvoir d'arrêt noté S . Ce pouvoir d'arrêt est défini comme la quantité d'énergie déposée dans le milieu par unité de distance parcourue par l'électron, et usuellement exprimé en $\text{keV} \cdot \mu\text{m}^{-1}$ ou $\text{MeV} \cdot \text{cm}^{-1}$ [I.18]. Si r est la position de l'électron qui dépose son énergie cinétique au sein du milieu de propagation, et $E(r)$ l'énergie de cet électron en chaque point de son déplacement, le pouvoir d'arrêt du milieu s'exprime en fonction de l'énergie résiduelle de l'électron selon :

$$S(E(r)) = -\frac{dE}{dr}(E(r)) \quad (I.30)$$

En supposant le milieu de propagation infini, la longueur totale notée R du parcours de l'électron peut être exprimée sous forme explicite :

$$dr(E) = -\frac{dE}{S(E)}$$

$$\Rightarrow R = \int_{E_i}^0 dr(E) = \int_0^{E_i} \frac{dE}{S(E)} \quad (\text{I. 31})$$

où E_i est l'énergie initiale de l'électron.

Les processus de transfert énergétique factorisés dans le pouvoir d'arrêt S se déclinent en deux modes : la perte d'énergie radiative et la perte d'énergie par interaction coulombienne.

5.1. La perte d'énergie radiative

Le rayonnement de freinage ou *Bremsstrahlung* est un mode de perte d'énergie radiative dans lequel une fraction de l'énergie cinétique de l'électron est dissipée par émission d'un rayonnement X, lors du passage de l'électron à proximité du champ électrique du noyau d'un atome. L'électron est ainsi freiné et sa trajectoire modifiée. La perte infinitésimale d'énergie radiative par unité de distance, notée $\left(\frac{dE}{dr}(r)\right)_{rad}$, est proportionnelle à l'énergie $E(r)$ de l'électron ainsi qu'au produit $(Z + 1)Z$ du milieu de propagation :

$$\left(\frac{dE}{dr}(r)\right)_{rad} \propto E(r)Z(Z + 1) \quad (\text{I. 32})$$

Le rayonnement de freinage ne devient dominant qu'à haute, voire très haute énergie cinétique de l'électron (plus de 10 MeV), typiquement en sortie d'un accélérateur, tandis que l'énergie des électrons du terme source électronique secondaire est bornée à 8 MeV. La contribution du Bremsstrahlung au pouvoir d'arrêt des électrons forme par conséquent, dans la plupart des milieux de détection, un processus de second ordre dans le pouvoir d'arrêt du terme source secondaire électronique.

5.2. La perte d'énergie par interaction coulombienne

L'électron interagit principalement avec le cortège électronique des atomes du milieu de propagation. L'interaction coulombienne se subdivise en trois modes de transfert énergétique, que l'on distingue par la quantité d'énergie cinétique transférée : l'*excitation*, l'*ionisation* et la *collision delta*.

L'excitation est un mode d'interaction entre l'électron incident et le cortège électronique d'un atome du milieu de propagation au cours duquel l'énergie transmise par l'électron incident à un électron du cortège, notée E_{ex} , est inférieure au potentiel d'ionisation, noté I , de l'atome cible ($E_{ex} < I$). Ce dernier est alors porté à un niveau énergétique supérieur à son niveau fondamental sans qu'aucun électron ne soit éjecté.

L'ionisation simple est un mode d'interaction entre l'électron incident et le cortège électronique d'un atome du milieu de propagation au cours duquel l'énergie transmise par l'électron incident à un électron du cortège, notée E_{io} , est supérieure au potentiel d'ionisation, noté I , de l'atome cible ($E_{io} > I$). L'électron auquel l'énergie est transférée est expulsé du cortège, créant ainsi un ion et emportant une énergie cinétique de valeur $E_{io} - I$.

La collision delta, notée δ , est un mode d'interaction au cours duquel l'électron éjecté du cortège emporte une énergie cinétique, de valeur $E_\delta - I$ (où E_δ désigne l'énergie transmise

par l'électron incident à l'électron éjecté) supérieure au potentiel d'ionisation d'un autre atome du milieu, noté I' ($E_\delta - I > I'$). L'électron éjecté du cortège, qui porte la dénomination de *rayonnement delta* (ou δ), est alors susceptible d'entraîner à son tour une ionisation du milieu de propagation. Le rayonnement δ induit par un rayonnement δ est dit *rayonnement epsilon* (ϵ) du point de vue du terme source électronique, et ainsi de suite.

La perte infinitésimale d'énergie coulombienne par unité de distance, notée $\left(\frac{dE}{dr}(r)\right)_{coul}$, est proportionnelle au numéro atomique Z du milieu de propagation :

$$\left(\frac{dE}{dr}(r)\right)_{coul} \propto Z \quad (\text{I.33})$$

Le pouvoir d'arrêt du milieu de détection sur le terme source primaire et secondaire électronique, à l'origine de la *signature* d'une capture radiative dans le capteur, s'exprime sous la forme d'une somme de termes dont les importances relatives varient aussi bien en fonction de l'énergie du rayonnement que des propriétés physiques du milieu considéré :

$$S = -\left(\frac{dE}{dr}(r)\right)_{rad} - \left(\frac{dE}{dr}(r)\right)_{coul} \quad (\text{I.34})$$

CONCLUSION DU CHAPITRE ET EXPOSITION DE LA DEMARCHE

Ce chapitre décrit les réactions de capture radiative des neutrons thermiques par les noyaux de gadolinium 157 et 155, dont cette thèse se propose d'évaluer la mise en œuvre dans des schémas dédiés aux applications de détection présentées dans l'Introduction. Les produits de ces réactions dont l'émission est la plus intense (gamma prompts, rayons X, électrons de conversion interne) ont fait l'objet d'une étude calculatoire sur la base des données d'analyse par activation de l'AIEA. Le but de cette étude était l'élaboration d'un terme source explicite dont la signature, dans un milieu de détection, admette une interprétation physique. L'utilisation de la librairie ENDF/B-VII.0 pour la génération de l'ensemble de l'émission radiative dans les simulations de type Monte-Carlo, sur la base de la conservation du Q de réaction et des traits majeurs de la distribution (émission X, fronts entre 20 keV et 200 keV, pics entre 800 keV et 1500 keV, traîne à haute énergie), a également été justifiée.

L'étude de la distribution énergétique des produits émis par désexcitation des noyaux $^{158}_{64}\text{Gd}^*$ et $^{156}_{64}\text{Gd}^*$ a permis de dégager deux voies de mise en œuvre privilégiées :

- la première exploitant la signature photonique et électronique à basse énergie (jusqu'à 200-300 keV), qui requiert une *soustraction en temps réel* du bruit de fond gamma sur cette plage ;
- la seconde tirant parti de l'émission gamma prompte à haute énergie, au-dessus du plafond de la radioactivité naturelle gamma (2,614 MeV).

La suite du manuscrit détaille les travaux d'étude par simulation et par mesure expérimentale de schémas de détection et de comptage neutroniques fondés sur ces deux pistes.

La finalité des recherches portant sur les isotopes à section efficace d'interaction avec le rayonnement neutronique élevée est de fournir une alternative compétitive au déploiement des compteurs à hélium 3. Pour cette raison, le premier type de milieux de détection exploré est celui des scintillateurs plastiques, modulables et de coût modeste. La Section A regroupe les études conduites en scintillation plastique. Le Chapitre II rappelle les mécanismes de la scintillation plastique et les critères de mérite employés pour l'évaluation des scintillateurs. Le Chapitre III présente un schéma de détection et de comptage mettant en œuvre un scintillateur de faible volume (centimètre cube) dopé au gadolinium, sensible aux neutrons thermiques, et dont la réponse gamma est compensée par un scintillateur dopé au bismuth, de façon à isoler la signature à basse énergie des captures neutroniques. Le Chapitre IV décrit un scintillateur plastique de volume élevé (décimètre cube), chargé d'un cœur de gadolinium sous forme métallique, dans lequel on cherche à identifier la signature gamma prompte à haute énergie. Le Chapitre V détaille un second schéma dédié à l'isolation de la signature à basse énergie, sous la forme de deux scintillateurs plastiques dopés au bismuth, dont le premier est couvert de gadolinium et sensible aux neutrons thermiques, et le second couvert de terbium pour la soustraction de la réponse aux rayonnements gamma.

L'émission intense à basse énergie se prête au déploiement de détecteur à semi-conducteurs, donnant accès à des signatures plus élevées à volume réduit ainsi qu'à des informations spectroscopiques. La Section B présente donc, après une introduction à la détection à base de matériaux semi-conducteurs (Chapitre VI), une transposition du dernier schéma de la Section A, sous la forme de capteurs de tellure de cadmium et zinc couverts de gadolinium et de terbium, qui fait l'objet du Chapitre VII.

La section C, enfin, décrit les propriétés magnétiques du gadolinium au voisinage de la température ambiante. Les résultats d'une étude préliminaire de faisabilité, portant sur un schéma de détection de la perturbation de ces propriétés par les électrons secondaires les plus énergétiques du terme source de désexcitation, sont rapportés dans le Chapitre VIII.

Références du Chapitre I :

[I.1] A. D. Carlson, V. G. Pronyaev, D. L. Smith, N. M. Larson, Z. Chen, G. M. Hale, F.-J. Hamsch, E. V. Gai, S.-Y. Oh, S. A. Badikov, T. Kawano, H. M. Hofmann, H. Vonach, S. Tagesen, "International Evaluation of Neutron Cross Section Standards", *Nuclear Data Sheets*, Vol. 110, Iss. 12, pp. 3215-3324 (2009).

[I.2] B. Pritychenko, E. Běták, M. A. Kellett, B. Singh, J. Totans, "The Nuclear Science References (NSR) database and Web Retrieval System", *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research A*, Vol. 640, Iss. 1, pp. 213-218 (2011).

[I.3] G. R. Gilmore, *Practical Gamma-ray Spectrometry*, 2nd Edition, John Wiley & Sons Ltd, The Atrium, Southern Gate, Chichester, West Sussex, England, pp. 8-9 (2008).

[I.4] H. D. Choi, R. B. Firestone, R. M. Lindstrom, G. L. Molnár, S. F. Mughabghab, R. Paviotti-Corcuera *et al.*, *Database of prompt gamma rays from slow neutron capture for elemental analysis*, International Atomic Energy Agency, Vienna (2007).

[I.5] J. L. Gräfe, F. E. McNeill, D. R. Chettle, S. H. Byun, "Characteristic X ray emission in gadolinium following neutron capture as an improved method of in vivo measurement: A comparison

between feasibility experiment and Monte-Carlo simulation”, *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research B*, Vol. 81, pp. 21-25 (2012).

[I.6] Y. Sakurai, T. Kobayashi, “Experimental Verification of the Nuclear Data of Gadolinium for Neutron Capture Therapy”, *Journal of Nuclear Science and Technology*, Vol. 39, pp. 1294-1297 (2002).

[I.7] M. B. Chadwick *et al.*, “ENDF/B-VII.0: Next generation evaluated nuclear data library for nuclear science and technology”, *Nuclear Data Sheets*, Vol. 107, Iss. 12, pp. 2931-3118 (2006).

[I.8] D.B. Pelowitz (Ed.), *MCNPX User’s Manual Version 2.6.0*, Los Alamos National Laboratory report, LA-CP-07-1473 (2008).

[I.9] *Moritz Geometry Tool, Version 1.23, An Interactive Geometry Editor/Viewer for MCNP and MCNPX*, White Rock Science, Los Alamos, Nouveau-Mexique (2012).

[I.10] P. Kandlakunta, *A Proof-of-Principle Investigation for a Neutron-Gamma Discrimination Technique in a Semiconductor Neutron Detector*, Thesis, Graduate School of The Ohio State University, pp. 11-13 (2012).

[I.11] F. B. Brown *et al.*, “MCNP Version 5”, *Transactions of the American Nuclear Society*, Vol. 87, pp. 273-275 (2003).

[I.12] D. A. Abdushukurov, *Gadolinium Foils as Converters of Thermal Neutrons*, Nova Science Publishers, Inc., New York, p. 10 (2010).

[I.13] D. A. Abdushukurov, *Gadolinium Foils as Converters of Thermal Neutrons*, Nova Science Publishers, Inc., New York, p. 14 (2010).

[I.14] T. Kibédi, T. W. Burrows, M. B. Trzhaskovskaya, P. M. Davidson, C. W. Nestor Jr., “Evaluation of theoretical conversion coefficients using BrIcc”, *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research A*, Vol. 589, pp. 202-229 (2008).

[I.15] F. Rösel, H.M. Fries, K. Alder, H.C. Pauli, “Internal conversion coefficients for all atomic shells”, *Atomic Data and Nuclear Data Tables*, Vol. 21, pp. 91-289 (1978),

[I.16] W. T. Elam, B. D. Ravel, J. R. Sieber, “A new atomic database for X-ray spectroscopic calculations”, *Radiation Physics and Chemistry*, Vol. 63, Iss. 2, pp. 121-128 (2002).

[I.17] D. A. Abdushukurov, *Gadolinium Foils as Converters of Thermal Neutrons*, Nova Science Publishers, Inc., New York, p. 41-47 (2010).

[I.18] T. Pochet, “Détecteurs nucléaires : différents types de particules à détecter”, *Techniques de l’Ingénieur*, BN 3 482 (2006).

[I.19] G. R. Gilmore, *Practical Gamma-ray spectrometry*, 2nd Edition, John Wiley & Sons Ltd, The Atrium, Southern Gate, Chichester, West Sussex, England, pp. 8-9 (2008).

[I.20] J. B. Birks, *The Theory and Practice of Scintillation Counting*, Pergamon Press, International Series of Monographs on Electronics and Instrumentation, Vol. 27, pp. 26-29 (1964).

[I.21] G. R. Gilmore, *Practical Gamma-ray spectrometry*, 2nd Edition, John Wiley & Sons Ltd, The Atrium, Southern Gate, Chichester, West Sussex, England, p. 29 (2008).

SECTION A :

LE GADOLINIUM EN SCINTILLATION PLASTIQUE POUR LA DETECTION ET LE COMPTAGE NEUTRONIQUES

Cette section regroupe l'ensemble des travaux, de modélisation aussi bien que de mesure expérimentale, conduits au cours de cette thèse sur la mise en œuvre du gadolinium dans des détecteurs à base de scintillateurs plastiques. Le Chapitre II rappelle les notions-clés de la scintillation plastique, et introduit les principaux facteurs de mérite utilisés dans les études des Chapitres III, IV et V, dont le contenu a été annoncé à la fin du chapitre précédent.

CHAPITRE II : INTRODUCTION A LA SCINTILLATION PLASTIQUE, PRINCIPE ET NOTIONS-CLES

PARTIE I : Introduction à la scintillation plastique

1. Mécanismes de scintillation dans la matière organique

1.1. Principe des détecteurs à scintillation

On appelle *détecteur à scintillation* ou *scintillateur* un détecteur de rayonnements dont le capteur physique émet des photons, dits *photons de scintillation*, en réponse à l'interaction du rayonnement avec le milieu du capteur [II.1]. Dans de tels capteurs, une fraction de l'énergie déposée dans le milieu par le rayonnement crée des *excitons* ou *états excités* au sein du scintillateur, lequel a la possibilité de retrouver son niveau d'énergie fondamental par émission photonique. C'est la conversion ultérieure de ces photons de scintillation en photoélectrons qui est à l'origine du signal mesuré, autorisant, selon la nature et l'énergie du rayonnement, ainsi que les caractéristiques du scintillateur, la détection et le comptage des particules incidentes.

Les scintillateurs se partagent en deux grandes familles : la famille des scintillateurs *organiques*, formés de molécules organiques, et celle de leurs homologues *inorganiques*. C'est à la première famille, et par conséquent à la chimie de l'élément carbone, que se rapporte la suite de cet exposé.

1.2. Système π -électronique et diagramme énergétique de Perrin-Jablonski

La configuration électronique d'un atome de carbone, noté ${}_6\text{C}$, isolé et à l'état fondamental est $1s^2 2s^2 2p^2$, soit :

- deux électrons sur l'orbitale s caractérisée par $(n = 1, l = 0)$ (moment angulaire nul) ;
- deux électrons sur l'orbitale s caractérisée par $(n = 2, l = 0)$;
- deux électrons sur l'orbitale p caractérisée par $(n = 2, l = 1)$.

Quand le carbone est présent à l'intérieur d'une molécule organique, un des deux électrons de l'orbitale $(n = 2, l = 0)$ est promu sur l'orbitale $(n = 2, l = 1)$ [II.2]. L'état électronique de l'atome de carbone tétravalent (c'est-à-dire ici possédant quatre électrons sur la couche externe L caractérisée par $n = 2$) devient ainsi $1s^2 2s^1 2p^3$. On appelle *trigonale* la configuration dans laquelle, parmi les quatre orbitales extérieures, l'orbitale s et deux des trois orbitales p sont hybridées (elles forment ainsi trois liaisons hybrides notées sp^2) et

appartiennent au même plan. L'orbitale p restante est alors orthogonale à ce plan et l'électron dont elle modélise la probabilité de présence est dit *électron π* . Dans le cas d'une liaison carbone-carbone, une orbitale sp^2 du premier atome et une orbitale sp^2 du second se recouvrent, donnant lieu à une liaison dite *liaison σ* . En plus de cette liaison, les orbitales des deux électrons π présents sur l'un et l'autre atome de carbone se recouvrent également, donnant lieu à une seconde liaison dite *liaison π* . Dans certaines structures moléculaires contenant plusieurs atomes de carbone liés les uns aux autres, telles qu'un cycle benzénique, les différentes orbitales des électrons π définissent un *plan nodal* commun, c'est-à-dire un plan dans lequel la probabilité de présence d'un quelconque électron π est nulle. Le long d'une telle structure, les électrons π , par nature plus faiblement liés à leur noyau de carbone, sont complètement délocalisés. C'est ce système d'électrons π délocalisés, dit *système π -électronique*, qui, excité par un apport d'énergie donné, notamment suite à une interaction avec un rayonnement, est susceptible de se désexciter par émission de lumière ou *luminescence*, à des longueurs d'onde déterminées par les écarts d'énergie entre les différents niveaux d'excitation du système.

Une représentation du système π -électronique d'une molécule scintillante est donnée par les diagrammes d'états électroniques dits de *Perrin-Jablonski*. Dans cette représentation, illustrée sur la Figure II.1, le niveau d'énergie est porté sur l'axe des ordonnées, tandis que les états électroniques sont groupés selon l'axe horizontal par multiplicités de spin croissantes. Suite à un transfert d'énergie, un électron est promu sur une orbitale vacante possédant une énergie supérieure. Au niveau d'énergie fondamental, noté S_0 , tous les électrons sont appariés, c'est-à-dire de parités deux à deux opposées sur les orbitales pleines. La promotion d'un électron crée par définition deux électrons célibataires, le premier sur l'orbitale de départ et le second sur l'orbitale d'arrivée. Dans le cas où la promotion de l'électron laisse les deux électrons célibataires dans une configuration où leurs spins sont de parités opposées, on dit que le système est porté à un des *états singulets excités*, notés $(S_n)_{n \geq 1}$ par ordre d'énergies croissantes jusqu'à l'énergie d'ionisation I . Dans le cas où la promotion de l'électron laisse les deux électrons célibataires dans une configuration de spins parallèles, on dit que le système est porté à un des *états triplets excités*, notés $(T_n)_{n \geq 1}$ par ordre d'énergies croissantes. Les états triplets possédant une multiplicité de spin supérieure à celle des états singulets, ils figurent à la droite de ces derniers sur le diagramme de Perrin-Jablonski. Une structure fine vibrationnelle décrit les sous-états d'énergie définis à partir des états singulets et triplets par ajout d'une quantité d'énergie associée à la vibration de la molécule. Ainsi les états singulets – fondamental compris – se déclinent selon la structure fine vibrationnelle en états $(S_{np})_{n \geq 0, p \geq 0}$, et les états triplets en états $(T_{np})_{n \geq 1, p \geq 0}$.

1.3. La fluorescence prompte, la phosphorescence et la fluorescence retardée

Après une interaction avec un rayonnement et l'absorption d'énergie par la molécule consécutivement à cette interaction, le système π -électronique est porté à un état excité. Par définition d'une molécule scintillante, le système π -électronique est susceptible de se désexciter vers l'un des sous-états vibrationnels du fondamental $(S_{0p})_{p \geq 0}$ par émission d'un photon, c'est-à-dire *via* l'un des trois mécanismes de la luminescence [II.3] que sont la *fluorescence prompte*, la *phosphorescence* et la *fluorescence retardée*.

La fluorescence prompte désigne une transition radiative, de constante de temps typiquement comprise entre 10^{-10} et 10^{-8} seconde, de l'état excité singulet S_{10} vers l'un des sous-états vibrationnels $(S_{0p})_{p \geq 0}$. Dans les cas où l'absorption porte le système à l'un des

sous-états vibrationnels (S_{1p}) $_{p \geq 1}$, une transition non radiative de ce sous-état de type (S_{1p}) $_{p \geq 1}$ vers le sous-état S_{10} , conduit le système à l'état depuis lequel la transition radiative se produit. Cette transition non radiative admet une constante de temps est de l'ordre de 10^{-12} seconde, par conséquent négligeable. De même, lorsque l'absorption porte le système à l'un des sous-états vibrationnels (S_{np}) $_{n \geq 2, p \geq 0}$, des conversions internes ont lieu, dont la constante de temps est de l'ordre de 10^{-11} seconde, soit également négligeable. Ces conversions, suivies de transitions non radiatives, ramènent le système à l'état singulet S_{10} depuis lequel la transition radiative s'effectue. Le terme de fluorescence prompte enveloppe donc l'ensemble de ces scenarii de désexcitation.

La phosphorescence et la fluorescence retardée trouvent leur origine dans l'existence d'une transition non radiative entre un état excité singulet et un état excité triplet, dite *croisement inter-système*, abrégé CIS (*inter-system crossing* en anglais). Cette transition implique donc, à partir de l'appariement initial des spins dans l'état fondamental, le renversement du spin de l'électron promu. La probabilité de croisement inter-système est une fonction croissante du recouvrement entre les sous-états vibrationnels de l'état excité singulet et de son état triplet voisin. Depuis l'état excité triplet, deux processus impliquant une transition radiative sont alors possibles. Le premier processus correspond à une transition radiative directe, de constante de temps longue (typiquement de l'ordre de 10^{-4} et 10^{-3} seconde), de l'état triplet à l'un des sous-états (S_{0p}) $_{p \geq 0}$, et porte le nom de phosphorescence. Le second, indirect, implique un nouveau croisement inter-système consécutivement à un apport d'énergie, de l'état triplet vers un état singulet, depuis lequel s'effectue une transition radiative similaire à celle observée dans le cas de la fluorescence. Il s'agit donc d'une fluorescence dite retardée, dont la constante de temps globale est augmentée par la durée de vie de l'état triplet, croît avec la différence entre les niveaux d'énergie de l'état triplet et de l'état singulet depuis lequel s'effectue la transition radiative, et décroît avec la température. Cette constante de temps de décroissance est typiquement de l'ordre de 10^{-6} seconde.

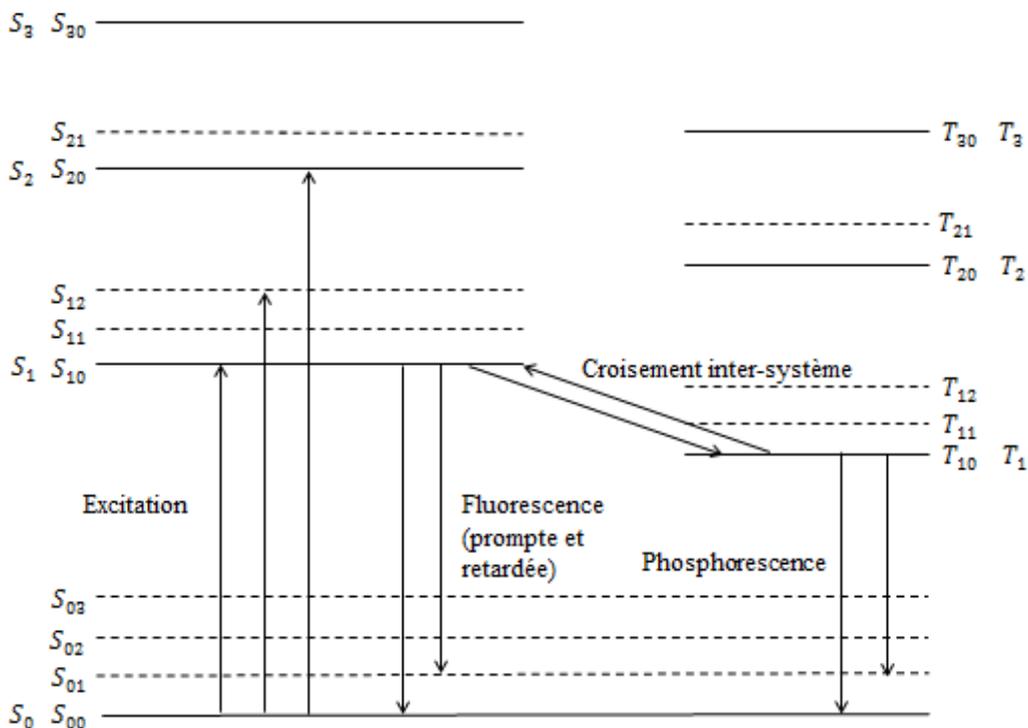


Figure II.1 : Diagramme de Perrin-Jablonski et illustration des mécanismes de la luminescence.

2. Les différents types de scintillateurs organiques

On désigne sous l'appellation générique de *scintillateurs organiques* l'ensemble des matériaux scintillants à base de carbone et de composés du carbone : ces matériaux, en fonction de leur état et de leur structure, sont répartis en trois catégories : les cristaux moléculaires organiques, les scintillateurs organiques liquides et les scintillateurs plastiques.

2.1. Les cristaux moléculaires

Deux monocristaux organiques purs sont d'usage courant en scintillation organique [II.4] : l'anthracène et le stilbène. L'anthracène, de formule $C_{14}H_{10}$, est un hydrocarbure aromatique polycyclique composé de trois noyaux benzéniques fusionnés en alignement. Le stilbène est également un hydrocarbure aromatique, de formule $C_{14}H_{12}$. Il existe sous deux formes isomériques dites *trans*-1,2-diphényléthylène((*E*)-stilbène) (abrégée en (*E*)-stilbène) et *cis*-1,2-diphényléthylène((*Z*)-stilbène) (abrégée en (*Z*)-stilbène). C'est l'isomère (*E*)-stilbène, le plus stable des deux, qui possède, à l'instar de l'anthracène, une fluorescence bleue. Il est également fait mention du naphthalène [II.4], de formule chimique $C_{10}H_8$.

L'anthracène se distingue par son rendement de scintillation, c'est-à-dire le nombre de photons de scintillation issus du capteur par MeV d'énergie déposée par le rayonnement incident : autour de 20000 photons par MeV [II.5], il s'agit du rendement le plus élevé parmi ceux présentés par les scintillateurs organiques. Par comparaison, le stilbène possède un rendement de scintillation plus faible, voisin de 10000 photons par MeV, mais se prête bien à la discrimination entre rayonnements de particules lourdes chargées et rayonnements électroniques par la forme des impulsions électriques enregistrées [II.6]. Le mérite des cristaux organiques scintillants est toutefois minoré par leur fragilité, les dimensions limitées qu'il est possible d'obtenir, de l'ordre de la dizaine de centimètres pour un coût élevé [II.7], ainsi que la dépendance du rendement de scintillation vis-à-vis de l'angle entre la direction d'incidence du rayonnement et l'axe de symétrie du cristal [II.8].

Les représentations topologiques de l'anthracène (à gauche) et du (*E*)-stilbène (à droite) sont portées sur la Figure II.2.

2.2. Les scintillateurs liquides

Les cristaux organiques purs présentés ci-dessus sont des systèmes scintillants *unitaires* [II.4] ; on parle de système scintillant *binnaire* lorsque deux molécules organiques sont associées dans la préparation, typiquement un solvant organique et un soluté scintillant dissout dans le premier. La composition peut inclure un troisième composé, par exemple un soluté scintillant secondaire, auquel cas le système est dit *ternaire*, et ainsi de suite.

Les scintillateurs organiques liquides forment la première catégorie de systèmes scintillants non unitaires. Une préparation typique de liquide scintillant inclut :

- un solvant tel que le toluène (dit aussi méthylbenzène, de formule brute C_7H_8 , hydrocarbure aromatique dérivé du benzène et possédant un groupement méthyle) ou le xylène (dit aussi diméthylbenzène, de formule brute C_8H_{10} , groupe d'hydrocarbures aromatiques dérivés du benzène et possédant deux groupements méthyles) ;

- un soluté primaire scintillant tel que le *p*-terphényle (dit aussi *p*-diphénylbenzène, de formule brute $C_{18}H_{14}$, hydrocarbure aromatique constitué d'un anneau benzénique central lié à deux groupements phényles et aligné avec ces derniers) ;
- un soluté secondaire scintillant tel que le 1,4-bis(5-phényloxazol-2-yl)benzène (abrégé POPOP, de formule brute $C_{24}H_{16}N_2O_2$), qui joue le rôle d'un *décaleur de longueur d'onde* (*wavelength shifter* en anglais), absorbant la lumière émise par le soluté primaire et la réémettant à une longueur d'onde plus courte, dans la plage où le rendement quantique de conversion des photons de scintillation en photoélectrons d'un convertisseur typique est le plus élevé (autour d'une longueur d'onde de 400 nanomètres).

Le terme de *fluorophore*, auquel on accole l'épithète de primaire ou de secondaire, est utilisé pour désigner les solutés scintillants.

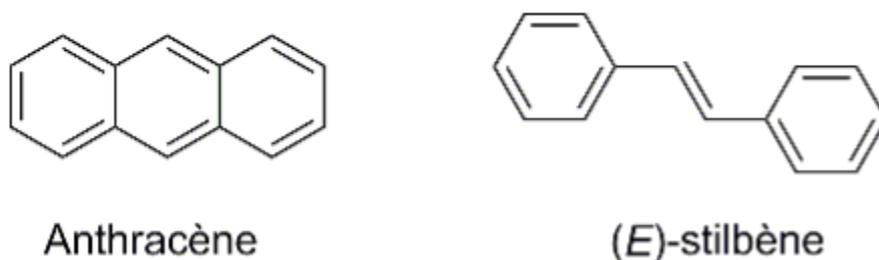


Figure II.2 : Représentations topologiques de l'anthracène et du (*E*)-stilbène.

En raison de l'absence de structure solide susceptible d'être dégradée par exposition aux rayonnements, les scintillateurs liquides présentent une meilleure tenue à des doses élevées que leurs concurrents cristallins ou plastiques [II.9]. Les scintillateurs liquides posent toutefois des problèmes de sûreté, en raison d'un point éclair bas et des risques de fuite de matière liquide toxique à l'extérieur des enceintes closes. Pour rappel, le *point éclair* (dit également *point d'inflammabilité*) d'un corps combustible désigne la température à partir de laquelle ledit corps est susceptible de s'enflammer à l'air ambiant en présence d'un apport d'énergie calorifique ; il se situe, par exemple, à 4 °C pour le toluène, ce qui génère des risques d'inflammabilité conséquents à température ambiante.

Les représentations topologiques, de gauche à droite et de haut en bas, du toluène, du xylène, du *p*-terphényl et du POPOP sont portées sur la Figure II.3.

2.3. Les scintillateurs plastiques

La dernière grande catégorie de scintillateurs organiques regroupe l'ensemble des plastiques scintillants, dont les solvants, après dissolution des différents fluorophores, ont subi une polymérisation (typiquement par création de liaisons thermiquement stimulée) qui les a fait passer à l'état solide. Une préparation typique de plastique scintillant inclut :

- une matrice plastique, par exemple de polystyrène (abrégé PS, obtenu par polymérisation du monomère styrène, lequel est un hydrocarbure aromatique de formule semi-développée $C_6H_5 - C_2H_3$), de polyvinyltoluène (abrégé PVT, obtenu par polymérisation du monomère vinyltoluène, hydrocarbure aromatique de formule semi-développée $CH_3 - C_6H_5 - C_2H_3$), de polyvinylcarbazole (abrégé PVK, obtenu par

polymérisation du monomère *N*-vinylcarbazole, hydrocarbure aromatique de formule brute $C_{14}H_{11}N$;

- un fluorophore primaire tel que le *p*-terphényle ou le 2,5-diphényloxazole (abrégé PPO, de formule brute $C_{15}H_{11}NO$) ;
- un fluorophore secondaire décaleur de longueur d'onde, tel que le POPOP ou le 1,4-bis(2-méthylstyryl)benzène (abrégé Bis-MSB, de formule brute $C_{24}H_{22}$).

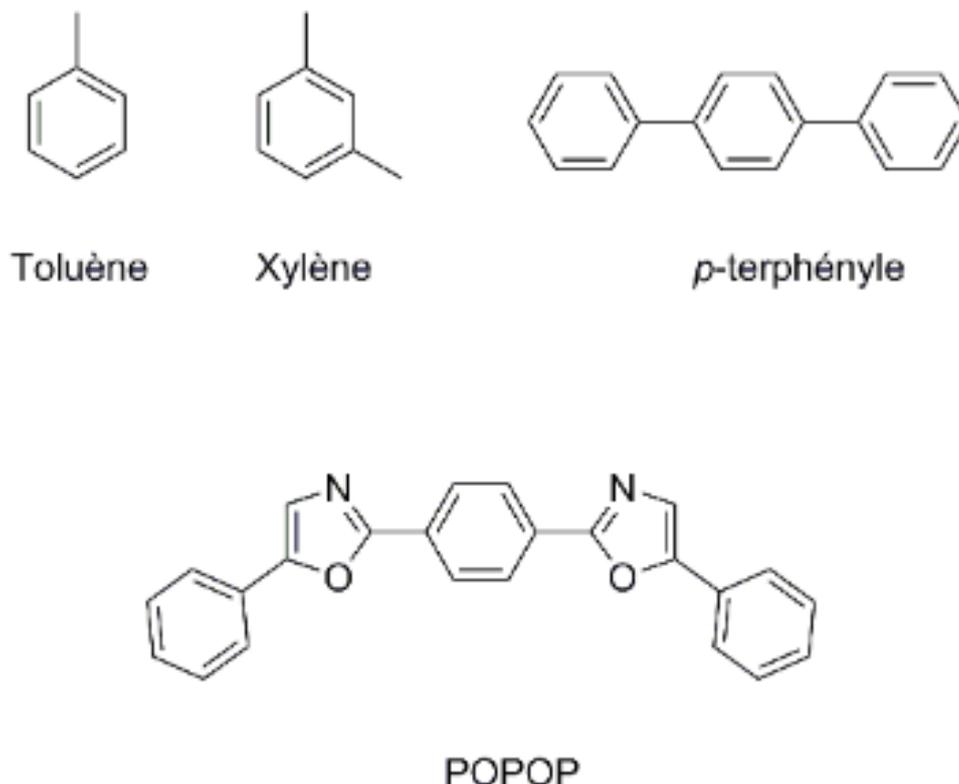


Figure II.3 : Représentations topologiques du toluène, du xylène, du *p*-terphényle et du POPOP.

Ainsi qu'il a été mentionné au paragraphe 2.2., le rendement lumineux des plastiques scintillants est susceptible d'être dégradé par des débits de dose cumulés plus faibles que ceux qui détériorent les liquides, que ce soit à cause des dommages causés aux fluorophores ou par accroissement de l'auto-absorption des photons de scintillation par le matériau [II.10]. Les plastiques scintillants, en plus de leur résistance mécanique, présentent toutefois de significatifs avantages. Ils sont en effet peu coûteux, flexibles en taille et en géométrie au contraire des cristaux organiques, et plus sûrs que leurs homologues liquides, étant plus immunes aux risques de fuite et possédant un point éclair plus difficilement atteignable en environnement conventionnel (le point éclair du polystyrène, à titre d'illustration, se situe à plus de 300 °C). Pour ces raisons, les travaux présentés dans ce manuscrit sur la scintillation organique ont été orientés vers l'étude, le dimensionnement et la préparation de plastiques scintillants dans lesquels des éléments allogènes, distincts de ceux présents dans la matrice et les fluorophores, ont été incorporés en vue de promouvoir des propriétés d'intérêt. Il sera fait référence à ces derniers scintillateurs sous le vocable de milieux plastiques *dopés*.

Les représentations topologiques, de gauche à droite et de haut en bas, du styrène, du PPO et du Bis-MSB sont portées sur la Figure II.4.

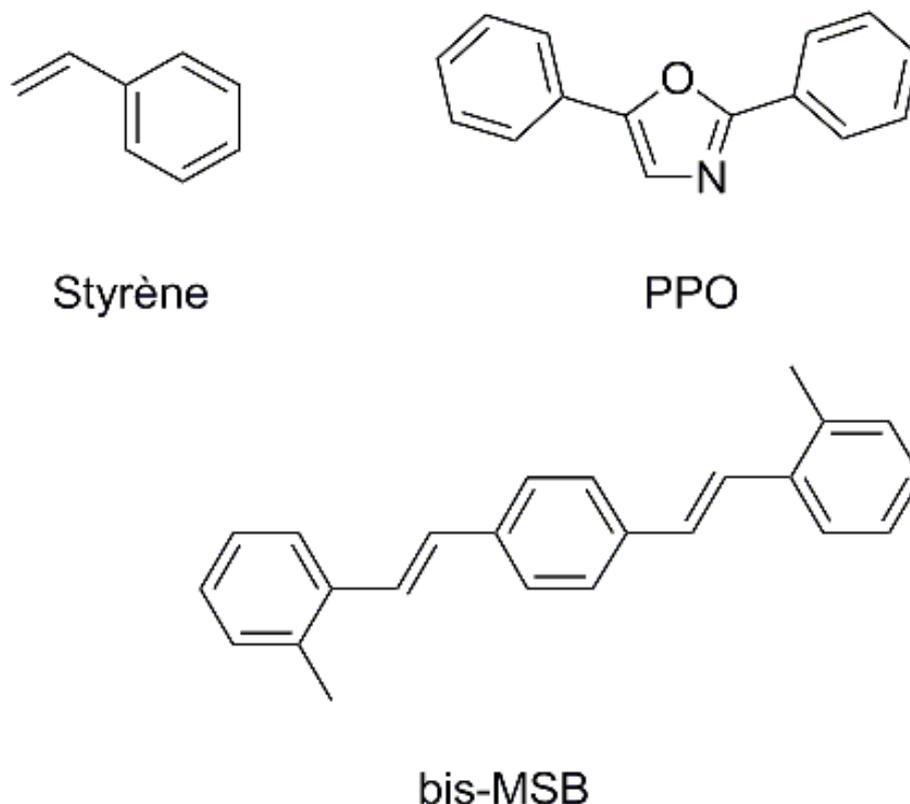


Figure II.4 : Représentations topologiques du styrène, du PPO et du Bis-MSB.

PARTIE II : Critères de mérite pour la caractérisation des scintillateurs plastiques

1. Les critères de mérite pour la détection de rayonnements par scintillation

L'intérêt d'un scintillateur donné, milieu scintillant et mise en forme compris, pour la détection de rayonnements, et spécifiquement de rayonnements neutroniques, est évalué au regard d'un certain nombre de *critères de mérite*, plus ou moins critiques selon le type d'application visé et le contexte de développement attendant. Pour la commodité de l'esprit, ces facteurs peuvent être regroupés en trois catégories principales : les critères de mérite chimiques, physiques et économique-industriels [II.1, II.11]. Autant qu'il est possible, on évalue la performance d'un scintillateur donné respectivement à un critère au moyen d'un *facteur de mérite* quantifiable.

1.1. Critères de mérite chimiques

Les principaux critères de mérite chimiques d'un scintillateur plastique se déclinent comme suit :

- la compatibilité entre les molécules du solvant ou matrice, des différents solutés et des dopants incorporés, qui gouverne la faisabilité ou la complexité de préparation du

milieu scintillant ; le facteur de mérite associé est la *constante de solubilité* en g. L^{-1} ou mol. L^{-1} de chacun des fluorophores et dopants dans le solvant considéré ;

- le *chargement maximal* autorisé du dopant pour la détection, donné par la constante de solubilité du dopant ;
- le *chargement optimal* du dopant, choisi de façon à maximiser l'émission photonique de la préparation tout en limitant l'auto-absorption ;
- la *dégradation* du scintillateur par le rayonnement étudié, la température et la lumière ambiante, qui influencent la pérennité et la fiabilité du détecteur ; elle est déterminée grâce à des études de vieillissement ;
- la *toxicité aiguë et / ou chronique*, ainsi que la sûreté dans la préparation et l'utilisation du scintillateur, notamment quantifiée par le point éclair du mélange qui doit être le plus élevé possible ;
- la plus grande *montée en volume* possible, ainsi que la *modifiabilité* de la géométrie et des dimensions du scintillateur, la résistance du matériau, sa facilité d'usinage et de polissage.

1.2. Critères de mérite physiques

Les critères de mérite physiques d'un scintillateur plastique influencent directement les performances en matière de détection de rayonnements atteignables en sortie du scintillateur ; les principaux sont les suivants :

- le *rendement lumineux*, quotient du nombre de photons de scintillation mesuré en sortie du détecteur et de l'énergie déposée par la particule incidente dans le milieu scintillant. Ce rendement, sur lequel est fondé la *sensibilité* du détecteur, constitue le facteur de mérite le plus critique lors de l'évaluation des performances d'un scintillateur. Il doit être le plus élevé possible, et une fonction constante de l'énergie déposée sur la plus vaste gamme d'énergie possible ;
- le *spectre d'émission* du scintillateur, qui doit être centré sur la gamme UV-visible, afin de pouvoir faire usage, en sortie du scintillateur, de photomultiplicateurs commerciaux. Le rendement quantique de conversion des photons en photoélectrons est en effet maximal dans cette gamme spectrale, en raison des propriétés des matériaux de couverture utilisés pour la réalisation de la photocathode (Bialkali, Multialkali) ;
- la *constante de décroissance* associée au signal de fluorescence, qui doit être courte de façon à garantir un temps de réponse acceptable du système, typiquement de l'ordre de la nanoseconde. Toutefois, de façon à assurer la détection du rayonnement émis par des sources de forte activité, il peut être nécessaire de posséder une constante de décroissance de l'ordre de la centaine de picosecondes. La constante de décroissance associée aux impulsions de scintillation est généralement supérieure d'un ordre de grandeur à celle du mécanisme de fluorescence lui-même, indiquée par le fabriquant : cette divergence s'explique par la dispersion des temps de collecte des photoélectrons en sortie du photomultiplicateur ;

- la plus grande *discrimination* possible entre les propriétés temporelles, notamment la constante de temps de décroissance, caractéristiques de la réponse du scintillateur à des types de rayonnements distincts. Dans le cas de la détection neutronique, c'est la discrimination entre le signal induit par le rayonnement neutronique et le signal induit par le rayonnement photonique qui doit être favorisée ;
- la plus faible déperdition de signal optique entre le scintillateur, émetteur de photons, et le système de conversion des photons de scintillation en électrons de signal, notamment en minimisant l'auto-absorption du matériau scintillant. Ce critère prend d'une part en compte l'*efficacité géométrique* de collecte des photons en sortie du scintillateur. Cette efficacité dépend de la géométrie du scintillateur, et est, par exemple, augmentée lorsque l'indice de réfraction du milieu scintillant est voisin de celui de la surface du système de conversion auquel il est couplé). Le critère prend également en compte l'auto-absorption du milieu scintillant, quantifiée par la *longueur de demi-atténuation* de ce dernier.

1.3. Critères de mérite économique-industriels

L'attrait économique-industriel d'un scintillateur se résume au titre de critères canoniques, notamment :

- la *disponibilité* commerciale du dopant ;
- corollaire du premier critère, le *coût* du dopant ;
- la *montée en volume* autorisée par les propriétés physico-chimiques aussi bien que le coût, critique en vue du déploiement de capteurs commerciaux sensibles ;
- la *facilité* et les *coûts de fabrication*, aussi bien au niveau matériel qu'en termes de compétence.

2. Modèle de Birks : le rendement de scintillation et la constante de Birks

2.1. Le rendement de scintillation

Soit L la fonction dite d'illumination [II.12], qui représente la quantité d'énergie portée au sein du matériau scintillant sous forme photonique, *via* les différents processus d'émission lumineuse décrits dans la Partie I. Soient r la position de la particule incidente qui dépose son énergie cinétique au sein du scintillateur, et $E(r)$ l'énergie de cette particule en chaque point de son déplacement. On définit en outre, pour une particule directement ionisante (électron, proton, particule alpha), son transfert d'énergie linéique au milieu scintillant, noté TEL . Ce transfert s'exprime comme l'opposé de la variation infinitésimale de l'énergie de la particule incidente rapportée au parcours infinitésimal dr , et est une fonction de l'énergie résiduelle de la particule suivant :

$$TEL(E(r)) = -\frac{dE}{dr}(E(r)) \quad (\text{II. 1})$$

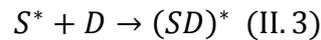
En l'absence de phénomène concurrent, la variation linéique de l'illumination $\frac{dL}{dr}$ est proportionnelle au transfert d'énergie linéique de la particule ionisante au milieu. Le rendement de scintillation absolu, noté S , est ainsi défini comme le coefficient de proportionnalité liant $\frac{dL}{dr}$ et $\frac{dE}{dr}$ sous ces hypothèses, si bien que la variation linéique de l'illumination en r s'écrit :

$$\frac{dL}{dr}(E(r)) = S \cdot TEL(E(r)) = -S \cdot \frac{dE}{dr}(E(r)) \quad (\text{II. 2})$$

2.2. Les phénomènes d'extinction de luminescence

On désigne par l'appellation générique d'*extinction de luminescence* (*quenching* en anglais) la transmission de l'excitation d'une molécule luminescente du matériau scintillant à un autre ensemble moléculaire dont la désexcitation pourra s'opérer selon des processus non radiatifs [II.13].

Un premier type d'extinction est représenté par la formation d'un dimère excité ou *excimère* entre une molécule luminescente S^* et une molécule D de nature différente selon l'équation de réaction :

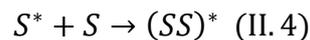


L'excimère peut retourner à un niveau d'énergie stable selon des processus concurrents de la transition radiative, notamment :

- des transitions non radiatives par l'émission de phonons, entre sous-états vibrationnels d'un même état électronique ou inter-états électroniques ;
- la dissociation du dimère en radicaux.

Les probabilités non nulles associées à ces processus de désexcitation concurrents diminuent ainsi l'illumination linéique pour un transfert d'énergie linéique donné.

Un second type d'extinction, dit *auto-extinction*, consiste en la formation d'un excimère entre deux molécules de même nature dont l'une est excitée ; l'équation de réaction porte, dans le cas de deux molécules luminescentes :



De même que dans le premier cas, des désexcitations par transition non radiative et dissociation du dimère en ses deux composés initiaux s'effectuent avec une probabilité non nulle, dégradant d'autant l'illumination linéique dans le scintillateur et par conséquent le rendement lumineux de ce dernier. Il faut noter que ce phénomène d'auto-extinction explique le fait que le soluté luminescent ne puisse être utilisé en concentration excessive dans la préparation du mélange scintillant.

2.3. Constante de Birks et équation modifiée

Suivant la nomenclature adoptée par Birks [II.12], on regroupe sous l'appellation de *centres d'extinction* (ou *centres quencheurs*) les molécules susceptibles d'être impliquées dans les phénomènes d'extinction de luminescence détaillés ci-dessus. La formation d'excimères est d'autant plus probable que l'excitation locale du milieu, et par conséquent le transfert d'énergie linéique de la particule au milieu, sont élevés. L'illumination linéique est, de fait, modélisée comme une fonction décroissante d'un terme $B \cdot \frac{dE}{dr}$, où B représente le rendement de création des centres quencheurs sur la trace de la particule. Un second coefficient de proportionnalité, noté k , modélise la fraction de tels centres conduisant effectivement à une extinction de luminescence, c'est-à-dire à une désexcitation par un processus concurrent. L'illumination linéique est alors représentée comme une fonction décroissante de $k \cdot B \cdot \frac{dE}{dr}$: c'est le coefficient de proportionnalité $k \cdot B$, caractéristique du milieu scintillant, que l'on désigne sous le nom de *constante de Birks*.

L'Equation (II.2) est modifiée pour rendre compte des phénomènes d'extinction de luminescence au sein du scintillateur, sous la forme semi-empirique décrite par :

$$\frac{dL}{dr}(E(r)) = \left| \frac{S \cdot \frac{dE}{dr}(E(r))}{1 + k \cdot B \cdot \frac{dE}{dr}(E(r))} \right| \quad (\text{II. 5})$$

L'illumination totale L résultant du parcours d'une particule incidente avec l'énergie E_i est ensuite obtenue par intégration de l'illumination linéique sur la longueur totale R du parcours de la particule au sein du matériau scintillant. R dépend non seulement de l'énergie initiale E_i de la particule, mais également des propriétés physiques du matériau scintillant (géométrie, dimensions, densité de masse et de porteurs de charges) figurées par M dans :

$$L(E_i, M) = \int_0^{R(E_i, M)} \frac{dL}{dr}(E(r)) dr = \int_0^{R(E_i, M)} \left| \frac{S \cdot \frac{dE}{dr}(E(r))}{1 + k \cdot B \cdot \frac{dE}{dr}(E(r))} \right| dr \quad (\text{II. 6})$$

Pour compléter cette description, intéressons-nous à deux cas limites de la formule de Birks. Dans le cas où la particule incidente est un électron dit *rapide*, dont l'énergie cinétique excède 100 keV, le transfert d'énergie linéique $\frac{dE}{dr}(E(r))$ est suffisamment faible pour que le terme $k \cdot B \cdot \frac{dE}{dr}$ devienne négligeable devant l'unité, si bien que l'illumination s'écrit simplement :

$$L(E_i, M) = \int_0^{R(E_i, M)} \left| S \cdot \frac{dE}{dr}(E(r)) \right| dr = -S \cdot \int_0^{R(E_i, M)} \frac{dE}{dr}(E(r)) dr = S \cdot E_d(E_i, M) \quad (\text{II. 7})$$

où $E_d(E_i, M)$ n'est autre que l'énergie déposée dans le matériau scintillant par l'électron rapide.

Un second cas limite correspond à une particule lourde, de type alpha notamment, dont le transfert d'énergie linéique $\frac{dE}{dr}$ est suffisamment élevé pour que l'unité devienne négligeable devant le terme $k \cdot B \cdot \frac{dE}{dr}$, auquel cas l'illumination se réduit à l'expression :

$$L(E_i, M) = \int_0^{R(E_i, M)} \left| \frac{S \cdot \frac{dE}{dr}(E(r))}{k \cdot B \cdot \frac{dE}{dr}(E(r))} dr \right| = \int_0^{R(E_i, M)} \frac{S}{k \cdot B} dr = \frac{S \cdot R(E_i, M)}{k \cdot B} \quad (\text{II. 8})$$

Notons ici que les protons de recul, associés aux diffusions neutroniques dans la matière hydrogénée, présentent un transfert d'énergie linéique $\frac{dE}{dr}$ très supérieur à celui des électrons. Ce transfert est exprimé sous la forme explicite suivante, dite *formule de Bethe* pour les particules non-relativistes :

$$\frac{dE}{dr} = - \frac{4\pi \left(\frac{e^2}{4\pi\epsilon_0} \right)^2 NZ}{m_e v^2} \ln \left(\frac{2m_e v^2}{I} \right) \quad (\text{II. 9})$$

où :

- e est la charge de l'électron ;
- ϵ_0 la permittivité diélectrique du vide ;
- m_e la masse de l'électron au repos ;
- v la vitesse du proton ;
- N le nombre d'atomes par unité de volume du milieu de propagation ;
- Z le numéro atomique du milieu de propagation ;
- I le potentiel d'ionisation du milieu de propagation.

Il résulte de cette différence de transfert linéique une différence des illuminations produites par les protons et les électrons de recul à énergies égales. Rapportée à celle des électrons générés à la suite d'interactions d'électrons ou de photons avec le milieu de propagation, l'illumination due à un terme source protonique, exprimée en MeV-électron équivalent (MeVee), est ainsi significativement plus faible que celle de son homologue électronique. Ce point sera notamment approfondi dans le Chapitre IV.

3. Fonction de transfert simplifiée de la mesure

Entre l'émission des photons de scintillation dans le milieu plastique et la récupération d'un signal électrique utile à la mesure nucléaire, il est encore nécessaire de décrire plusieurs phénomènes physiques qui affectent directement les caractéristiques du signal exploité. Ces phénomènes peuvent être groupés en deux catégories principales :

- les phénomènes qui gouvernent la collecte des photons de scintillation par le système de conversion à gain desdits photons en photoélectrons ;
- les phénomènes qui gouvernent la conversion des photons collectés par le système en photoélectrons utiles pour la mesure.

Une description sommaire de ces phénomènes et de leur influence sur la mesure est donnée ci-dessous.

3.1. L'efficacité de collecte des photons de scintillation par le système de conversion

La collecte des photons de scintillation par le système de conversion est gouvernée par l'absorption et la diffusion de ces photons au sein du scintillateur. Les photons de scintillation sont émis selon une distribution spectrale $S_e(\lambda)$ centrée sur une (ou plusieurs) longueur(s) d'onde dite(s) *d'émission* et notée(s) λ_e . L'absorption spectrale du matériau scintillant est également décrite par un spectre $S_a(\lambda)$ centré sur une longueur d'onde dite *d'absorption* et notée λ_a . L'auto-absorption linéique d'un rayonnement photonique de scintillation à la longueur d'onde λ par le scintillateur est quantifiée par un *coefficient d'atténuation linéique* noté $\alpha(\lambda)$, lequel est une fonction croissante du recouvrement des spectres $S_e(\lambda)$ et $S_a(\lambda)$. La dépendance moyenne de l'auto-absorption vis-à-vis de ce recouvrement est quantifiée par la distance $|\lambda_e - \lambda_a|$, dite *décalage de Stokes*, qu'il importe donc de maximiser. L'absorbance du milieu scintillant s'exprime alors comme le produit du coefficient α et de la distance parcourue par le photon de scintillation au sein du milieu avant sa collecte par le système de conversion, cette distance étant dépendante des dimensions et de la géométrie du scintillateur. La diffusion des photons de scintillation est également une fonction des dimensions et de la géométrie du scintillateur, ainsi que de la nature du matériau diffusant (blanc de titane, Téflon[®]) utilisé pour couvrir la surface extérieure du plastique (hors interface avec le système de collecte et de conversion des photons), de façon à maximiser la collecte des photons.

L'influence globale de ces facteurs sur la mesure est représentée par l'efficacité dite *de collecte lumineuse* et notée ε_L .

3.2. Le système de conversion des photons de scintillation en photoélectrons

Les photons de scintillation collectés sont convertis en photoélectrons constituant, après multiplication, le signal mesuré. Le système de conversion prend la forme d'une photodiode ou, le plus couramment et dans la totalité des applications présentées dans ce manuscrit, d'un photomultiplicateur. Un photomultiplicateur est un tube sous vide contenant des électrodes dites *dynodes*, disposées à espacements réguliers et portées à des différences de potentiel croissantes. La fenêtre d'entrée du photomultiplicateur est formée par une photocathode dont la surface active assure la conversion des photons de scintillation avec une efficacité dite *quantique*. Cette efficacité est notée ε_Q et définie comme le nombre de photoélectrons générés par la photocathode par photon de scintillation collecté. Elle est calculée à partir du spectre d'émission du scintillateur $S_e(\lambda)$ et de la distribution spectrale du rendement quantique de conversion $\eta_Q(\lambda)$:

$$\varepsilon_Q = \frac{\int_{-\infty}^{+\infty} S_e(\lambda)\eta_Q(\lambda)d\lambda}{\int_{-\infty}^{+\infty} S_e(\lambda)d\lambda} \quad (\text{II. 10})$$

La Figure II.5 illustre la forte dépendance du rendement quantique de la photocathode, pour trois matériaux de couverture typiques (Ultra-Bialkali, Super-Bialkali, Bialkali ordinaire) libérant des électrons par émission secondaire lorsqu'ils sont soumis au rayonnement de scintillation induit dans le scintillateur, en fonction de la longueur d'onde de ces photons de scintillation. Pour le Bialkali ordinaire, mis en œuvre dans le photomultiplicateur utilisé pour les mesures expérimentales présentées dans cette thèse, le rendement quantique η_Q admet un

maximum de l'ordre de 25 % au voisinage de la longueur d'onde $\lambda_{max} \sim 400$ nm, très proche de la longueur d'onde sur laquelle est centrée l'émission des scintillateurs plastiques présentés dans les Chapitres III, IV et V, donnée par $\lambda_e = 420$ nm.

L'efficacité quantique est minorée par l'efficacité de collecte des photoélectrons à la première dynode, notée ε_E . Les photoélectrons collectés dérivent enfin sous l'action du champ de polarisation du photomultiplicateur. Les électrons acquièrent, sous l'effet de ce champ électrique, une énergie suffisante pour arracher des électrons aux dynodes suivantes. Ils ionisent ainsi la deuxième dynode, ionisation à l'origine d'une émission électronique secondaire qui, s'ajoutant à la première, est responsable de l'ionisation de la dynode suivante, et ainsi de suite. La multiplication des porteurs de charge constitue le gain noté G du photomultiplicateur, typiquement de l'ordre de $10^6 - 10^7$.

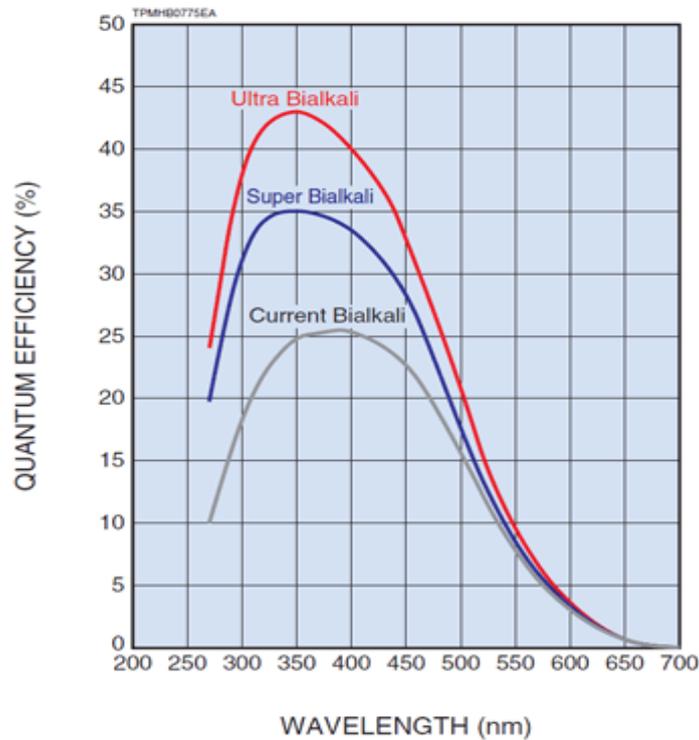


Figure II.5 : Rendement quantique de la photocathode η_Q en fonction de la longueur d'onde λ (reproduit avec la permission de Hamamatsu Photonics).

Ainsi, en notant $N_{ph}(E_d)$ le nombre de photons de scintillation générés par un dépôt d'énergie E_d du rayonnement incident, et $N_{phe}(E_d)$ le nombre de photoélectrons constituant le signal, une fonction de transfert simplifiée de la mesure est donnée par :

$$N_{phe}(E_d) = \varepsilon_L \cdot \varepsilon_Q \cdot \varepsilon_E \cdot G \cdot N_{ph}(E_d) \quad (\text{II.11})$$

Les photoélectrons formant le signal sont ensuite collectés sous la forme d'impulsions (en tension ou en courant selon le montage électrique) en sortie du photomultiplicateur et dirigés vers la chaîne d'acquisition et de traitement du signal.

4. La détermination du rendement lumineux

Le rendement lumineux d'une chaîne de scintillation plastique, noté R_{phe} et exprimé en photoélectrons par MeV ($\text{phe}^- \cdot \text{MeV}^{-1}$) est défini, pour une énergie incidente E_i et un type de rayonnement donnés, comme le nombre de photons de scintillation quantifiés en sortie du photomultiplicateur par mégaelectronvolt d'énergie déposée dans le scintillateur :

$$R_{phe}(E_i) = \left| \frac{dN_{phe}}{dE} \right|_{E_i} \quad (\text{II. 12})$$

Le rendement lumineux est usuellement rapporté en photons par mégaelectronvolt ($\text{ph} \cdot \text{MeV}^{-1}$) via l'efficacité quantique :

$$R_{ph}(E_i) = \frac{R_{phe}(E_i)}{\varepsilon_Q} \quad (\text{II. 13})$$

Le rendement lumineux d'un scintillateur plastique à une énergie photonique E_i est déterminé à partir du spectre en énergie obtenu en sortie de chaîne électronique en réponse à un rayonnement d'énergie E_i . Parmi les différentes méthodes de détermination du rendement lumineux présentées dans l'art, le choix est fait, dans ce manuscrit, d'utiliser la plus classique, dite de comparaison avec un scintillateur de référence, dont le rendement est supposé connu (typiquement un scintillateur plastique du commerce). Lorsque E_i est suffisamment faible pour que la probabilité d'effet photoélectrique soit significative, conduisant à l'apparition d'un pic dit *pic d'absorption totale* à E_i , la référence du canal associé au maximum de ce pic est relevée pour les deux scintillateurs. Le quotient des deux numéros de canaux, multiplié par le rendement lumineux du scintillateur de référence, fournit alors une évaluation du rendement lumineux du scintillateur à caractériser. A défaut de pic d'absorption totale clairement identifié, c'est le front dit *Compton*, identifié à la droite du fond du même nom (*Compton continuum* en anglais) et associé aux reculs Compton dans le scintillateur, qui est utilisé. L'énergie maximale E_{Cmax} emportée par un électron de recul Compton est obtenue pour un angle $\theta = 180^\circ$ dans l'Equation (I.20) :

$$E_{Cmax} = E_i \left[1 - \frac{1}{1 + \frac{2E_i}{m_e c^2}} \right] \quad (\text{II. 14})$$

Sur la base des travaux et conclusions phénoménologiques de Swiderski *et al.* [II.14], l'énergie E_{Cmax} est identifiée, pour chacun des deux scintillateurs, au canal à droite de l'amplitude maximale du fond Compton pour lequel une amplitude égale à 80 % de cette amplitude maximale est atteinte. C'est ce dernier point qui est dit *front* ou *bord Compton* (*Compton edge* en anglais) dans la littérature. Le rendement lumineux du scintillateur à caractériser est une fois encore calculé à partir du quotient des deux numéros de canaux et du rendement lumineux du scintillateur de référence. Notons que l'étalonnage en énergie des scintillateurs plastiques est réalisé suivant le même protocole que celui décrit pour la détermination du rendement lumineux, utilisant selon les cas le maximum du pic d'absorption totale ou la valeur à 80 % du maximum Compton.

5. La discrimination par la forme des impulsions

En fonction du type de particules incidentes et des propriétés du scintillateur, certains systèmes à base de milieux scintillants autorisent une discrimination par forme d'impulsion (*Pulse Shape Discrimination*, abrégé PSD, en anglais), fondée sur la différence de distribution temporelle entre signaux de scintillation dus à des rayonnements de natures différentes, générés au sein du ou des capteurs. Ainsi, par exemple, certains systèmes moléculaires scintillants se prêtent à la discrimination des impulsions moyennes induites par les neutrons rapides d'une part et les rayonnements gamma d'autre part [II.15]. Cette discrimination trouve son origine physique dans le fait que le transfert d'énergie linéique d'un proton de recul libéré au cours de la diffusion d'un neutron rapide, décrit par l'Equation (II.9), est dense et forme par conséquent une colonne d'ionisation sur la trace de la signature chargée. Au contraire, le transfert d'énergie linéique d'un électron secondaire, généré selon les mécanismes décrits dans le paragraphe 4 du Chapitre I, dépose son énergie le long d'une trajectoire en ligne brisée et selon une densité nettement plus faible. Or, un transfert d'énergie linéique élevé, typique d'une interaction neutron rapide, favorise le peuplement des états triplets $(T_n)_{n \geq 1}$ décrits dans la Partie I, paragraphe 1.3 [II.16]. En revanche, un transfert d'énergie linéique faible, typique d'une interaction gamma, favorise quant à lui le peuplement des états singulets $(S_n)_{n \geq 1}$. C'est l'annihilation de deux états triplets T_1 et T_1 (*Triplet-Triplet Annihilation* en anglais, abrégé TTA), portés par des molécules voisines à l'intérieur de la colonne d'ionisation d'une interaction neutron, qui forme deux états singulets S_1 et S_0 . Ensuite, la désexcitation de la molécule depuis l'état S_1 par fluorescence retardée (puisque'il y a eu croisement inter-système lors de la TTA), est à l'origine d'une composante lente de l'impulsion représentative des interactions neutron dans le milieu, gouvernée par une constante de temps typique de la fluorescence retardée, de l'ordre de 10^{-6} s. Dans le même temps, la composante rapide de l'impulsion est gouvernée par une constante de temps caractéristique de la fluorescence prompte, de l'ordre de 10^{-9} à 10^{-8} s. La comparaison des caractéristiques temporelles et fréquentielles des signaux en sortie d'un scintillateur plastique discriminant [II.17], en présence de rayonnements neutroniques rapides et gamma, conduit à la mise au point d'algorithmes de PSD visant à différencier une impulsion moyenne neutron d'une impulsion moyenne gamma. En guise d'exemples, citons les méthodes de comparaison des charges relatives intégrées sur des fenêtres temporelles correspondant aux composantes lente et rapide de l'impulsion, de passages par zéro et d'analyse du gradient pour la comparaison des caractéristiques temporelles, ainsi que la méthode d'analyse de gradient de fréquence dans le domaine fréquentiel.

Références du Chapitre II :

[II.1] G. Knoll, *Radiation Detection and Measurement*, 4th Ed., John Wiley & Sons, Inc., New York, p. 223 (2010).

[II.2] J. B. Birks, *The Theory and Practice of Scintillation Counting*, Pergamon Press, International Series of Monographs on Electronics and Instrumentation, Vol. 27, pp. 39-41 (1964).

[II.3] B. Valeur, *Invitation à la fluorescence moléculaire*, Ed. De Boeck Université, Bruxelles, pp. 21-25 (2004).

[II.4] F. D. Brooks, "Development of organic scintillators", *Nuclear Instruments and Methods*, Vol. 162, pp. 477-505 (1979).

[II.5] N. Z. Galunov, O. A. Tarasenko, V. A. Tarasov, “Determination of the light yield of organic scintillators”, *Functional Materials*, Vol. 20, N^o. 3, pp. 304-308 (2013).

[II.6] R. M. Preston, J. E. Eberhardt, J. R. Tickner, “Neutron-gamma pulse shape discrimination using organic scintillators with silicon photomultiplier readout”, *IEEE Transactions on Nuclear Science*, Vol. 61, Iss. 4, pp. 2410-2418 (2014).

[II.7] S. V. Budakovskiy, N. Z. Galunov, N. L. Karavaeva, J. K. Kim, Y. K. Kim, O. A. Tarasenko, E. V. Martynenko, “New effective organic scintillators for fast neutron and short-range radiation detection”, *IEEE Transactions on Nuclear Science*, Vol. 54, Iss. 6, pp. 2734-2740 (2007).

[II.8] F. D. Brooks, D. T. L. Jones, “Directional anisotropy in organic scintillation crystals”, *Nuclear Instruments and Methods*, Vol. 121, Iss. 1, pp. 69-76 (1974).

[II.9] C. Zorn, S. Majewski, R. Wojcik, C. Hurlbut, W. Moser, “Preliminary study of radiation damage in liquid scintillators”, *IEEE Transactions on Nuclear Science*, Vol. 37, Iss. 2, pp. 487-491 (1990).

[II.10] G. Knoll, *Radiation Detection and Measurement*, 4th Ed., John Wiley & Sons, Inc., New York, pp. 227-228 (2010).

[II.11] Ghaouti Bentoumi, *Simulation et caractérisation d'un détecteur à neutrons à base d'un scintillateur liquide Linear Alkyl Benzène (LAB) chargé en bore*, Département de génie physique, École polytechnique de Montréal, pp. 36-37 (2011).

[II.12] J. B. Birks, *The Theory and Practice of Scintillation Counting*, Pergamon Press, International Series of Monographs on Electronics and Instrumentation, Vol. 27, pp. 185-188, (1964).

[II.13] B. Valeur, *Invitation à la fluorescence moléculaire*, Ed. De Boeck Université, Bruxelles, pp. 57-60 (2004).

[II.14] L. Swiderski, M. Moszyński, W. Czarnacki, J. Iwanowska, A. Syntfeld-Kazuch, T. Szczeńniak, G. Pausch, C. Plettner and K. Roemer, “Measurement of Compton edge position in low-Z scintillators” *Radiation Measurement*, Vol. 45, Iss. 3-6, pp. 605-607 (2009).

[II.15] P. Blanc, M. Hamel, C. Dehé-Pittance, L. Rocha, R. B. Pansu, S. Normand, “Neutron/gamma pulse shape discrimination in plastic scintillators: Preparation and characterization of various compositions”, *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research A*, Vol. 750, pp. 1-11 (2014).

[II.16] R. Voltz, G. Laustriat, “Radioluminescence des milieu organiques I. Etude cinétique”, *Journal de Physique*, Vol. 29, Iss. 2-3, pp. 159-166 (1968).

[II.17] A. Siddavatam, “Methods of pulse shape discrimination (PSD)”, *International Journal of Application or Innovation in Engineering & Management, Special Issue for International Technological Conference* (2014).

CHAPITRE III : SCHEMA DE COMPTAGE NEUTRONIQUE PAR COMPENSATION A BASE DE SCINTILLATEURS PLASTIQUES DOPES AU GADOLINIUM ET AU BISMUTH

Une application immédiate des scintillateurs plastiques au comptage neutronique, mentionnée aux paragraphes 1 et 3.2 de l'Introduction, consiste à quantifier l'énergie déposée par les protons de recul, particules lourdes et chargées, générés par diffusion le long du parcours des neutrons rapides dans le capteur. Cette stratégie, étant donnée la faible section efficace microscopique de diffusion portée dans le Tableau 0.I, ne conduit à une détection efficace que pour un volume élevé du capteur. De façon à accroître la sensibilité des scintillateurs plastiques au rayonnement neutronique, on incorpore à la matrice des isotopes présentant une section efficace de capture des neutrons thermiques élevée [III.1], notamment le bore 10 [III.2, III.3] et le lithium 6 [III.4]. Ces deux derniers isotopes sont, ainsi que décrit dans le paragraphe 3.3 de l'Introduction, émetteurs d'une particule alpha, lourde, chargée et fortement énergétique (de l'ordre du MeV), après capture neutronique. La densité de dépôt énergétique le long de cette particule-signature de l'interaction permet de la discriminer d'un bruit de fond naturel photonique. Le bore 10 et le lithium 6 présentent toutefois des sections efficaces d'interaction significativement inférieures à celles de l'hélium 3 : respectivement 3840 barns et 950 barns à 25 meV, à comparer à 5327 barns à la même énergie. En outre, un suivi en temps réel de l'activité neutronique fondé sur de tels milieux dopés nécessite l'implémentation en ligne d'algorithmes de discrimination par la forme des impulsions.

C'est donc naturellement en alternative à ces solutions que la première piste suivie dans les travaux de cette thèse s'est attachée à la mise en œuvre du gadolinium en scintillation plastique. Au niveau du scintillateur dont on cherche à accroître la sensibilité aux neutrons thermiques, le gadolinium peut être ajouté soit sous la forme d'une épaisseur externe (feuilles ou plaques de métal, dépôts), soit par dopage du plastique. Le dopage s'oppose à l'utilisation de convertisseurs, en permettant une incorporation homogène de l'absorbeur neutronique dans le capteur tout en étant exempt des problèmes d'auto-absorption de la signature par le matériau dense dans les convertisseurs. Le passage à l'échelle n'étant toutefois pas acquis dans le cas du dopage en élément lourd des plastiques scintillants, le potentiel d'exploitabilité de cette stratégie sera évalué en premier lieu sur des capteurs de faibles volume et densité. Sous cette contrainte, la signature attendue dans le plastique scintillant sera principalement induite par la composante à basse énergie (jusqu'à 200-300 keV) du terme source électronique et photonique prompt détaillé dans le Chapitre I, la composante radiative à plus haute énergie s'échappant du capteur. Le schéma de comptage devra donc, conformément aux conclusions dressées à la fin du Chapitre I, mettre en œuvre une soustraction en temps réel de la contribution aux comptages des rayonnements distincts des neutrons thermiques, en particulier de la radioactivité gamma du fond de mesure.

PARTIE I : Présentation de la méthode de détection et de comptage

L'incorporation du gadolinium naturel, que ce soit sous forme pure ou de complexe organométallique, aux scintillateurs plastiques, vise à mettre en œuvre la section efficace exceptionnellement élevée de cet élément pour les captures radiatives au voisinage de l'énergie thermique [III.5, III.6]. Cette approche, dans laquelle l'ensemble du capteur physique de rayonnement, en l'occurrence le milieu plastique scintillant, est sensible aux

neutrons thermiques, trouve son équivalent dans l'insertion du gadolinium au sein de scintillateurs inorganiques, tels que les cristaux de borure de lithium et gadolinium [III.7] et des oxydes d'hafnium dopés au gadolinium [III.8]. La difficulté majeure réside alors dans la séparation entre, d'une part, le signal lumineux attribuable aux produits photoniques et électroniques des captures $Gd(n, \gamma)$, et d'autre part, le signal lumineux généré par la radioactivité naturelle ou la présence d'une source émettrice de rayonnements gamma ou X simultanément à l'émetteur neutronique. Cette limitation a conduit les auteurs d'un brevet de référence [III.9] à restreindre la portée de leur invention, qui inclut le dopage en gadolinium des scintillateurs plastiques, aux configurations dans lesquelles une discrimination par la forme des impulsions entre ces deux signaux lumineux est possible. L'approche développée dans ce chapitre est une alternative à la discrimination par la forme des impulsions : elle consiste en la transposition, appliquée à la détection neutronique à base de gadolinium, d'une méthode de mesure connue sous le nom de *compensation*. Dans ce dernier schéma de détection, deux scintillateurs distincts sont utilisés conjointement, l'un étant sensible aux rayonnements neutroniques thermiques grâce à l'incorporation d'isotopes absorbeurs, tels que le bore 10 et le lithium 6 dans l'état de l'art [III.10, III.11], le second, en l'absence d'une telle incorporation, n'étant sensible qu'aux autres types de rayonnements.

1. Principe de la méthode de détection

Le principe du schéma de détection de rayonnement neutronique exposé dans ce paragraphe a fait l'objet d'une demande de dépôt de brevet [III.12]. Ce principe repose sur l'utilisation en compensation de deux scintillateurs plastiques :

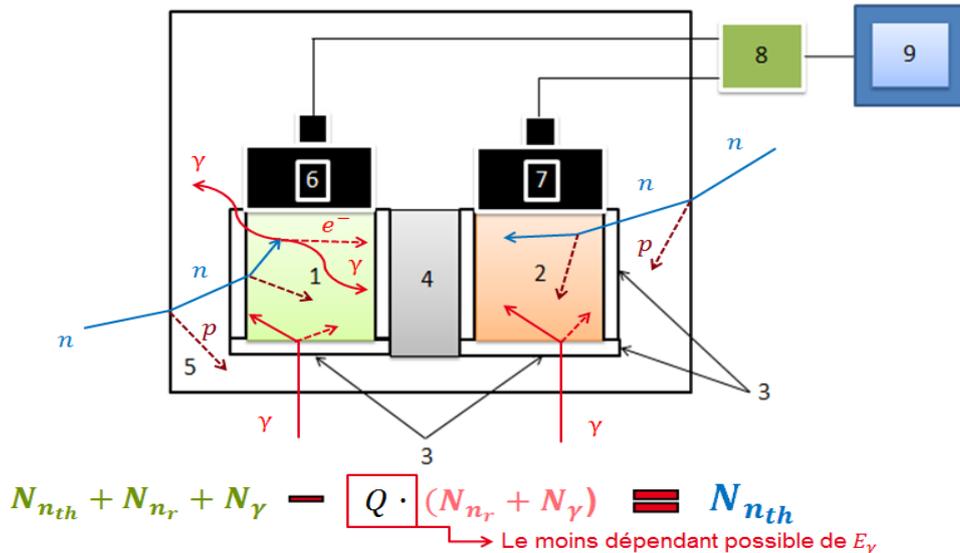
- le scintillateur 1, dit *scintillateur de détection*, est dopé au gadolinium de façon à être sensible aux neutrons thermiques incidents ;
- le scintillateur 2, dit *scintillateur de compensation*, n'est pas dopé au gadolinium (ni à aucun autre élément possédant un isotope à section efficace de réaction élevée avec les neutrons thermiques), de sorte qu'il n'est pas sensible aux neutrons thermiques incidents.

Les deux scintillateurs sont par ailleurs sensibles à toutes les autres composantes du rayonnement incident : radioactivité naturelle, source photonique parasite, composante rapide de l'émission neutronique à détecter. La signature des réactions de capture entre neutrons thermiques et noyaux de gadolinium 157 et 155 dans le scintillateur 1 peut alors être isolée en soustrayant la réponse du scintillateur de compensation à celle du scintillateur de détection. Cette différence doit être pondérée par le quotient des sensibilités de l'un et l'autre détecteur aux autres composantes du rayonnement incident. La stabilité de ce rapport de sensibilités, appelé *coefficient de compensation* et noté Q de façon générique, dans des ambiances de mesure neutronique dont la nature et la distribution énergétique sont très variables est un élément-clé pour la robustesse du schéma de détection. L'énergie E_γ du fond gamma est, en effet, susceptible de varier à tout instant. Le principe directeur de la méthode est illustré sur la Figure III.1 ci-dessous, où les symboles $N, n, n_{th}, n_r, p, e^-$ et γ représentent, dans l'ordre : les comptages nucléaires, les neutrons, les neutrons thermiques, les neutrons rapides, les protons de recul (hydrogène du plastique), les électrons et les rayonnements gamma.

2. Mode de réalisation à deux voies d'acquisition

2.1. Le capteur physique

La partie *capteur* du système de détection est constituée de deux scintillateurs plastiques de même volume, pouvant être concentriques ou adjacents, les deux scintillateurs dans ce dernier cas la même géométrie. La première option étant plus difficile à réaliser sur le plan pratique (précision des coupes, usinage du scintillateur creux), c'est vers une configuration adjacente que les premières évaluations du principe ont été orientées.



Légende :

- 1: Scintillateur plastique de détection, dopé au gadolinium
- 2: Scintillateur plastique de compensation
- 3: Diffuseur
- 4: Atténuateur
- 5: Blindage / modérateur
- 6: Photomultiplicateur
- 7: Photomultiplicateur
- 8: Chaîne d'acquisition et de traitement des impulsions
- 9: Logiciel et IHM

Figure III.1 : Schéma de principe de mise en œuvre de la méthode de détection.

Dans la configuration où les deux scintillateurs sont adjacents, ils peuvent être disposés côté à côté, comme représenté sur le schéma de principe de la Figure III.1 ci-dessus, ou tête-bêche. Le scintillateur de détection et le scintillateur de compensation sont respectivement notés (1) et (2) sur le schéma de principe. Les deux scintillateurs sont couverts par un matériau diffusant (3), notamment de la peinture diffusante ou du Téflon, de façon à maximiser l'efficacité de collecte des photons de scintillation définie en Partie II, paragraphe 3.2 du Chapitre II.

Ce mode de réalisation du principe exposé dans le paragraphe précédent comporte deux voies identiques d'acquisition et de traitement des impulsions de scintillation, soit une pour chaque scintillateur. Les deux voies sont isolées par une épaisseur de matériau au fort pouvoir atténuateur des rayonnements photoniques (4), plomb par exemple. L'épaisseur est dimensionnée de façon à minimiser le nombre de rayons X et gamma prompts générés par capture radiative $^{157}\text{Gd}(n,\gamma)$ ou $^{155}\text{Gd}(n,\gamma)$ dans (1) et détectés dans (2), par effet photoélectrique ou recul Compton. Les deux scintillateurs peuvent, de façon optionnelle, être

isolés des rayonnements photoniques incidents sur le capteur par une épaisseur d'acier ou de plomb atténuatrice (5), complétée par une couche de matériau modérateur des neutrons rapides ou épithermiques incidents, telle qu'une épaisseur de polyéthylène à haute densité (PEHD). L'atténuateur et le modérateur ont vocation à maximiser le rapport du signal d'intérêt, issu des neutrons thermiques, sur le signal à compenser, induit par les autres rayonnements.

La conversion des photons de scintillation émis dans (1) et (2) en photoélectrons et l'amplification du signal photo-électronique sont assurés au niveau des photomultiplicateurs (6) et (7). L'acquisition du signal électronique en sortie de (6) et (7) et le traitement des impulsions sont réalisés dans une chaîne électronique dédiée, notée (8), reliée à un logiciel (9) au niveau duquel est effectuée l'opération mathématique de compensation. Le résultat de l'opération de compensation est affiché sur une interface homme-machine (IHM).

2.2. Numériseur et composant programmable

Le signal électronique en sortie des PMT (6) et (7) est échantillonné, avec un pas noté δt , et numérisé sur deux voies d'acquisition, auxquelles on se réfère dans la suite de ce chapitre sous les appellations de *voie 1* (ou *voie de détection*, en sortie de (6)) et *voie 2* (ou *voie de compensation*, en sortie de (7)). Le traitement des impulsions sur chacune des voies d'acquisition dans le composant programmable (8) de la Figure III.1, est illustré sur la Figure III.2 ci-dessous. Nous adoptons une forme rectangulaire pour les actions et triangulaire pour les tests logiques, dont les résultats sont notés en booléen (1 pour oui, 0 pour non). Le traitement illustré est un traitement en flux, dans lequel l'énergie est évaluée au fur et à mesure de l'acquisition d'une impulsion.

A chaque pas δt , l'amplitude du signal numérisé est relevée et rangée dans S_t . Cette amplitude est comparée à une valeur seuil s de façon à déterminer si le signal relève d'une impulsion de scintillation ou du bruit électronique : il s'agit de la fonction dite de déclenchement (en anglais *triggering*). Un compteur τ est incrémenté tant que le signal relève d'une impulsion de scintillation, et l'énergie E de l'électron à l'origine de l'impulsion est réévaluée en fonction de sa valeur précédemment estimée et de l'amplitude acquise à l'instant courant *via* une fonction $f(E, S_t)$. Dans le cas où l'évaluation de l'énergie est fondée sur l'aire sous l'impulsion, la fonction s'écrit $f(E, S_t) = E + KS_t\delta t$, le coefficient d'étalonnage K liant l'amplitude du signal à l'énergie. Lorsque le signal est assimilé au bruit électronique, un test est réalisé sur la valeur du compteur : dans le cas où cette dernière est non nulle, une impulsion vient d'être intégralement acquise et peut faire l'objet d'un traitement ultérieur.

Dans le cas où l'énergie associée à l'impulsion est comprise entre un seuil bas e_b et un seuil haut e_h , un compteur d'événements N est incrémenté, qui mémorise le nombre d'impulsions sur la plage $[e_b ; e_h]$. Le seuil haut de comptage e_h est réglable, et par défaut fixé au maximum autorisé par la dynamique de codage du convertisseur analogique-numérique. En fin de traitement, les intégrateurs de durée et d'énergie de l'impulsion sont réinitialisés, et les comptages sont transmis avec un pas de rafraîchissement, noté Δt , à la partie logicielle de la chaîne.

2.3. Logiciel et interface homme-machine

Les comptages N_1 et N_2 actualisés tous les Δt sur les voies 1 et 2 sont lissés et compensés au niveau du logiciel indiqué par (9) sur le schéma de principe de la Figure III.1. Le taux de

comptage estimé sur la fenêtre $M\Delta t$ (M étant la taille de la mémoire) du lissage est rafraîchi sur une interface homme-machine dédiée au suivi en temps réel. Le pas de rafraîchissement de la mesure est fixé à $\Delta t = 100$ ms, qui correspond à la durée de la persistance rétinienne. Les opérations de lissage et de compensation, ainsi que le calcul de l'estimée de l'activité neutronique, sont décrits en détail dans la Partie IX de ce chapitre.

3. Mode de réalisation à une voie d'acquisition

Considérons une configuration distincte de celle de la Figure III.1, où les deux scintillateurs ne seraient pas adjacents mais imbriqués, et où l'un serait préparé de façon à présenter une constante de temps de décroissance du signal de fluorescence significativement différente (d'au moins un ordre de grandeur) de celle de l'autre. Il serait alors possible de convertir les photons en provenance des scintillateurs de 1 et 2 au niveau d'un unique PMT, et de séparer ultérieurement les impulsions en fonction de leurs propriétés temporelles. Ce mode de réalisation permet de faire l'économie d'une voie d'acquisition, incluant un PMT et un numériseur, au prix d'un composant au programme plus complexe, puisque ce dernier doit inclure un module de discrimination par la forme des impulsions. Divulgué en même temps que le mode de réalisation à deux voies d'acquisition [III.12], ce mode de réalisation n'a pas été exploré plus avant dans le cadre de cette thèse.

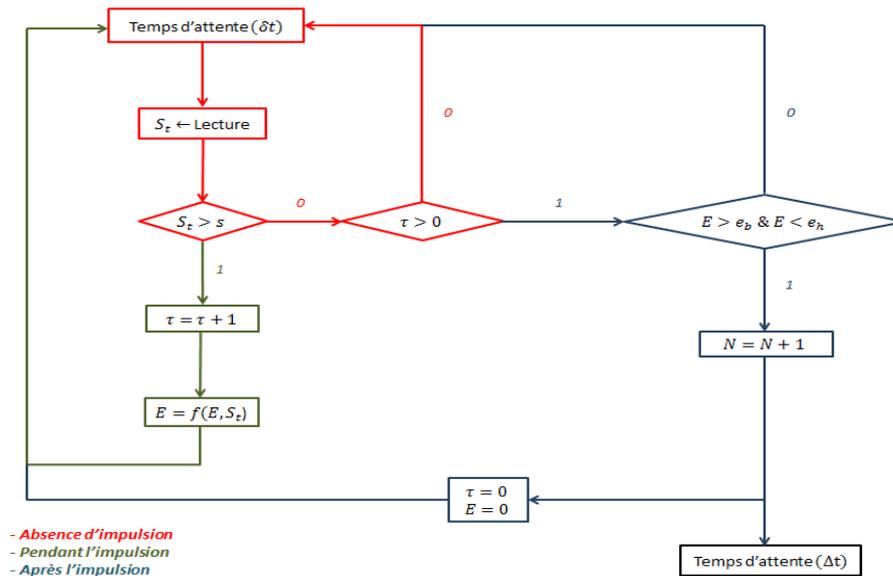


Figure III.2 : Schéma de principe du composant programmable.

PARTIE II : Préparation des milieux plastiques scintillants

1. Le dopage des plastiques scintillants en éléments lourds pour la détection des rayonnements

La réalisation du schéma de détection décrit dans la Partie I implique le dopage homogène en élément gadolinium d'une matrice plastique. Pour les travaux expérimentaux présentés dans ce chapitre, le choix de matrices de polystyrène a été fait. Ces dernières correspondent, en effet, à la référence commerciale, à la fois peu coûteuses et présentant une bonne tenue aux

rayonnements [III.13]. Les matrices à base de styrène peuvent de surcroît être réticulées : des liaisons sont alors introduites entre les chaînes macromoléculaires en présence d'un agent dit réticulant, de façon à former des réseaux tridimensionnels durs, quasiment insolubles et infusibles.

La première limite qui affecte le dopage en élément lourd, tel que le gadolinium, est le manque de solubilité d'un tel dopant dans la solution initiale constituée de monomères hydrocarbures. Ce défaut de solubilité, qui peut conduire à la dégradation des propriétés optiques du matériau, notamment en générant de la turbidité, impose un chargement maximal faible en métal, typiquement de l'ordre de 10 % en masse (10 %m). L'homogénéité requise du mélange impose, en outre, que les éléments métalliques soient insérés sous la forme d'un *complexe organométallique*. Un tel complexe est composé d'un métal et d'un ou plusieurs ligands, dans lequel ou lesquels existe au moins une liaison covalente entre l'atome métallique et un atome de carbone. Or, s'ils autorisent un dopage homogène, les complexes organométalliques tendent à posséder certaines caractéristiques incompatibles avec les critères de mérite essentiels en scintillation plastique, listés dans le Chapitre II, Partie II :

- le coût prohibitif de certains complexes, dont la synthèse requiert des opérations longues et délicates, qui interdit toute montée en volume des capteurs ;
- l'instabilité de nombreux complexes dans les conditions de préparation, qui génèrent turbidité et coloration du scintillateur en fin de réalisation.

L'étape initiale dans la réalisation du capteur consiste donc, en se basant sur l'état de l'art, à choisir un ligand permettant de solubiliser le gadolinium dans le polystyrène de façon à accéder au chargement le plus élevé possible, avec le moins de turbidité, de coloration et d'extinction de fluorescence possible dans le matériau final. La turbidité est définie comme la teneur d'un fluide en particules qui troublent ce dernier. La versatilité du ligand, permettant sa mise en œuvre pour l'incorporation d'autres lanthanides (europium, terbium...), ou même d'autres métaux lourds tels que le plomb ou le bismuth, constitue également un critère de mérite important pour la sélection.

2. Etude bibliographique et choix d'un ligand acétylacétonate non-aromatique pour l'incorporation du gadolinium

Le cadre de cette recherche se limite au dopage homogène des scintillateurs plastiques, les techniques par ailleurs répandues de type sol-gel [III.14] ou dopage hétérogène [III.15] ne remplissant pas les critères de mérite listés au Chapitre II, Partie II. L'état de l'art décline nombre de complexes dédiés à l'incorporation d'un métal en particulier, tels que le lithium [III.16], le bismuth [III.17], l'euporium [III.18] ou le gadolinium [III.19]. Les ligands carboxylates ont permis de dépasser un chargement de 10 % en masse (10 %m) pour le plomb [III.20], tandis que les triaryles ont donné accès à une incorporation supérieure à 10 %m en bismuth [III.21]. Ces solutions n'apparaissent toutefois pas généralisables à l'incorporation des lanthanides.

Pour cette dernière application, l'état de l'art décrit l'utilisation de ligands acétylacétonates abrégés acac, basés sur le composé organique d'acétylacétone, dit également pentane-2,4-dione, de formule brute $C_5H_8O_2$ et dont la représentation topologique est portée sur la Figure III.3. Le groupement bêta-dicétone a ainsi été utilisé en scintillation liquide pour

l'incorporation du gadolinium [III.22]. Dans le domaine de la scintillation plastique, les travaux de référence de Czirr *et al.* [III.23] présentent l'utilisation d'un complexe de phénylacétylacétonéthyle pour le dopage au gadolinium d'une matrice commerciale NE-120. Outre un chargement massique inférieur à 1 %m, le choix de ce ligand asymétrique présentant une sous-unité aromatique est susceptible de poser problème. Il est en effet admis que les unités aromatiques favorisent le transfert d'excitation. Dès lors, la présence d'un groupe aromatique à proximité du centre métallique, en l'occurrence du gadolinium, pourrait tendre à favoriser le transfert d'excitons des fluorophores vers le métal, et donc l'extinction de fluorescence. La recherche a par conséquent été dirigée vers un composé dépourvu de tels groupements et dont la structure met à distance le centre métallique des unités aromatiques de la matrice. L'exemple des ligands de 2,6-diméthyl-3,5-heptanedionate mis en œuvre pour l'incorporation de l'erbium [III.24] dans des matrices de polyméthacrylate de méthyle (abrégé PMMA) a finalement orienté notre choix vers un ligand similaire, à savoir le 2,2,6,6-tétraméthyl-3,5-heptanedionate, abrégé TMHD. Le complexe organométallique ainsi créé à partir du gadolinium(III) trivalent est dit gadolinium-tris-tétraméthylheptanedionate et noté $Gd(TMHD)_3$. Sa représentation topologique est également portée sur la Figure III.3.

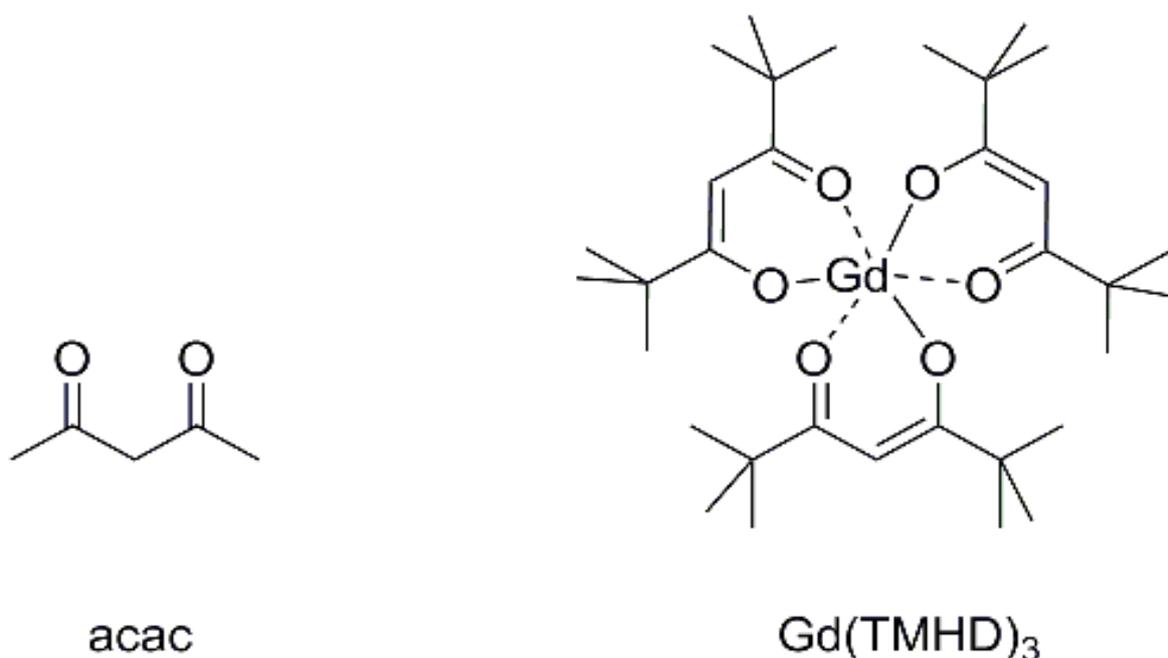


Figure III.3 : Représentations topologiques de l'acac et du $Gd(TMHD)_3$.

La faisabilité du dopage *via* le TMHD a été établie pour le gadolinium ainsi que pour deux autres lanthanides, l'euprimum (Eu, $Z = 63$) et le terbium (Tb, $Z = 65$), avec de satisfaisantes propriétés en termes de turbidité, d'homogénéité et de fluorescence, ainsi que l'illustrent les photographies portées sur la Figure III.4, en lumière naturelle et sous une lampe à ultraviolet ($\lambda = 365 \text{ nm}$). L'adaptabilité du ligand à l'incorporation des lanthanides dans les scintillateurs plastiques à matrice de polystyrène est ainsi démontrée.

3. Préparation du milieu plastique scintillant dopé au gadolinium

Le choix du complexe organométallique (gadolinium-tris-tétraméthylheptanedionate) et de la matrice (styrène) étant fait, il reste à déterminer les fluorophores primaires et secondaires

pour la scintillation, choix également guidé par la contrainte de compatibilité avec le complexe organométallique. La sélection d'une composition des plastiques scintillants dopés en élément gadolinium a été finalement arrêtée sur un mélange quinaire comprenant :

- du styrène à la base de la matrice polymère ;
- du diméthacrylate de 1,4-butanediyle, abrégé *1,4-BuMA* et dont la représentation topologique est portée sur la Figure III.5, comme agent réticulant de la matrice ;
- du PPO comme fluorophore primaire ;
- du Bis-MSB comme fluorophore secondaire.
- le complexe organométallique de $Gd(TMHD)_3$.

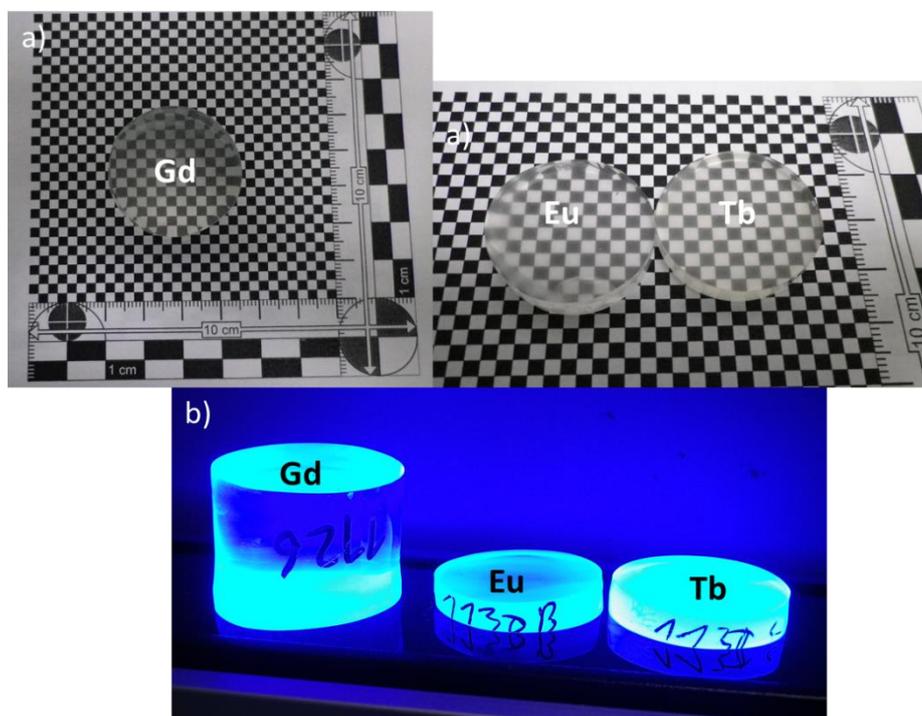


Figure III.4 : Scintillateurs plastiques dopés au gadolinium, à l'euprimum et au terbium, éclairage naturel (a) et UV (b).

Le styrène a été acquis auprès du fournisseur commercial VWR, les autres composants du mélange auprès du fournisseur Sigma-Aldrich, à l'exception du complexe de $Gd(TMHD)_3$ commandé à Strem Chemicals. Le styrène est asséché dans de l'hydrure de calcium, de formule CaH_2 , puis distillé à basse pression de façon à éliminer les impuretés et les inhibiteurs de polymérisation présents dans le produit commercial. Un mélange en solution de 75 à 100 %m de styrène et 0 à 25 %m de réticulant est préparé. Dans cette dernière solution sont également dissous les fluorophores et le dopant organométallique en quantités souhaitées. La solution finale est chauffée de façon à assurer la solubilisation totale du dopant, puis filtrée successivement avec du charbon actif et un dessicant de sulfate de magnésium, de formule chimique $MgSO_4$. La solution limpide et incolore ainsi obtenue est alors dégazée. La solution est ensuite placée dans un moule de géométrie cylindrique avec un initiateur de polymérisation. Le tout est scellé sous atmosphère inerte d'azote et placé dans un four à 60 °C

durant dix à quinze jours. Une fois la polymérisation achevée, les échantillons sont refroidis jusqu'à la température ambiante et le moule est finalement brisé pour permettre la récupération du plastique.

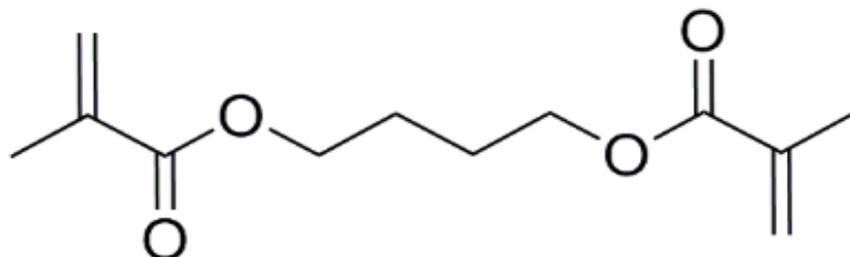


Figure III.5 : Représentation topologique du 1,4-BuMA.

4. Scintillateurs plastiques dopés au bismuth pour la compensation

4.1. Justification de l'incorporation de bismuth dans le scintillateur de compensation

La mise en œuvre la plus évidente du principe de compensation présenté dans la Partie I consiste à mettre en regard d'un scintillateur plastique préparé selon le protocole du paragraphe 3 un scintillateur de mêmes dimensions et composition, mais sans incorporation du complexe de $Gd(TMHD)_3$. Il faut toutefois noter que, dans ce cas, les densités et surtout les numéros atomiques effectifs des milieux différeront d'autant plus que le chargement en gadolinium sera élevé. Or, les premiers échantillons réalisés devant être de faible volume, l'interaction des milieux scintillants avec la radioactivité présente sera largement dominée par les interactions avec le rayonnement gamma d'ambiance, ce qui sera plus précisément discuté en Partie X. Pour des rayonnements photoniques à basse énergie, les interactions avec la matière s'effectuent majoritairement par effet photoélectrique. Or, conformément à ce qui a été expliqué au paragraphe 4.2 du Chapitre I, ce dernier effet dépend très fortement et de façon non linéaire de l'énergie du rayonnement incident et, dans le cas d'un système composite, du numéro atomique effectif du milieu traversé. Une dépendance du coefficient de compensation Q vis-à-vis de l'énergie du rayonnement incident à basse énergie est par conséquent attendue, d'autant plus marquée que l'écart entre les numéros atomiques des milieux est important. Cette divergence doit ensuite disparaître à moyenne énergie, les interactions étant alors dominées par l'effet Compton, dont la probabilité n'est plus fonction du numéro atomique effectif, comme vu au paragraphe 4.3 du Chapitre I, mais seulement de la densité du milieu de propagation. Or, pour être opérationnel dans des environnements radioactifs dont la distribution énergétique est susceptible de varier, y compris vers les basses énergies, le schéma de détection, et plus spécifiquement le coefficient de compensation Q , doivent être le moins dépendants possible de l'énergie résultante du rayonnement photonique, et ce sur la plage en énergie la plus large possible.

Afin de corriger cette divergence, un dopage du scintillateur de compensation en élément lourd est proposé, de manière à élever le numéro atomique du milieu scintillant à une valeur plus proche de celle obtenue par dopage au gadolinium dans le scintillateur de détection. Le dopant choisi pour cet emploi :

- doit posséder une section efficace d'absorption des neutrons thermiques négligeable devant celle du gadolinium ;

- ne pas posséder, sous sa forme naturelle, un isotope radioactif (d'où l'exclusion du lanthane)
- ne pas induire de fluorescence significative en sus de la matrice et de ses fluorophores (d'où l'exclusion du terbium).

En raison du retour d'expérience du laboratoire sur la montée en chargement massique des scintillateurs plastiques dopés au bismuth, le bismuth, de numéro atomique $Z = 83$, a été sélectionné comme élément lourd pour le dopage du scintillateur de compensation. Pour des raisons de symétrie des préparations, l'option idéale aurait consisté à incorporer le bismuth à l'intérieur d'un complexe de bismuth-tris-tétraméthylheptanedionate, abrégé $\text{Bi}(\text{TMHD})_3$, mais la turbidité et l'instabilité du mélange obtenu se sont révélées incompatibles avec la mise en œuvre de ce dernier dans un détecteur à scintillation. Il a par conséquent été choisi d'incorporer le bismuth à l'intérieur d'un complexe de triphénylbismuth, abrégé BiPh_3 , dont la représentation topologique est portée sur la Figure III.6.

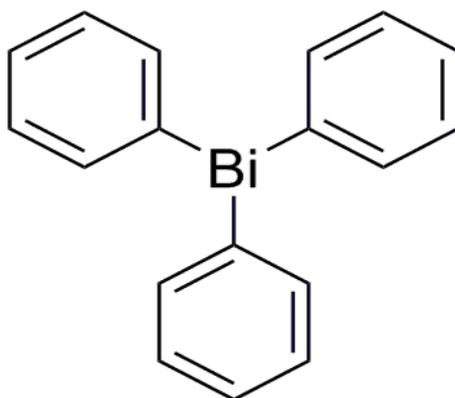


Figure III.6 : Représentation topologique du BiPh_3 .

4.2. Préparation du milieu plastique scintillant dopé au bismuth

La composition des plastiques scintillants dopés en élément bismuth pour la compensation est quinaire et comprend :

- du styrène à la base de la matrice polymère ;
- du 1,4-BuMA comme agent réticulant de la matrice ;
- du PPO comme fluorophore primaire ;
- du Bis-MSB comme fluorophore secondaire ;
- le complexe organométallique de BiPh_3 .

Les composants du mélange ont les mêmes provenances respectives que ceux présentés au paragraphe 3, à l'exception du complexe de BiPh_3 acquis auprès de la société PHDS. La

préparation est également similaire, à l'exception de la cuisson qui s'effectue à des températures comprises entre 40 et 45 °C, sur une durée de quinze à trente jours.

PARTIE III : Etude multiparamétrique des scintillateurs plastiques dopés au gadolinium et au bismuth

Les scintillateurs dopés en éléments lourds, tels que le gadolinium et le bismuth, sont connus pour présenter une importante extinction de fluorescence. Cette extinction limite le chargement optimal en complexe organométallique permettant d'atteindre le rendement lumineux le plus élevé. La formule de Birks présentée au Chapitre III, Partie II, paragraphe 2.3 suggère en effet que la dégradation de la réponse lumineuse par extinction de fluorescence est d'autant plus prononcée que le transfert d'énergie linéique des électrons à l'origine du signal est élevée. Or, comme indiqué au Chapitre I, paragraphe 5, le transfert d'énergie linéique des électrons est une fonction croissante du numéro atomique. Le rendement lumineux est de même fortement dépendant de la quantité de fluorophore primaire, ici le PPO, introduite dans le mélange, *via* les mécanismes de transfert de l'énergie d'excitation entre le complexe organométallique et le couple matrice / fluorophore primaire. Afin d'étudier empiriquement l'influence des chargements en complexes de $Gd(TMHD)_3$ et de $BiPh_3$ d'une part, et de PPO d'autre part, une étude bi-paramétrique des rendements lumineux en fonction des chargements massiques en éléments lourds et en fluorophore primaire a été conduite.

Les scintillateurs dopés au gadolinium et au bismuth selon les compositions qualitatives et les protocoles de préparation décrits en Partie II, paragraphes 3 et 4, sont découpés et polis en cylindres de mêmes dimensions, soit de diamètre $d = 17,5$ mm et de hauteur $h = 8$ mm.

1. Composition des scintillateurs plastiques dopés au gadolinium et au bismuth

Les Tableaux III.1 et III.2 présentent respectivement les compositions des plastiques scintillants dopés au gadolinium et au bismuth. Les lettres de A à E désignent les scintillateurs dopés au bismuth rangés par ordre de chargements en PPO croissants. Les chiffres de 1 à 5 accolés à la dénomination de ces échantillons les identifient par ordre de chargement en complexe de $BiPh_3$ croissant. Symétriquement, les lettres de F à J désignent les scintillateurs dopés au gadolinium rangés par ordre de chargement en PPO croissant, et les chiffres de 1 à 4 les identifient par ordre de chargements en complexe de $Gd(TMHD)_3$ croissants. Les volumes sont notés V_i et exprimés en millilitres (mL), les masses m_i et exprimées en milligrammes (mg), les taux massiques $\%m_i$ et exprimés en pourcentages massiques (%m), où i figure un composant donné du mélange. Le chargement massique en Bis-MSB est constant, égal à 0,9 mg pour la totalité des échantillons présentés. Les valeurs données pour les taux massiques sont toutes arrondies à l'unité, et calculées pour le PPO avant incorporation des complexes organométalliques. La borne supérieure retenue pour le dopage en masse de chaque métal correspond au plus fort taux massique ayant permis d'obtenir un scintillateur dopé au gadolinium possédant des propriétés optiques acceptables, au regard de l'homogénéité et de la turbidité de la préparation. Le chargement massique maximal de gadolinium, en effet, gouverne le chargement maximal utile pour la compensation par dopage au bismuth, puisque le numéro atomique du bismuth est supérieur à celui du gadolinium.

CHAPITRE III

Echantillon	V _{styrène} (mL)	V _{réticulant} (mL)	m _{PPO} (mg)	m _{BiPh₃} (mg)	%m _{PPO} (%)	%m _{Bi} (%)
A1	2,46	0,74	15	0	0,5	0
A2	2,41	0,72	15	70	0,5	1
A3	2,36	0,71	15	130	0,5	2
A4	2,17	0,65	15	360	0,5	5
A5	1,79	0,54	15	820	0,5	10
B1	2,45	0,74	30	0	1	0
B2	2,39	0,72	30	70	1	1
B3	2,34	0,70	30	130	1	2
B4	2,15	0,65	30	360	1	5
B5	1,77	0,53	30	820	1	10
C1	2,40	0,72	90	0	3	0
C2	2,34	0,70	90	70	3	1
C3	2,29	0,69	90	130	3	2
C4	2,10	0,63	90	360	3	5
C5	1,72	0,52	90	820	3	10
D1	2,23	0,67	300	0	10	0
D2	2,17	0,65	300	70	10	1
D3	2,12	0,64	300	130	10	2
D4	1,93	0,58	300	360	10	5
D5	1,55	0,47	300	820	10	10
E1	1,73	0,52	900	0	30	0
E2	1,67	0,50	900	70	30	1
E3	1,63	0,49	900	130	30	2
E4	1,44	0,43	900	360	30	5
E5	1,06	0,32	900	820	30	10

Tableau III.1 : Composition des scintillateurs plastiques dopés au bismuth.

Echantillon	V _{styrène} (mL)	V _{réticulant} (mL)	m _{PPO} (mg)	m _{Gd(TMDH)₃} (mg)	%m _{PPO} (%)	%m _{Gd} (%)
F1	2,46	0,74	15	0	0,5	0
F2	2,34	0,70	15	70	0,5	1
F3	2,22	0,67	15	130	0,5	2
F4	1,74	0,52	15	360	0,5	5
G1	2,45	0,74	30	0	1	0
G2	2,33	0,70	30	70	1	1
G3	2,21	0,66	30	130	1	2
G4	1,73	0,52	30	360	1	5
H1	2,40	0,72	90	0	3	0
H2	2,28	0,68	90	70	3	1
H3	2,16	0,65	90	130	3	2
H4	1,68	0,50	90	360	3	5
I1	2,23	0,67	300	0	10	0
I2	2,10	0,63	300	70	10	1
I3	1,99	0,60	300	130	10	2
I4	1,51	0,45	300	360	10	5
J1	1,73	0,52	900	0	30	0
J2	1,61	0,48	900	70	30	1
J3	1,49	0,45	900	130	30	2
J4	1,01	0,30	900	360	30	5

Tableau III.2 : Composition des scintillateurs plastiques dopés au gadolinium.

2. Montage et chaîne d'acquisition

La conversion en signal électronique des réponses lumineuses associées aux différents scintillateurs est assurée par un photomultiplicateur à photocathode en Bialkali de modèle Hamamatsu™ H1949-51, alimenté en Haute Tension par une alimentation Ortec™ 556. Après une adaptation analogique du signal à la dynamique de codage, le traitement des impulsions de scintillation est réalisé au moyen de la carte de numérisation PGN, développée au sein du laboratoire [III.25] et dédiée à ce type de signaux. La chaîne numérise le signal à la fréquence de 200 mégaéchantillon.s⁻¹, réalise une opération de filtrage sur une fenêtre glissante de 7 échantillons de façon à maximiser le rapport signal sur bruit (RSB) et une opération de différenciation pour corriger les fluctuations de ligne de base. Les impulsions sont extraites et leur amplitude maximale, après recherche du maximum, est enregistrée de façon à classer l'événement dans un histogramme en amplitude codé sur 8 bits. Le schéma de principe du traitement électronique réalisé est porté sur la Figure III.7.

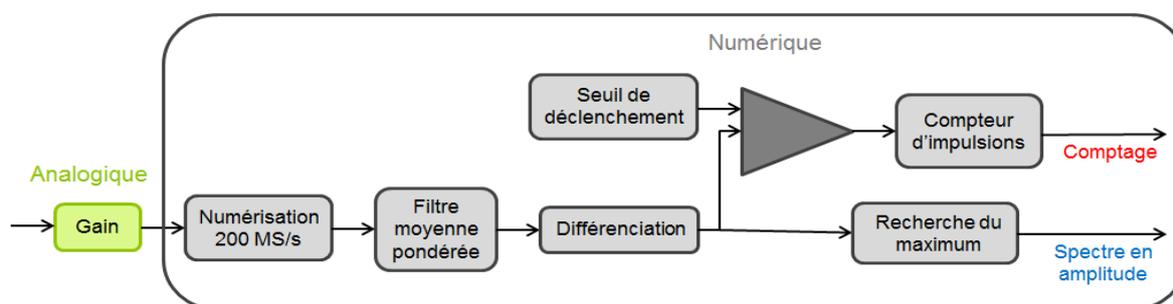


Figure III.7 : Schéma de principe du traitement des impulsions (carte de numérisation PGN).

Une impulsion de scintillation typique en sortie du photomultiplicateur est reproduite sur la Figure III.8, obtenue pour le scintillateur référencé H3 dans le paragraphe précédent. Le temps de montée est de l'ordre de 5 à 10 ns. La durée moyenne des impulsions délivrées est évaluée à $t_d = 50 \pm 10$ ns à l'aide d'un oscilloscope Lecroy de type HDO 6054-MS. La fréquence d'échantillonnage nous assure donc l'obtention d'une moyenne de 10 points par impulsion.

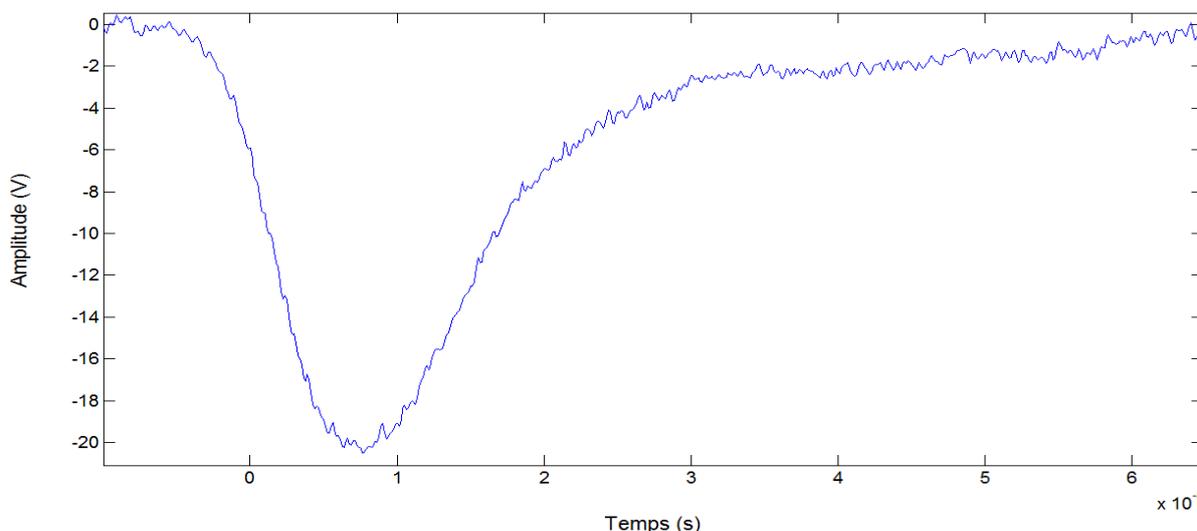


Figure III.8 : Impulsion de scintillation en sortie du photomultiplicateur (Lecroy).

La carte électronique obéit à un modèle dit *non-paralysable*, en sorte que le taux de comptage vrai λ noté s'exprime en fonction du taux de comptage enregistré λ_r et du temps mort du système t_d sous la forme :

$$\lambda = \frac{\lambda_r}{1 - \lambda_r t_d} \quad (\text{III. 1})$$

Le temps d'occupation de la chaîne d'acquisition n'est limité que par la durée moyenne des impulsions (estimée avec l'incertitude liée au pas d'échantillonnage), puisqu'aucun algorithme de rejet des empilements (*pile-up* en anglais) n'a été codé et que les impulsions sont traitées en flux. Ainsi, le temps mort de mesure en présence d'un taux vrai égal à λ est donné par $\lambda_r t_d$, tandis que le taux d'empilement, noté λ_{pu} , est calculé [III.26] selon :

$$\lambda_{pu} = \lambda_r (1 - e^{-\lambda t_d}) \quad (\text{III. 2})$$

Le taux de comptage enregistré maximal dans ce chapitre est voisin de $\lambda_r = 300$ cps (Partie X), d'où l'on déduit une différence $\lambda - \lambda_r$ et un taux d'empilement λ_{pu} de l'ordre de 0,005 cps. Les problématiques liées au temps mort et l'empilement sont, par conséquent, négligées dans cette étude.

La chaîne d'acquisition est isolée de la lumière ambiante et des sources de bruit statique par une cage de Faraday opaque.

3. Evolution du rendement lumineux en fonction du chargement en PPO et en dopant organométallique

Les rendements lumineux relatifs des scintillateurs plastiques décrits ci-dessus sont évalués, selon une méthode conventionnelle, à partir de la position du front Compton à $E_{CE} = 478$ keV de chacun des spectres en amplitude obtenus en présence d'une source de césium 137 d'activité $A = 178$ kBq, selon la procédure décrite au Chapitre II, Partie II, paragraphe 4. Pour les scintillateurs dopés au bismuth (A à E) d'une part et dopés au gadolinium d'autre part (F à J), les rendements lumineux relatifs, exprimés par rapport au rendement lumineux maximal de chacun des deux groupes (E1 pour le dopage au bismuth et J1 pour le dopage au gadolinium), sont portés sur les Figures III.9 et III.10 respectivement, avec les écarts-types associés. Sur l'axe des abscisses sont portés les chargements massiques en PPO rapportés à la composition totale après incorporation des complexes organométalliques.

La première observation qui s'impose à la lecture des résultats est la décroissance systématique du rendement lumineux, à chargement en PPO constant, en fonction du chargement en élément lourd, que ce soit bismuth ou gadolinium. Il apparaît toutefois que cette décroissance est plus prononcée dans le cas du dopage au gadolinium, ce qui est contre-intuitif, puisque le gadolinium possède un numéro atomique inférieur à celui du bismuth. Cette observation confirme que l'extinction de fluorescence, qui se traduit par une dégradation du rendement lumineux, est non seulement tributaire du numéro atomique du dopant métallique, mais également, et très significativement, de la nature du complexe à l'intérieur duquel ce dernier est incorporé.

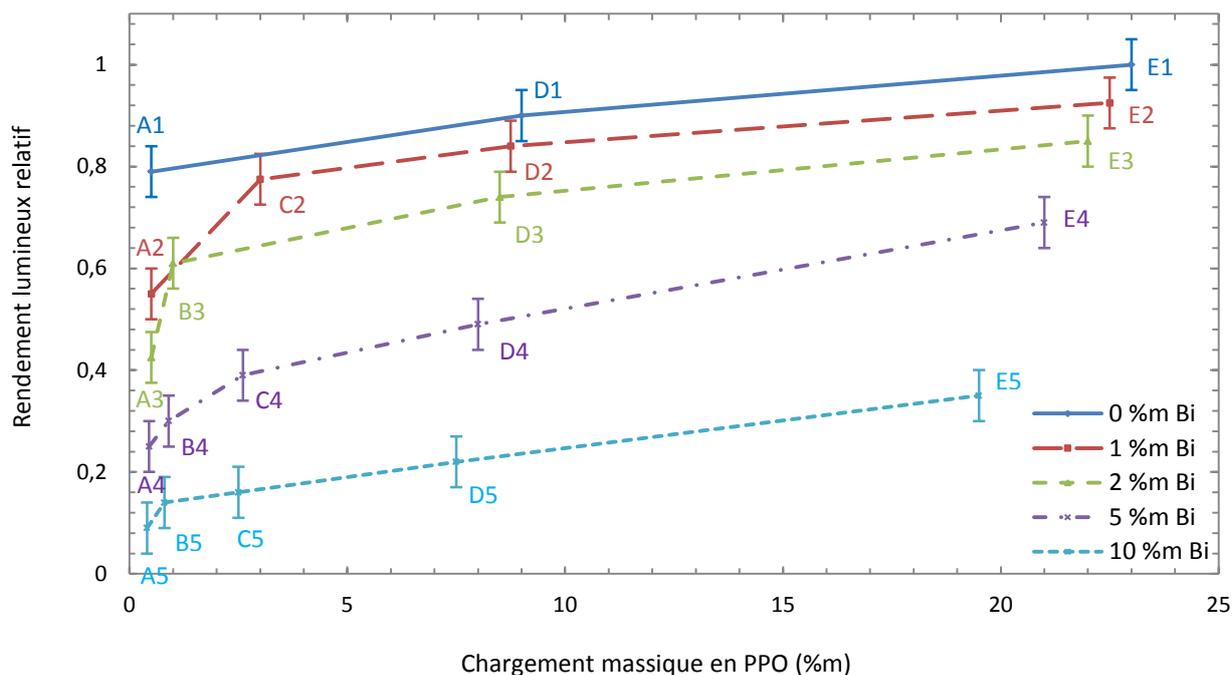


Figure III.9 : Evolution du rendement lumineux en fonction du chargement massique en PPO pour différents chargements en élément bismuth (Séries A à E).

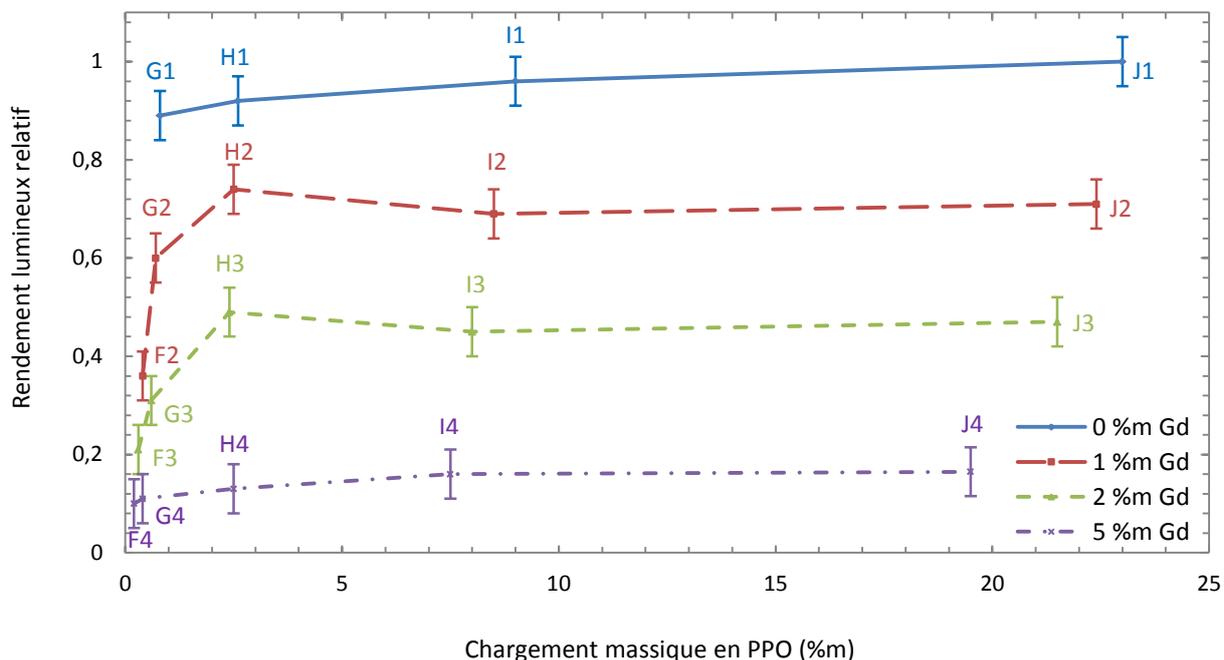


Figure III.10 : Evolution du rendement lumineux en fonction du chargement massique en PPO pour différents chargements en élément gadolinium (Séries F à J).

La seconde observation porte sur la disparité de l'évolution des rendements lumineux, d'un complexe organométallique à l'autre, en fonction de la concentration en fluorophore primaire. Pour les échantillons dopés au bismuth, le rendement lumineux est en effet une fonction monotone, croissante, du chargement en PPO, ce qui corrobore les tendances observées sur les scintillateurs dopés au plomb [III.20]. Etant donné que la hausse du rendement lumineux indique une décroissance de l'extinction de fluorescence, il vient que les transferts d'énergie

sont favorisés depuis le complexe organométallique de BiPh_3 vers le PPO, selon notre hypothèse *via* les sous-unités aromatiques du complexe, dont il a déjà été mentionné qu'elles favorisaient les transferts d'excitons. *A contrario*, pour les échantillons dopés au gadolinium, une saturation du rendement lumineux, à chargement en complexe donné, est observée en fonction du chargement en PPO, atteinte à partir de 3 %m. Ce comportement suggère que le ligand de TMHD inhibe les transferts d'excitons du complexe organométallique vers le PPO, une autre conséquence de l'absence de sous-unité aromatique en périphérie du complexe. Cette étude est présentée de façon détaillée dans la publication référencée [III.27]. A ce titre, l'insertion du gadolinium *via* un complexe de GdPh_3 a été envisagée, mais les premiers échantillons obtenus se sont avérés d'une turbidité excessive pour être utilisés comme scintillateurs.

La Figure III.10 suggère que la série référencée H autorise le chargement le plus élevé en élément gadolinium sans entraîner de dégradation drastique du rendement lumineux par rapport à la série de référence 1 (non dopée). A 2 %m en gadolinium, aucun gain en rendement lumineux n'étant apporté par une augmentation du chargement en PPO au-delà de 3 %m, le choix de l'échantillon H3 s'impose comme le meilleur compromis en fonction des deux paramètres retenus pour l'étude. Une étude conduite par simulation Monte Carlo a permis de déterminer que la réduction la plus significative de la dispersion du coefficient de compensation photonique Q autour de sa valeur moyenne pour le scintillateur de détection réalisé selon la composition décrite en H3 est atteinte pour un chargement en bismuth du scintillateur de compensation voisin de 1 %m, si bien que l'on retiendra le mélange E2, de rendement lumineux maximisé, pour la préparation de ce dernier. La réduction de la dispersion autorisée par le dopage au bismuth par rapport à la simple compensation de H3 par son pendant non dopé, nommé H1, sera quantifiée dans la Partie V. L'étude des échantillons H3 et E2 en compensation sera décrite dans les parties suivantes.

PARTIE IV : Etude par simulation de la signature des captures neutroniques dans le scintillateur plastique dopé au gadolinium

L'opération de détection et de comptage neutroniques étant fondée sur une compensation de spectres en amplitude, il apparaît utile, en vue d'améliorer le rapport signal sur bruit, de limiter le comptage à quelques plages d'énergie sur lesquelles la signature moyenne d'une capture de neutron thermique dans le scintillateur de détection est significative.

Afin de déterminer l'existence de telles plages, une étude par simulation Monte-Carlo est conduite au moyen du code MCNPX2.6.0, présenté au paragraphe 2.2 du Chapitre I. Le scintillateur de détection dopé à 2 %m en gadolinium est modélisé sous la forme d'un cylindre parfait de hauteur $h = 8$ mm et de diamètre $D = 17,5$ mm, de masse volumique $\rho_{H3} = 1,2 \text{ g.cm}^{-3}$ évaluée au moyen d'une balance de pesée. La carte benz.01t est utilisée pour rendre compte de la structure de la matrice à base de styrène : en effet, l'organisation des atomes de carbone et d'hydrogène selon des cycles de benzène a des conséquences sur la diffusion des particules, notamment les neutrons, qui sont prises en compte grâce à cette carte matériau. La composition du scintillateur est décrite par les proportions massiques suivantes : 83,3 %m de carbone ; 7,6 %m d'hydrogène ; 6,9 %m d'oxygène ; 0,2 %m d'azote ; 2 %m de gadolinium.

Avant d'exposer et de commenter les spectres évalués par simulation, commençons par une précision regardant les notations. Les spectres obtenus expérimentalement, lorsqu'un

détecteur donné est exposé à une ambiance radioactive, présentent un axe des abscisses étalonné en énergie et un axe des ordonnées en nombre de coups (cp) ou en nombre de coups par seconde (cps). En toute rigueur, l'axe des ordonnées représente un nombre de coups par canal (ou *bin*, en anglais). Cette mention est toutefois laissée implicite dans un souci de lisibilité. De même, les spectres extraits des simulations Monte-Carlo présentent, en toute rigueur, un axe des abscisses en énergie et un axe des ordonnées en dépôt d'énergie par particule source générée et par intervalle d'énergie. Par intervalle d'énergie, et non par MeV : le code MCNP2.6.0 ne retourne pas une densité de probabilité, mais bien une probabilité d'événement par intervalle d'énergie. De plus, la largeur du pas d'énergie dans les spectres évalués par MCNPX2.6.0 n'est pas constante par défaut. Dans la pratique, il est conventionnel de se conformer au même souci d'allègement en portant en ordonnée un taux de dépôt par particule source, la mention « par intervalle d'énergie » étant implicite chaque fois que l'axe des abscisses est fonction de l'énergie. C'est ce qui a été fait pour la totalité des spectres simulés présentés dans le manuscrit.

Dans la première simulation, une ambiance de neutrons à l'énergie thermique $T_n = 25$ meV est modélisée sous la forme d'une émission sphérique isotrope à une distance $d = 10$ cm du centre de masse du scintillateur. La distribution spectrale du dépôt énergétique au sein du scintillateur, formant la signature des produits photoniques et électroniques générés par la librairie ENDF/B-VII.0 pour chaque capture neutronique dans le gadolinium, est évaluée au moyen du tally 8 entre 20 keV et le Q de la réaction (8 MeV). Le spectre est normalisé par le taux de capture neutronique dans le scintillateur, évalué au moyen du tally 4 pour la réaction $R = 102$, de façon à établir une signature par capture $Gd(n, \gamma)$. La configuration simulée est illustrée sur la Figure III.11 avec l'interface homme-machine Moritz 1.23, et la distribution de la signature estimée, où le taux de dépôt par capture neutronique ($d. \text{cn}^{-1}$) a été porté sur l'axe des ordonnées, est reproduite sur la Figure III.12 entre 20 keV et 1 MeV.

La signature prend la forme d'un continuum jusqu'à 8 MeV, dont l'essentiel est situé à basse énergie, ce qui s'explique par les faibles numéro atomique effectif, densité et dimensions du capteur. Ainsi, la signature entre 20 keV et 1 MeV, représentée sur la Figure III.10, contient $82 \pm 0,5$ %, soit un taux de $(8,05 \pm 0,05) \cdot 10^{-2} d. \text{cn}^{-1}$, de la totalité du taux de dépôt énergétique des produits de réaction $Gd(n, \gamma)$ générés avec ENDF/B-VII.0. Le spectre obtenu, ainsi qu'annoncé dans la discussion du Chapitre I, paragraphe 2.2, se prête difficilement à une interprétation physique, si ce n'est en notant l'émergence d'un front entre 30 keV et 200 keV, à gauche de la distribution, lequel correspond aux deux front principaux à basse énergie sur la Figure I.6.

Afin d'interroger cette dernière interprétation physique, deux simulations complémentaires ont été effectuées. Dans la première simulation, le terme source photonique et électronique simplifié et explicite calculé au Chapitre I est généré selon une distribution homogène et isotrope dans le scintillateur dopé au gadolinium, sans prise en compte de la distorsion du spectre résultant de la dispersion énergétique. Nous rappelons que ce terme source est obtenu par la réunion du spectre gamma prompt de la Figure I.3, des électrons de conversion interne du Tableau I.4, et des émissions X et Auger du Tableau I.6. La signature obtenue par capture $Gd(n, \gamma)$ est reproduite sur la Figure III.13. Le spectre attendu en utilisant le terme source explicite du Chapitre I confirme que l'essentiel du dépôt d'énergie est à basse énergie, jusqu'à environ 200 keV, en accord avec le spectre de la Figure III.12.

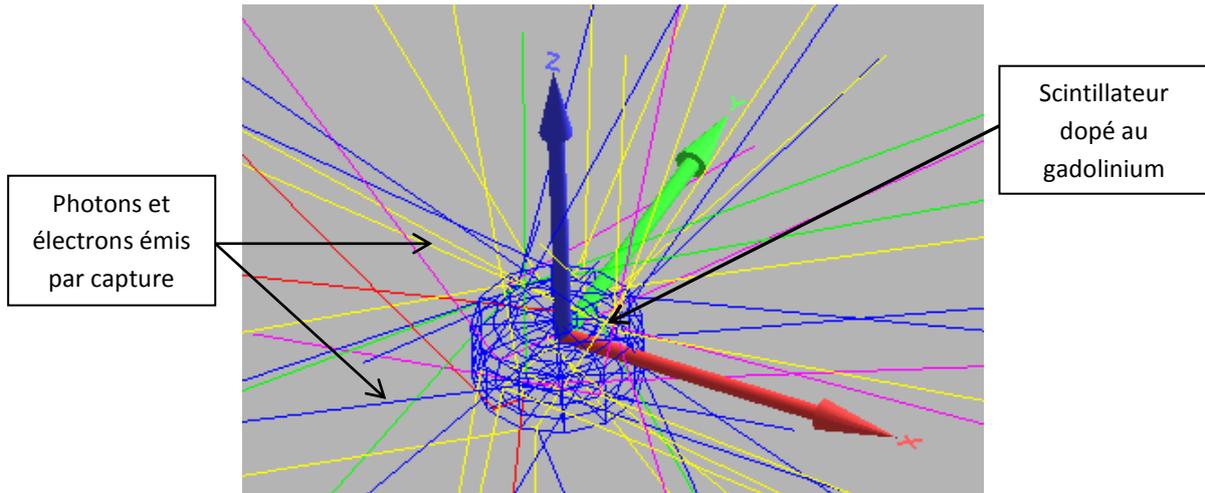


Figure III.11 : Configuration simulée au moyen du code MCNPX2.6.0 pour l'estimation de la signature d'une capture neutronique dans le scintillateur dopé au gadolinium (Moritz 1.23).

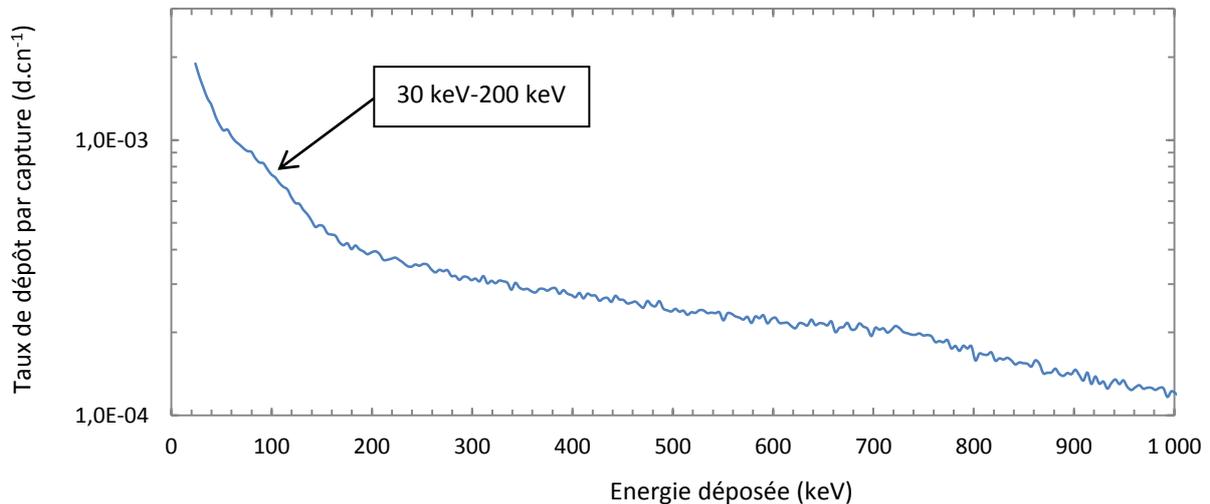


Figure III.12 : Distribution en énergie simulée avec la librairie ENDF/B-VII.0 de la signature d'une capture neutronique dans le scintillateur dopé au gadolinium.

De façon à modéliser l'influence de la résolution en énergie du scintillateur plastique sur la forme réelle du spectre de dépôt, la carte dite d'Elargissement Gaussien en Energie (*Gaussian Energy Broadening* en anglais, abrégé GEB) du code MCNPX2.6.0 est utilisée dans une seconde simulation, avec un terme source identique au précédent. Cette carte optionnelle du tally 8 permet, *via* un modèle simplifié (ici à deux paramètres) d'élargissement gaussien des pics, de modéliser la nature poissonnienne de production des photons de scintillation, ainsi que le bruit électronique associée à la mesure. La largeur à mi-hauteur (en anglais *full width at half maximum* et notée *FHWM*) relevée à une énergie E_γ sur un spectre acquis expérimentalement en présence d'une source photonique, est liée à la valeur de cette énergie elle-même par un couple de paramètres (a, b) tels que :

$$FHWM(E_\gamma) = a + b\sqrt{E_\gamma} \quad (\text{III. 3})$$

A partir des largeurs à mi-hauteur relevées sur les pics d'absorption totale de l'américium 241 ($E_{PP,^{241}\text{Am}} = 59,5 \text{ keV}$) et du cobalt 57 ($E_{PP,^{57}\text{Co}} = 122 \text{ keV}$) sur les spectres de la Figure III.15, les valeurs des paramètres $a = -0,00354 \text{ MeV}$ et $b = 0,1175 \text{ MeV}^{-1/2}$ sont calculées, puis portées en entrée de la carte GEB. La signature obtenue est superposée à la précédente sur la Figure III.13. Remarquons ici que le coefficient a obtenu par calcul est négatif, ce qui n'est pas physique. Ceci s'explique par la nette prépondérance du bruit de quantification, en scintillation plastique, sur le mouvement propre de la chaîne électronique. Le coefficient a est, en effet, quasiment nul, et son influence est très secondaire devant celle du coefficient b d'élargissement gaussien. L'utilisation de la carte GEB hors de son cadre de fonctionnement idéal, c'est-à-dire ici à basse énergie en présence d'un bruit de quantification très important, est en cause dans l'obtention d'une valeur négative du coefficient a . L'accord de tendances entre les spectres obtenus avec et sans carte GEB illustre le fonctionnement néanmoins correct de l'ajustement gaussien. Nous retrouverons ces caractéristiques de l'ajustement gaussien au Chapitre V, Partie IV.

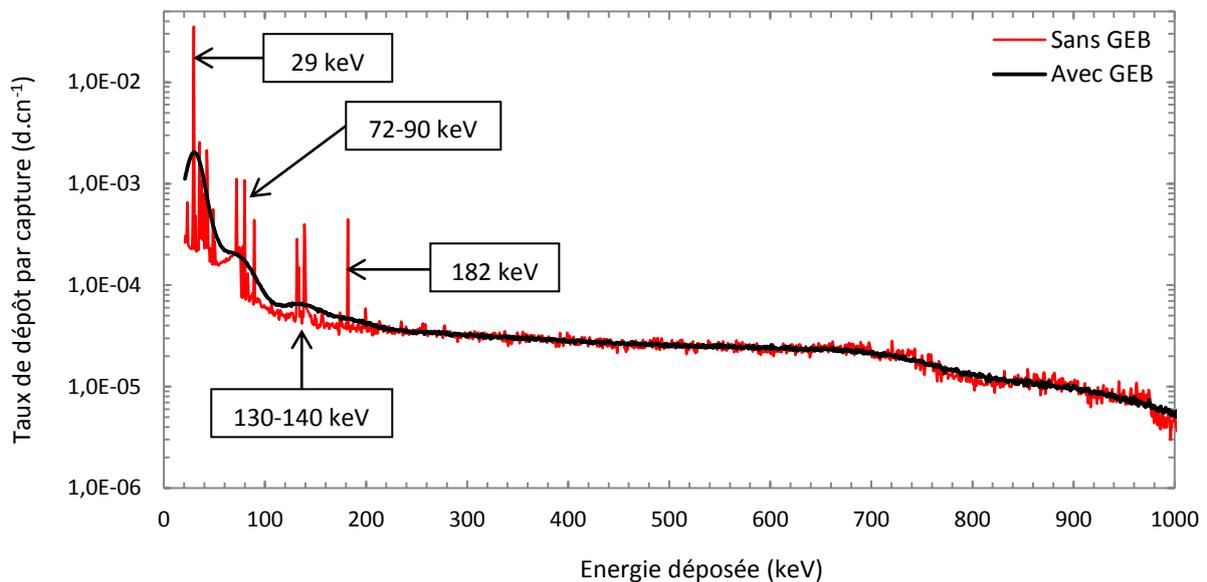


Figure III.13 : Distribution en énergie simulée avec le terme source explicite de la signature d'une capture neutronique dans le scintillateur dopé au gadolinium (avec et sans GEB).

Le spectre en énergie déposée simulé sans la carte GEB met en évidence des pics caractéristiques, au taux de dépôt très significatif. Les pics à 80 et 182 keV correspondent aux deux raies gamma promptes de capture $^{157}\text{Gd}(n,\gamma)$ dominant le spectre de la Figure I.1 à basse énergie. Les pics à 29 keV, 72 keV, 89 keV et 132 keV correspondent aux électrons de conversion interne les plus intenses du Tableau I.4. Le spectre en énergie déposée simulé avec la carte GEB préserve l'importance relative de ces signatures sous la forme de fronts successifs entre 20 keV et 50 keV, 50 keV et 100 keV, et 100 keV et 200 keV, décrivant un profil analogue à celui obtenu au moyen de la librairie ENDF/B-VII.0, borné à 200 keV. Le taux de dépôt agrégés entre 20 keV et 1 MeV, calculé par génération du terme source explicite, s'élève à $(6,75 \pm 0,05) \cdot 10^{-2} \text{ d.cn}^{-1}$, soit un écart relatif de 15 % avec celui fourni par la librairie ENDF/B-VII.0, cité ci-dessus. Ces résultats tendent à corroborer la prépondérance du terme source photonique et électronique explicite entre 20 keV et 200 keV construit au Chapitre I dans la signature des captures au sein du scintillateur dopé, tout en fournissant une interprétation physique de la distribution reproduite sur la Figure III.12.

Deux conclusions se dégagent de l'étude présentée dans cette partie :

1. Le spectre de la signature évalué avec la carte GEB souligne, pour le scintillateur plastique dopé au gadolinium, l'impossibilité d'accéder expérimentalement à une *information spectroscopique* : nous ne chercherons donc pas à identifier des pics caractéristiques des désexcitations radiatives suivant les captures $^{157}\text{Gd}(n,\gamma)$ et $^{155}\text{Gd}(n,\gamma)$. La détection neutronique ne pourra dès lors être fondée que sur la *différence des comptages intégrés*, à l'intérieur de plages larges en énergie, dans la réponse aux rayonnements du scintillateur 1 (détection des neutrons thermiques) et du scintillateur 2 (soustraction du fond gamma en temps réel).
2. L'essentiel de la réponse aux neutrons thermiques du scintillateur 1 se situe à *basse énergie*, jusqu'à environ 200 keV. Etant donné les résolutions attendues, de l'ordre de la dizaine de keV à moins de 200 keV, le choix a été fait, en plus de comptages réalisés sur la totalité des spectres acquis, de limiter les fenêtres d'intérêt à deux larges plages spectrales à basse énergie, respectivement $F_1 = [20 \text{ keV}; 100 \text{ keV}]$ et $F_2 = [100 \text{ keV}; 200 \text{ keV}]$. C'est donc sur ces plages que l'on va chercher à isoler la signature des captures de neutrons thermiques au sein du scintillateur 1. En outre, le choix des deux plages a été fixé de façon à isoler sur F_1 le comportement du système en présence d'un bruit de fond centré sur une énergie gamma $E_\gamma = 59,5 \text{ keV}$ (américium 241), qui ne biaisera pas, en revanche, la mesure sur F_2 . L'intérêt de cette étude sera précisé dans la Partie X.

PARTIE V : Etalonnage en énergie des milieux plastiques scintillants

Nous cherchons à mettre en œuvre une mesure par compensation sur les fenêtres d'intérêt $F_1 = [20 \text{ keV}; 100 \text{ keV}]$ et la fenêtre $F_2 = [100 \text{ keV}; 200 \text{ keV}]$ définies dans la Partie IV. A cette fin, il est nécessaire, pour chacun des trois scintillateurs retenus H1, H3 et E2, d'établir une correspondance entre le numéro de chaque canal sur lequel sont enregistrés des événements (coups) et une valeur d'énergie. Les observations préliminaires réalisées sur ces échantillons ont indiqué que le coefficient d'étalonnage, qui fait correspondre à une énergie donnée un numéro de canal, n'était pas constant sur les fenêtres F_1 et F_2 , mais variait en fonction de l'énergie. Un étalonnage non linéaire de H1, H3 et E2 a, par conséquent, été réalisé au moyen de plusieurs sources radioactives, émettrices de rayonnements gamma, disponibles au sein du laboratoire. Chacune des sources est placée à une distance $d = 10 \text{ cm}$ de la surface d'entrée du scintillateur le long de son axe de symétrie :

- une source d'américium 241, dont le pic d'absorption totale est observé à $E_{PP,^{241}\text{Am}} = 59,5 \text{ keV}$;
- une source de cobalt 57, dont le pic d'absorption totale principal est observé à $E_{PP,^{57}\text{Co}} = 122 \text{ keV}$;
- une source de césium 137, dont le front Compton, associé à une raie d'énergie $E_{\gamma,^{137}\text{Cs}} = 662 \text{ keV}$, est observé à $E_{CE,^{137}\text{Cs}} = 478 \text{ keV}$;

- une source de sodium 22, dont les fronts Compton, associés aux raies d'énergie $E_{\gamma_1, {}^{22}\text{Na}} = 511 \text{ keV}$ (pic d'annihilation) et $E_{\gamma_2, {}^{22}\text{Na}} = 1275 \text{ keV}$, sont observés respectivement à $E_{CE_1, {}^{22}\text{Na}} = 341 \text{ keV}$ et $E_{CE_2, {}^{22}\text{Na}} = 1062 \text{ keV}$.

Le volume des scintillateurs étalonnés est faible, voisin de 3 cm^3 , et leur chargement en métaux lourds modéré, respectivement 2 %m de gadolinium pour H3 et 0,8 %m de bismuth pour E2. Pour ces raisons, les pics d'absorption totale associés aux raies du césium 137 et du sodium 22 n'ont pu être observés, et ce sont les fronts Compton associés à ces raies qui ont été utilisés dans l'étalonnage.

Les spectres en amplitude exprimés en comptages (coups) acquis pour les scintillateurs H1, H3 et E2, soumis aux quatre émetteurs photoniques listés ci-dessus, sont portés en échelle linéaire pour l'axe des abscisses et logarithmique pour l'axe des ordonnées sur les Figures III.14 à III.16. La haute tension a été fixée à 1700 V pour l'acquisition des spectres de H1 et H3, et 1900 V pour l'acquisition des spectres du scintillateur E2. La position du pic d'absorption totale ou du front Compton, ainsi que l'incertitude associée sur le numéro du canal, sont déterminées selon la procédure décrite au Chapitre II, Partie II, paragraphe 4, et portées sur la courbe d'étalonnage non linéaire présentée en Figure III.17. En l'absence d'hypothèse de loi sur la dépendance du coefficient de conversion d'une énergie déposée à un numéro de canal donné, les points sont joints par des segments de droite. Les numéros de canaux respectivement associés aux deux bornes de 100 keV et 200 keV sont relevés sur l'un de ces segments et enveloppés dans un cylindre d'incertitude, défini à partir des barres d'erreur à un écart-type associées aux données expérimentales les plus proches.

L'extrapolation linéaire des trois courbes d'étalonnage entre 0 et 59,5 keV associe l'énergie de 20 keV retenue dans l'étude de dimensionnement à un numéro de canal compris entre 2 et 5. Or le premier canal sur lequel sont enregistrées des impulsions après discrimination par seuillage du bruit électronique est le canal 5. La valeur de 20 keV représente ainsi un minorant pour le seuil en énergie des plages d'intégration des comptages mises en œuvre dans ce chapitre, identifié à + 20 keV près. Le Tableau III.3 rassemble les numéros de canaux associés aux deux bornes ainsi que la plage d'incertitude associée pour les trois scintillateurs entre parenthèses. Cet étalonnage n'est valable que pour la valeur de haute tension associée à chacune des mesures, qui est par conséquent fixée.

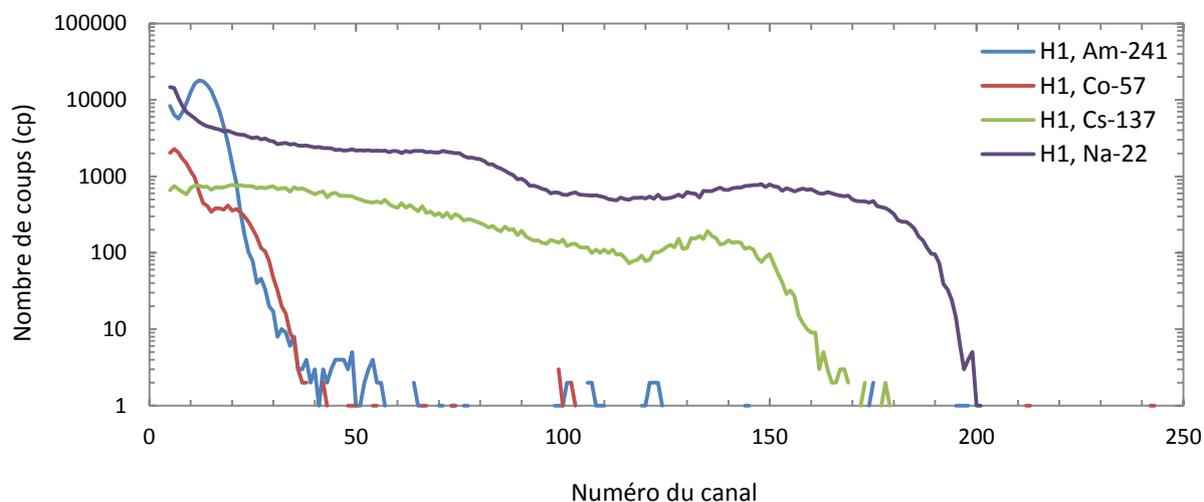


Figure III.14 : Spectres en amplitude du scintillateur H1.

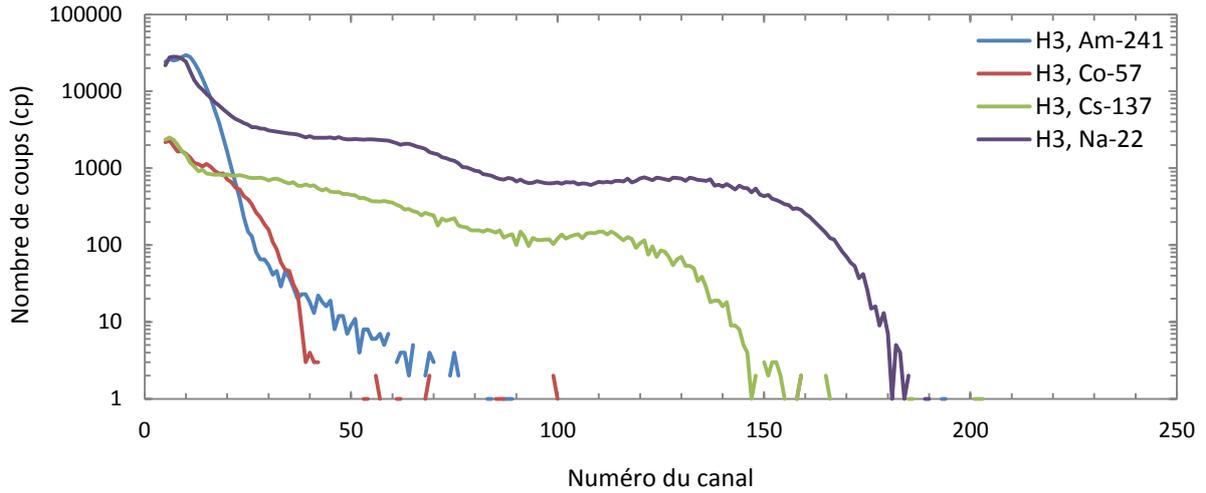


Figure III.15 : Spectres en amplitude du scintillateur H3.

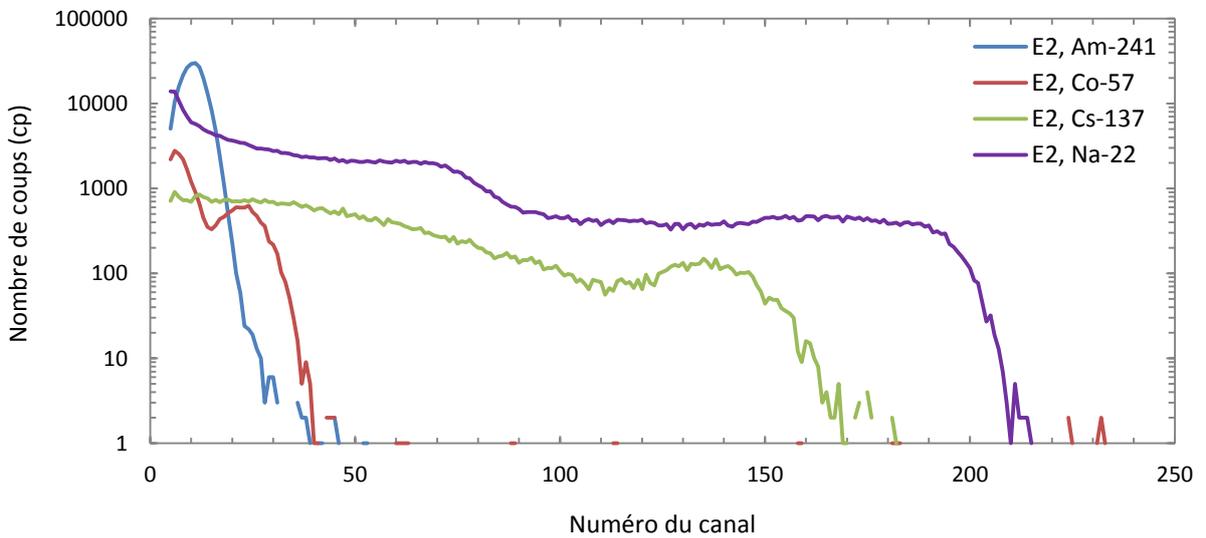


Figure III.16 : Spectres en amplitude du scintillateur E2.

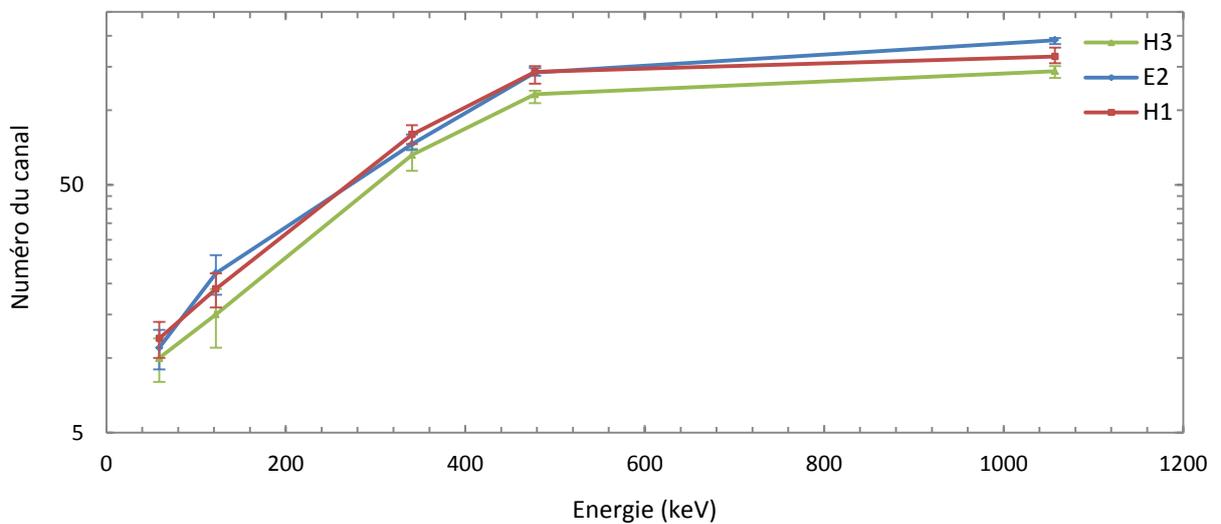


Figure III.17 : Courbes d'étalonnage en énergie des scintillateurs H1, H3 et E2.

Energie \ Scintillateur	H1 (HT = 1700 V)	H3 (HT = 1700 V)	E2 (HT = 1900 V)
100 keV	28 (plage : [22 ; 34])	22 (plage : [18 ; 26])	31 (plage : [25 ; 37])
200 keV	41 (plage : [33 ; 49])	37 (plage : [30 ; 44])	43 (plage : [34 ; 52])

Tableau III.3 : Numéros de canaux avec incertitudes (un écart-type) identifiés à 100 keV et 200 keV pour H1, H3 et E2.

PARTIE VI : Comparaison des coefficients de compensation expérimentaux aux résultats de simulation en présence de rayonnements photoniques

La Partie IV nous a permis de décrire la distribution attendue du signal utile pour la détection des neutrons thermiques dans le scintillateur 1. Dans les Parties VI et VII, nous allons nous attacher au bruit de fond gamma, et plus spécifiquement à l'évolution du coefficient de compensation Q en fonction de l'énergie E_γ du fond gamma à soustraire en temps réel. Dans cette partie, le coefficient Q représente donc le rapport de la sensibilité du scintillateur 1 (préparation notée H3 : 2 %m de gadolinium) sur celle du scintillateur 2 (préparation notée E2 : 0,8 %m de bismuth). Afin d'illustrer l'intérêt de doper avec du bismuth le scintillateur 2, annoncé à la fin de la Partie III, nous présentons également une compensation témoin, où le scintillateur E2 est remplacé par H1 (non dopé). L'évolution de Q en fonction de E_γ est étudiée à la fois par simulation et expérimentalement, afin d'évaluer la pertinence de nos modèles.

Soient N_{H1} , N_{H3} et N_{E2} les comptages respectivement et séparément enregistrés avec les scintillateurs H1, H3 et E2, en présence d'une source émettrice de rayonnements gamma donnée. L'étude par simulation qui sera présentée en Partie VIII montre qu'aucun biais significatif n'est introduit dans l'estimation des coefficients de compensation de l'activité photonique lorsque les scintillateurs sont testés séparément ou, ainsi qu'illustré sur le schéma de principe de la Figure III.1, côte à côte et convenablement isolés, si bien que l'on choisit la première configuration pour des raisons de convenance pratique.

Ces comptages sont réalisés en comptage total, c'est-à-dire sur la totalité des canaux du spectre, ou sélectivement sur les plages d'énergie $F_1 = [20 \text{ keV} ; 100 \text{ keV}]$ et $F_2 = [100 \text{ keV} ; 200 \text{ keV}]$ dont la pertinence a été établie à la fin de la Partie IV. On introduit enfin les notations : $Q_{H3/H1} = \frac{N_{H3}}{N_{H1}}$ et $Q_{H3/E2} = \frac{N_{H3}}{N_{E2}}$, puisque le rapport des comptages équivaut ici à l'estimée du coefficient Q . Ces deux derniers quotients, qui correspondent aux coefficients de compensation des réponses photoniques, sont des fonctions de l'énergie du rayonnement E_γ . La première tâche consiste à comparer les valeurs de $Q_{H3/H1}$ et $Q_{H3/E2}$ obtenues expérimentalement aux valeurs calculées par simulation Monte-Carlo.

La simulation décrit aussi finement que possible les échantillons réels en modélisant ces derniers par des cylindres parfaits de hauteur $h = 8 \text{ mm}$ et de diamètre $D = 17,5 \text{ mm}$, de masses volumiques respectives $\rho_{H1} = 1,1 \text{ g.cm}^{-3}$, $\rho_{H3} = 1,2 \text{ g.cm}^{-3}$ et $\rho_{E2} = 1,1 \text{ g.cm}^{-3}$, évaluées au moyen d'une balance de pesée. La carte benz.01t du code MCNPX2.6.0 est utilisée pour rendre compte de la structure styrenique de la matrice plastique. Le modèle adopté pour les compositions des scintillateurs est décrit par les proportions massiques suivantes :

- H1 : 85,0 %m de carbone ; 7,7 %m d'hydrogène ; 7,1 %m d'oxygène ; 0,2 %m d'azote ;
- H3 : 83,3 %m de carbone ; 7,6 %m d'hydrogène ; 6,9 %m d'oxygène ; 0,2 %m d'azote ; 2 %m de gadolinium ;
- E2 : 84,6 %m de carbone ; 7,1 %m d'hydrogène ; 6,9 %m d'oxygène ; 0,8 %m de bismuth.

Les coefficients $Q_{H3/H1}$ et $Q_{H3/E2}$ sont calculés en utilisant le tally 8 du code MCNPX2.6.0 pour l'évaluation des dépôts d'énergie. En entrée, nous simulons un jeu de sources photoniques mono-énergétiques :

- $E_\gamma = \{30 \text{ keV} ; 50 \text{ keV} ; 60 \text{ keV} ; 70 \text{ keV} ; 80 \text{ keV} ; 100 \text{ keV} ; 120 \text{ keV} ; 130 \text{ keV} ; 150 \text{ keV} ; 200 \text{ keV} ; 250 \text{ keV} ; 300 \text{ keV} ; 400 \text{ keV} ; 500 \text{ keV}\}$ pour l'évaluation des quotients en comptage total et sur F_1 ;
- $E_\gamma = \{110 \text{ keV} ; 120 \text{ keV} ; 130 \text{ keV} ; 150 \text{ keV} ; 200 \text{ keV} ; 250 \text{ keV} ; 300 \text{ keV} ; 400 \text{ keV} ; 500 \text{ keV}\}$ pour l'évaluation des quotients sur F_2 .

Le nombre d'itérations du code de calcul est fixé de telle sorte que, pour chacune de ces raies simulées, l'incertitude relative associée au quotient des réponses soit inférieure à 1 %, et ce sur chacune des trois plages d'intégration.

On évalue ensuite expérimentalement à partir des spectres en énergie présentés en Partie V les valeurs $Q_{H3/H1}$ et $Q_{H3/E2}$ pour les trois sources photoniques dont l'émission peut être approchée par une raie unique, à savoir : la source d'américium 241 ($E_{\gamma, 241\text{Am}} = 59,5 \text{ keV}$), la source de cobalt 57 ($E_{\gamma, 57\text{Co}} = 122 \text{ keV}$) et la source de césium 137 ($E_{\gamma, 137\text{Cs}} = 662 \text{ keV}$). Il faut, en effet, que l'émission des sources puisse, au premier ordre, correspondre à un point de la courbe obtenue par simulation à partir de valeurs discrètes d'énergie gamma. La source de sodium 22 utilisée pour l'étalonnage présenté en Partie V est, par conséquent, exclue de cette étude. En effet, son émission photonique est dominée par un couple de raies intenses (et non en une raie unique) : 1274,5 keV (gamma) et 511,0 keV (annihilation).

L'incertitude de mesure associée au quotient des taux se calcule par propagation des erreurs selon les Equations (III.4) et (III.5) :

$$\sigma(Q_{H3/H1}) = \sqrt{\left(\frac{1}{N_{H1}}\right)^2 \cdot \sigma^2(N_{H3}) + \left(\frac{N_{H3}}{N_{H1}^2}\right)^2 \cdot \sigma^2(N_{H1})} \quad (\text{III. 4})$$

$$\sigma(Q_{H3/E2}) = \sqrt{\left(\frac{1}{N_{E2}}\right)^2 \cdot \sigma^2(N_{H3}) + \left(\frac{N_{H3}}{N_{E2}^2}\right)^2 \cdot \sigma^2(N_{E2})} \quad (\text{III. 5})$$

Le calcul des incertitudes associées aux comptages diffère selon la plage de sommation. Sur la totalité des canaux, l'incertitude ne dépend que des fluctuations statistiques associées à la nature stochastique de la radioactivité (variance égale au comptage), et de l'incertitude sur le seuil bas de comptage entre 20 keV et 40 keV. Sur les plages F_1 et F_2 , les fluctuations

statistiques se somment aux plus grands écarts de comptage dus à l'incertitude portant sur la position des seuils à 20 keV, 100 keV et 200 keV respectivement, telle que déterminée dans l'étalonnage non linéaire en Partie V. Les courbes présentées sur les Figures III.18 à III.23 superposent les quotients expérimentaux aux résultats des simulations sur chacune des trois plages d'intérêt. Les barres d'erreurs en ordonnées sont portées avec un écart-type, soit $\pm\sigma(Q_{H3/E2})$ et $\pm\sigma(Q_{H3/H1})$, de même que les barres d'erreur en énergie.

Les coefficients de compensation obtenus expérimentalement corroborent les *ordres de grandeur* ainsi que les *tendances* décrits par les simulations. Cet accord est notamment satisfaisant pour l'intégration des coups sur tout le spectre (Figures III.18 et III.21), l'incertitude portant sur la position des seuils en énergie étant moins importante. Les écarts observés entre les simulations et les points expérimentaux s'expliquent par :

- les biais potentiellement introduits par le montage expérimental (diffusion des photons gamma dans la cage de Faraday, par exemple) ;
- le fait que les trois sources ne sont pas purement mono-énergétiques : à titre d'illustration, l'émission gamma après désintégration du césium 137 entre en concurrence avec des conversions internes, associées à des raies X à basse énergie (31 à 37 keV).

L'objectif de validation des tendances et des ordres de grandeur est néanmoins rempli.

Les valeurs obtenues par simulation convergent toutes vers $1,09 \pm 0,02$ pour des énergies incidentes supérieures à 200 keV ($Q_{H3/E2}$) ou 300 keV ($Q_{H3/H1}$), de même que les points expérimentaux correspondant à une exposition au césium 137. Cette valeur à convergence est égale au quotient des masses volumiques $\frac{\rho_{H3}}{\rho_{E2}} = \frac{\rho_{H3}}{\rho_{H1}} = 1,09$. Ceci s'explique par le fait qu'au-dessus de 300 keV, les interactions entre le rayonnement et le matériau scintillant sont dominées par les effets Compton, dont la probabilité, comme expliqué dans le Chapitre I, paragraphe 4.3, dépend essentiellement de la densité du milieu de propagation.

La plage problématique, sur laquelle la valeur de Q est instable lorsque E_γ varie, concerne des ambiances gamma à compenser de basse énergie, en dessous de 200-300 keV. C'est la gamme énergétique dans laquelle les effets photoélectriques sont majoritaires. Or, ces effets dépendent fortement du numéro atomique effectif du milieu d'interaction ainsi que de l'énergie E_γ du rayonnement, comme indiqué dans le Chapitre I, paragraphe 4.2. Ce phénomène explique les disparités plus marquées entre les réponses des trois scintillateurs en présence de sources photoniques à basse énergie, aussi bien pour les raies simulées que pour l'exposition à l'américium 241. Toutefois, et en accord avec les résultats de simulation, l'écart entre les coefficients de compensation expérimentaux à 59,5 keV et à 662 keV est systématiquement et significativement réduit lorsque le scintillateur de compensation H1 est remplacé par E2. Cette réduction s'explique bel et bien par le fait que le dopage au bismuth rapproche le numéro atomique effectif de E2 de celui de H3. A titre d'exemple, en retenant les comptages réalisés sur la plage F_1 (Figures III.19 et III.22) :

$$Q_{H3/H1}(59,5 \text{ keV}) - Q_{H3/H1}(662 \text{ keV}) = 11,8 \text{ contre}$$

$$Q_{H3/E2}(59,5 \text{ keV}) - Q_{H3/E2}(662 \text{ keV}) = 3,2.$$

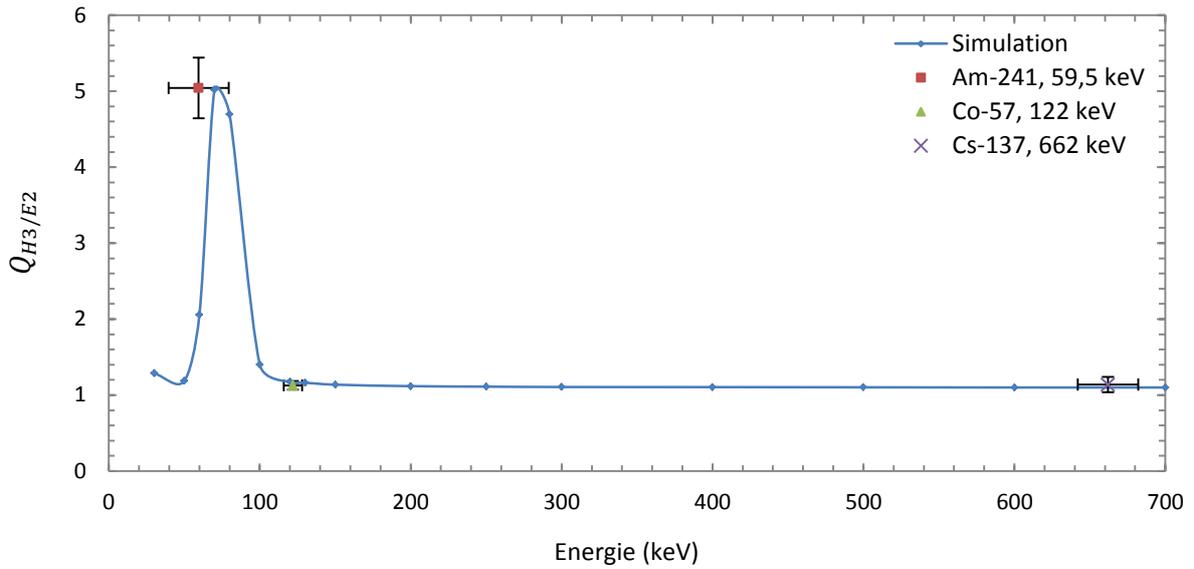


Figure III.18 : Coefficient de compensation $Q_{H3/E2}$ en fonction de l'énergie en comptage total.

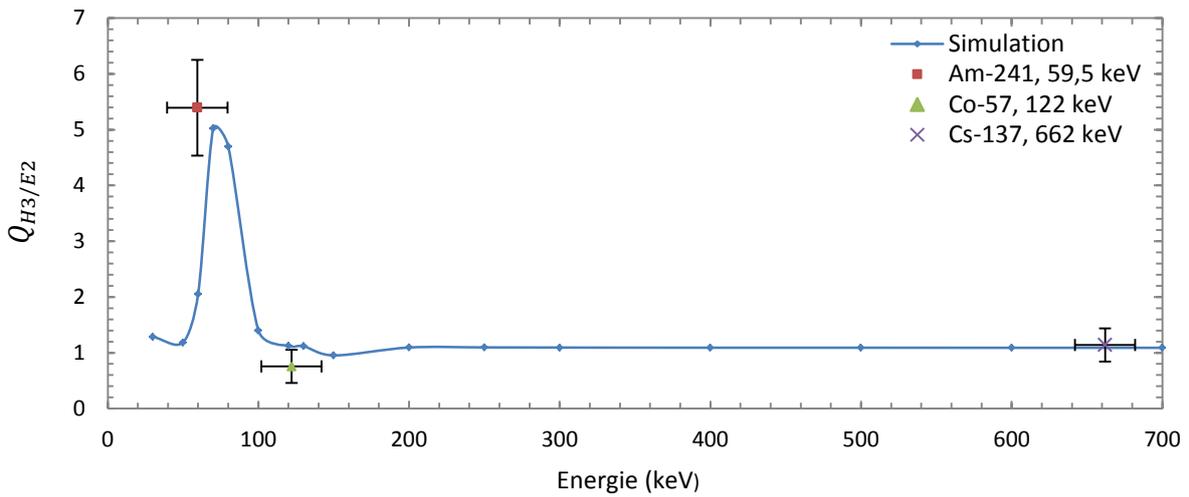


Figure III.19 : Coefficient $Q_{H3/E2}$ en fonction de l'énergie pour un comptage sur F_1 .

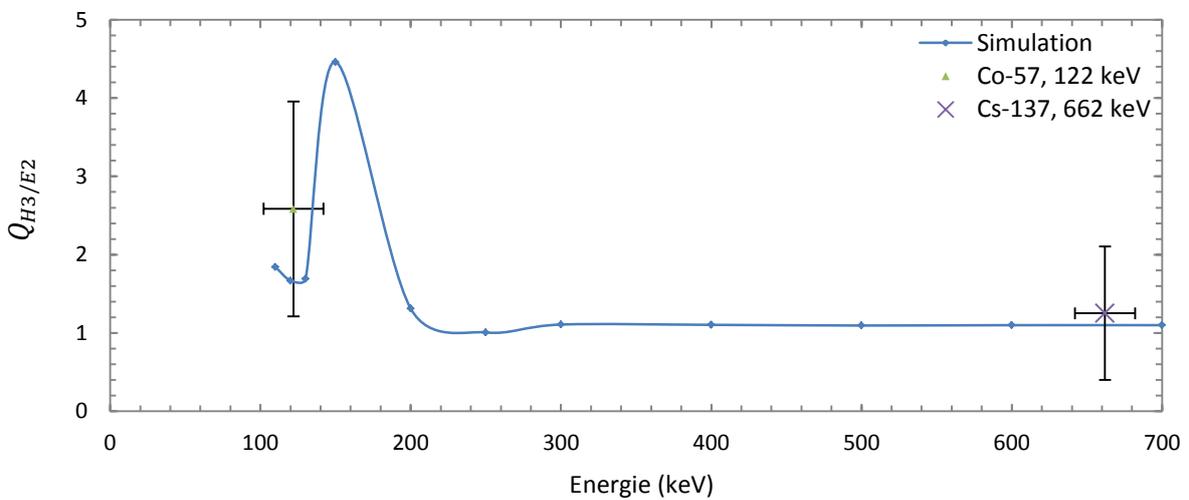


Figure III.20 : Coefficient $Q_{H3/E2}$ en fonction de l'énergie pour un comptage sur F_2 .

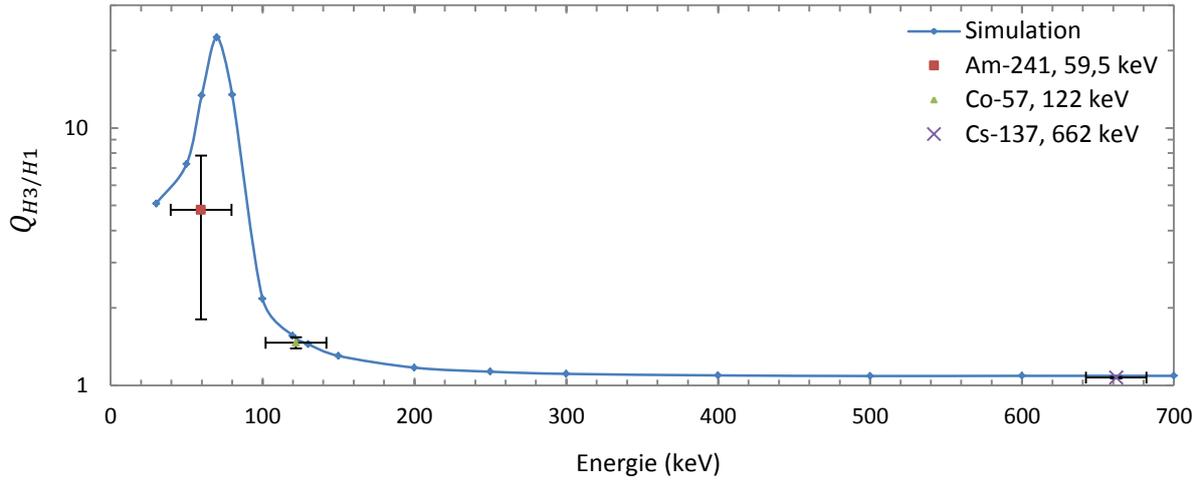


Figure III.21 : Coefficient de compensation $Q_{H3/H1}$ en fonction de l'énergie en comptage total.

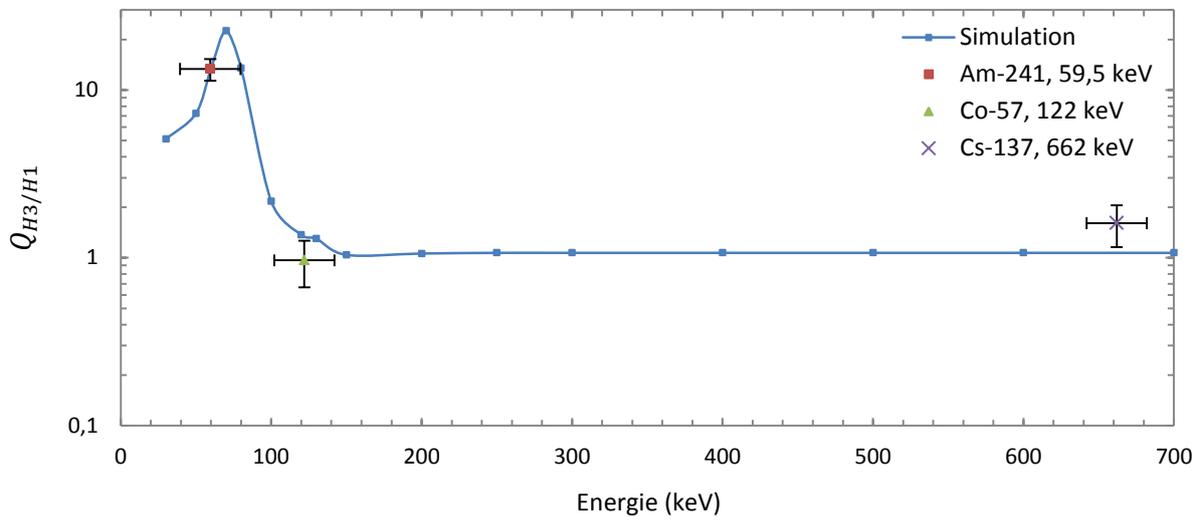


Figure III.22 : Coefficient $Q_{H3/H1}$ en fonction de l'énergie pour un comptage sur F_1 .

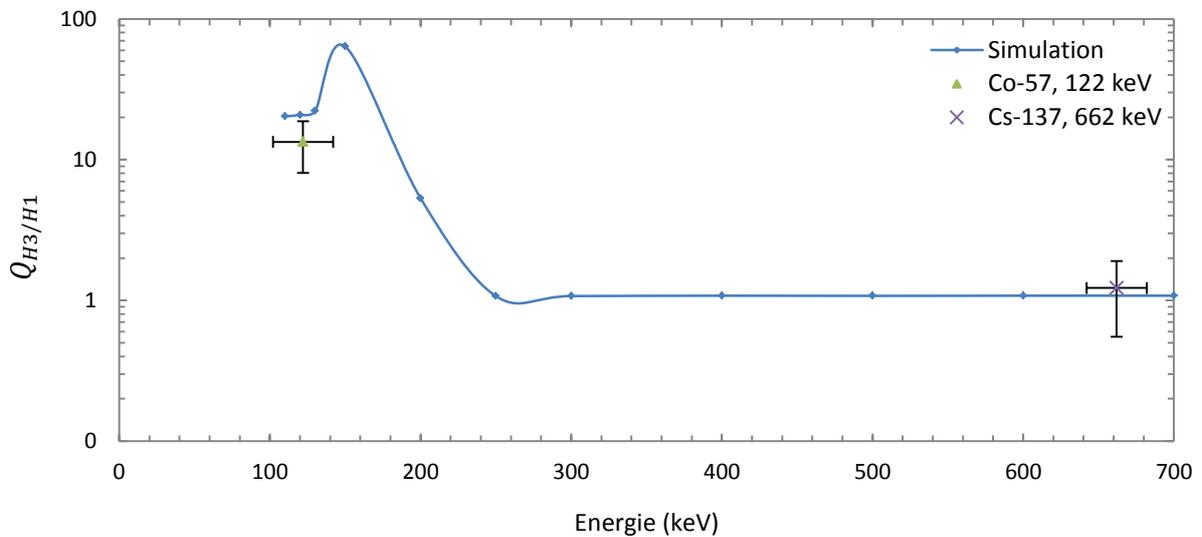


Figure III.23 : Coefficient $Q_{H3/H1}$ en fonction de l'énergie pour un comptage sur F_2 .

Sachant que la réalisation pratique d'une détection par compensation requiert la plus faible dispersion possible des valeurs prises par le coefficient de compensation, le scintillateur E2 jouera le rôle du scintillateur de compensation dans la suite de cette étude. En comparant la Figure III.19 à la Figure III.18, on constate que le comportement du schéma de compensation gamma sur F_1 est très proche de son comportement lorsque les coups sont sommés sur tout le spectre. Cette similitude s'observe aussi bien du point de vue de la distribution (maximum au voisinage de 80 keV) que de celui des écarts entre valeur maximale et valeur limite. Cette similarité de comportement sera confirmée à la faveur des résultats expérimentaux présentés dans la Partie X.

Une ambiance photonique réelle, sur le fond de laquelle on cherche à détecter la présence d'une émission neutronique, peut être modélisée par une combinaison linéaire de raies mono-énergétiques. Le test d'hypothèse gouvernant la détection neutronique doit être réglé de façon à être opérationnel dans les ambiances photoniques les plus variées. Il est dès lors impératif, dans l'étape de conception, de disposer d'autant de degrés de liberté que possible pour l'étude de la dépendance du coefficient $Q_{H3/E2}$ en fonction de la distribution énergétique du bruit de fond photonique. Le nombre limité de sources radioactives disponibles au laboratoire et le bon accord entre les résultats expérimentaux et ceux des simulations justifient le choix de fonder sur ces derniers le paramétrage du schéma de détection, présenté dans la partie suivante.

PARTIE VII : Estimation du coefficient de compensation pour la détection et le comptage neutroniques

1. Estimation du coefficient de compensation de la réponse photonique sans a priori sur la distribution énergétique du bruit de fond

Supposons d'abord qu'aucun *a priori* n'existe sur la distribution énergétique du bruit de fond gamma. Nous devons alors utiliser des paramètres « enveloppes » pour la compensation de ce fond, estimés à partir des distributions $Q = f(E_\gamma)$ sur les différentes plages de comptage. Nous allons extraire de ces distributions des valeurs moyennes du coefficient de compensation de l'ambiance photonique, ainsi que des écarts-types qui encadrent ces moyennes.

Une ambiance est simulée au moyen du code MCNPX2.6.0 sous la forme d'une source sphérique isotrope placée à une distance $d = 10$ cm du centre de masse des scintillateurs. Nous faisons varier l'énergie de ce fond gamma par pas discrets :

- $E_\gamma = \{30 \text{ keV} ; 50 \text{ keV} ; 80 \text{ keV} ; 100 \text{ keV} ; 130 \text{ keV} ; 150 \text{ keV} ; 200 \text{ keV} ; 300 \text{ keV} ; 500 \text{ keV} ; 1000 \text{ keV} ; 1500 \text{ keV} ; 2000 \text{ keV}\}$ pour la comparaison des taux de dépôt en comptage total et sur F_1 ;
- $E_\gamma = \{130 \text{ keV} ; 150 \text{ keV} ; 200 \text{ keV} ; 300 \text{ keV} ; 500 \text{ keV} ; 1000 \text{ keV} ; 1500 \text{ keV} ; 2000 \text{ keV}\}$ pour l'évaluation des taux de dépôt d'énergie sur F_2 .

Un jeu de simulations préliminaire a permis d'établir que pour les échantillons de faible volume modélisés, l'effet d'anisotropie est négligeable devant la dépendance du coefficient vis-à-vis de l'énergie du rayonnement photonique incident, ce qui justifie le choix d'une

géométrie sphérique pour l'estimation du coefficient espéré. En l'absence d'*a priori* sur la distribution du bruit de fond résultant, chaque raie est pondérée d'un facteur déduit d'une hypothèse de distribution uniforme sur [0 ; 2 MeV], et la combinaison linéaire obtenue forme la résultante décrivant l'ambiance photonique à compenser.

Nous notons : N_γ le nombre de raies mono-énergétiques simulées ; $E_{\gamma,i}$ pour i variant entre 1 et N_γ l'énergie de chacune de ces raies ; et $\Delta E_{\gamma,i} = E_{\gamma,i} - E_{\gamma,i-1}$ le coefficient de pondération associé à chacune de ces dernières sous une hypothèse de loi uniforme (par construction, $\Delta E_{\gamma,1} = 0$). L'espérance mathématique \bar{Q} et l'écart-type $\sigma_{E_\gamma}(\bar{Q})$ associés au coefficient de compensation sont dès lors estimés selon les Equations (III.6) et (III.7) respectivement :

$$\bar{Q} = \frac{\sum_{i=2}^{N_\gamma} Q(E_{\gamma,i}) \cdot \Delta E_{\gamma,i}}{\sum_{i=2}^{N_\gamma} \Delta E_{\gamma,i}} \quad (\text{III. 6})$$

$$\sigma_{E_\gamma}(\bar{Q}) = \sqrt{\frac{\sum_{i=2}^{N_\gamma} (Q(E_{\gamma,i}) - \bar{Q})^2 \cdot \Delta E_{\gamma,i}}{\sum_{i=2}^{N_\gamma} \Delta E_{\gamma,i}}} \quad (\text{III. 7})$$

Les paramètres utiles pour la compensation du bruit de fond photonique et obtenus par évaluation des taux de dépôts sur les trois plages énergétiques d'intérêt sont présentés dans le Tableau III.4.

Paramètre	Comptage total	F_1	F_2
\bar{Q}	1,16	1,12	1,14
$\sigma_{E_\gamma}(\bar{Q})$	0,48	0,49	0,42

Tableau III.4 : Coefficients de compensation espérés et écarts-types associés en comptage total, et sur les plages d'énergie F_1 et F_2 .

La valeur à convergence du coefficient de compensation photonique, atteinte pour $E_\gamma > 200$ keV dans les résultats de simulation présentés sur les Figures III.18, III.19 et III.20, vaut respectivement 1,10, 1,09 et 1,10 en comptage total, sur F_1 et sur F_2 . Il en est de même pour les coefficients expérimentaux calculés pour l'irradiation au césium 137 sur ces trois figures. Or, ces valeurs tombent dans l'encadrement $\bar{Q} \pm 0,1\sigma_{E_\gamma}(\bar{Q})$ sur chacune des trois plages d'intérêt. Ce point établit que, pour tout bruit de fond gamma d'énergie $E_\gamma > 200$ keV, les paramètres « enveloppes », définis sans *a priori* sur le spectre gamma à soustraire, représentent fidèlement l'opération de compensation à effectuer.

2. Estimation du coefficient de compensation de la réponse photonique avec un *a priori* sur la distribution énergétique du bruit de fond

Les notations du paragraphe précédent sont conservées dans ce paragraphe. Supposons à présent qu'un *a priori* est disponible sur la distribution énergétique du bruit de fond photonique. Il est alors possible d'affecter un coefficient $T(E_{\gamma,i})$ à chacune des raies $E_{\gamma,i}$ simulées, ce dernier coefficient représentant l'intensité relative de la raie au sein de la

distribution sous-jacente au bruit de fond. En corrélant la distribution $T(E_{\gamma,i})$ avec le spectre $Q(E_{\gamma,i})$, un coefficient de compensation prenant en compte la connaissance *a priori* du bruit de fond photonique peut être calculé :

$$\bar{Q} = \frac{\sum_{i=2}^{N_{\gamma}} Q(E_{\gamma,i}) \cdot T(E_{\gamma,i}) \cdot \Delta E_{\gamma,i}}{\sum_{i=2}^{N_{\gamma}} \Delta E_{\gamma,i}} \quad (\text{III. 8})$$

3. Estimation du coefficient de compensation de la réponse neutronique rapide

Les neutrons rapides, auxquels sont sensibles aussi bien le scintillateur 1 que le scintillateur 2, font partie du bruit de fond à soustraire en temps réel. Une ambiance neutronique rapide est simulée au moyen du code MCNPX2.6.0 sous la forme d'une source sphérique isotrope placée à une distance $d = 10$ cm du centre de masse des scintillateurs modélisés H3 et E2 successivement. Dans les applications sécuritaires, nous visons la détection d'une source de fission spontanée, dont le spectre en énergie typique est représenté par l'émission du californium 252. Le spectre d'émission neutronique du californium 252, conventionnellement utilisé pour la qualification des détecteurs neutroniques et disponible au sein du laboratoire, est reproduit sur la Figure III.24, tirée de la référence [III.28].

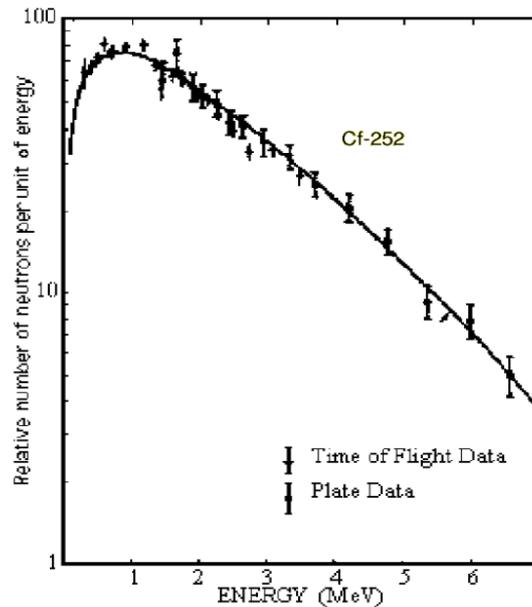


Figure III.24 : Spectre de l'émission neutronique du californium 252 (Anderson *et al.*, 1999).

Ce spectre peut être modélisé par une distribution de Watt, qui associe à chaque énergie d'un neutron de fission E_n , via le jeu de paramètres (C, a, b) , une valeur de densité de probabilité d'émission $f(E_n)$ sous la forme :

$$f(E_n) = C \cdot \exp\left(-\frac{E_n}{a}\right) \cdot \sinh(\sqrt{bE_n}) \quad (\text{III. 9})$$

où $C = \frac{2}{a^2 \sqrt{\pi} \exp\left(\frac{ab\sqrt{b}}{4}\right)}$ est la constante de normalisation. Les paramètres (a, b) caractérisant le spectre de Watt du californium 252 sont fournis par la littérature [III.29] : $a = 1,025$ MeV

et $b = 2,926 \text{ MeV}^{-1}$. L'espérance mathématique de l'énergie d'un neutron émis par fission spontanée est ainsi calculée :

$$\widehat{E}_n = \frac{a(ab + 6)}{4} = 2,3 \text{ MeV} \quad (\text{III. 10})$$

Les taux de dépôts par neutron émis sont évalués au moyen du tally 8 de MCNPX2.6.0, auquel on adjoint le tally 6 muni de l'option Pulse Height Light (PHL) pour le calcul du spectre des protons de recul généré par le terme source neutronique. Ce dernier est généré à la fois pour l'espérance seule du spectre de Watt, et pour l'ensemble du spectre entre 25 meV et 20 MeV. Des valeurs identiques pour le coefficient de compensation des réponses à ces deux termes sources dans H3 et E2 sont calculées en comptage total, égales à $Q_n = 1,15$.

Cette dernière valeur admet une interprétation physique immédiate. L'interaction des neutrons rapides du spectre de fission avec le milieu de propagation est très largement dominée par les premières diffusions élastiques des neutrons avec les atomes d'hydrogène. Le dépôt d'énergie qui en résulte procède de l'ionisation du milieu par les protons de recul générés au cours de ces diffusions. Ainsi, il est attendu que l'intensité de cette signature d'ionisation soit sensiblement proportionnelle au nombre d'atomes d'hydrogène présents dans la matrice. Ce nombre d'atomes est lui-même proportionnel au produit de la proportion en masse d'hydrogène et de la densité du milieu. Or les scintillateurs H3 et E2 présentent une proportion massique d'hydrogène et une densité qui valent respectivement $\%m_{1\text{H},\text{H3}} = 7,6 \%$ et $\rho_{\text{H3}} = 1,2 \text{ g. cm}^{-3}$, et $\%m_{1\text{H},\text{E2}} = 7,1 \%$ et $\rho_{\text{E2}} = 1,1 \text{ g. cm}^{-3}$, si bien que le quotient devient :

$$\frac{\%m_{1\text{H},\text{H3}} \cdot \rho_{\text{H3}}}{\%m_{1\text{H},\text{E2}} \cdot \rho_{\text{E2}}} = 1,17 \quad (\text{III. 11})$$

Cette valeur est compatible à 2 % d'erreur relative près avec la valeur estimée pour le coefficient Q_n par simulation.

Le coefficient Q_n évalué en comptage total tombe en outre dans l'intervalle d'incertitude $\bar{Q} \pm 0,1\sigma_{E_\gamma}(\bar{Q})$ tel qu'il a été défini au paragraphe 1. La compensation d'un spectre de fission spontanée, générateur de protons de recul dans les deux scintillateurs, est ainsi assurée en comptage total avec les mêmes paramètres que la compensation d'une ambiance photonique sans *a priori* sur la distribution du bruit de fond.

L'estimation du coefficient de compensation Q_n sur les plages de comptage F_1 et F_2 implique la connaissance de l'extinction de fluorescence sur la trace des protons de recul dans chacun des deux scintillateurs dopés. Cette connaissance nécessite d'avoir accès à la valeur de la constante de Birks associée à l'un et l'autre des milieux scintillants, ce qui n'a pu être réalisé expérimentalement dans le cadre de cette thèse. On se place toutefois, dans la suite de cette étude, en présence d'un modérateur de neutrons convenablement dimensionné (10 cm de polyéthylène). En sortie d'un tel modérateur, la contribution de la signature des neutrons rapides dans le bruit à compenser tend à être négligeable devant celle du rayonnement photonique, ce que nous illustrerons quantitativement dans la Partie X.

PARTIE VIII : Dimensionnement du système à deux capteurs

1. Isolation des deux scintillateurs

La mise en œuvre pratique, à partir des deux scintillateurs de détection et de compensation, d'un système de comptage neutronique par compensation requiert l'isolation des deux voies de mesure. Cette isolation s'effectue, lorsque les deux scintillateurs sont adjacents, par l'introduction d'une épaisseur de matériau atténuateur entre les capteurs. Le plomb, en raison de son numéro atomique élevé ($Z = 82$) ainsi que de sa grande masse volumique ($\rho = 11,35 \text{ g.cm}^{-3}$), représente un excellent candidat pour l'atténuation du rayonnement photonique. La littérature fait état d'une longueur de demi-atténuation $l_{1/2} = 0,7 \text{ mm}$ à 200 keV et $l_{1/2} = 0,9 \text{ cm}$ à 1 MeV . Les courbes présentées dans la Partie IV montrent que la valeur de 1 MeV constitue un plafond pour l'énergie significativement déposée au sein des scintillateurs dopés de faible volume. C'est donc la seconde longueur de demi-atténuation qui $l_{1/2} = 0,9 \text{ cm}$ qui est retenue pour le dimensionnement.

L'atténuation d'un rayonnement photonique d'intensité I_0 par une épaisseur x de matériau atténuateur est modélisée par une loi de décroissance exponentielle paramétrée par un coefficient d'atténuation $\mu(E)$, fonction de l'énergie du rayonnement incident :

$$I(x) = I_0 e^{-\mu(E)x} \quad (\text{III. 12})$$

En l'absence de contrainte portant sur l'encombrement et la portativité du système à ce stade de l'étude du principe, l'épaisseur d est déterminée de façon à garantir une atténuation de 97,5 % de l'intensité du rayonnement photonique que l'on souhaite isoler. Cette valeur correspond à la référence utilisée pour le dimensionnement des briques de plomb en radioprotection. Le calcul donne :

$$l_{1/40}(1 \text{ MeV}) = \frac{\ln(40)}{\ln(2)} \cdot l_{1/2}(1 \text{ MeV}) = 5,3 \cdot l_{1/2}(1 \text{ MeV}) \quad (\text{III. 13})$$

L'application numérique donne $l_{1/40}(1 \text{ MeV}) = 4,8 \text{ cm}$, valeur retenue dans la suite de cette partie concernant l'étude par simulation du système assemblé.

2. Contribution de la signature d'une capture radiative dans le scintillateur de détection au comptage affiché par le scintillateur de compensation

L'enjeu central de l'isolation des deux voies de mesure est de limiter le nombre de rayonnements gamma prompts générés dans le scintillateur de détection suite à la capture d'un neutron thermique et interagissant à l'intérieur du scintillateur de compensation. On estime par simulation Monte Carlo le rapport des taux de dépôts du terme source représentatif d'une désexcitation radiative dans le scintillateur 1 (2 %m de gadolinium), et le scintillateur 2 (0,8 %m de bismuth). Les deux scintillateurs sont simulés en configuration adjacente et séparés par un bloc de hauteur $h = 8 \text{ mm}$, égale à celle des capteurs, et d'épaisseur $x = 4,8 \text{ cm}$ déterminée dans le paragraphe précédent. L'émission du terme source est isotrope et homogène à l'intérieur du scintillateur de détection. Les taux de dépôt énergétique de ce terme source dans les scintillateurs de détection et de compensation, respectivement notés $\tau_{D,H3}$ et

$\tau_{D,E2}$, sont calculés au moyen du tally 8 de MCNPX. Les valeurs du quotient de ces taux $Q_D = \frac{\tau_{D,H3}}{\tau_{D,E2}}$, sur les plages d'intérêt, sont présentées dans le Tableau III.5.

Sur les trois plages de comptage considérées, la contamination du scintillateur de compensation par le scintillateur de détection ou *cross-talk* est négligeable pour l'épaisseur d'atténuateur dimensionnée. Notons également que le rapport du cross-talk sur le signal, de l'ordre de 0,01 %, obtenu dans cette configuration très restrictive, est suffisamment faible pour autoriser une réduction de l'épaisseur de plomb en vue d'accroître la compacité de l'assemblage.

	Spectre total	F_1	F_2
Q_D	6.10^4	1.10^4	9.10^3

Tableau III.5 : Quotients des taux de dépôt énergétique du terme source dans les scintillateurs de détection et de compensation.

3. Validation des coefficients de compensation de l'activité photonique et neutronique rapide après assemblage des deux capteurs et de l'atténuateur

Nous cherchons enfin à vérifier que l'estimation des coefficients de compensation portant sur la soustraction de l'activité photonique et neutronique rapide n'est pas biaisée lorsque les scintillateurs sont assemblés et séparés par l'épaisseur atténuatrice dimensionnée ci-dessus. A cette fin, nous générons à nouveau une ambiance sphérique isotrope distante de $d = 10$ cm du barycentre géométrique du système assemblé (soit le centre de la brique parallélépipédique rectangle de plomb). L'ensemble des tests effectués valide cette absence de biais. Cette dernière signifie que les diffusions multiples de photons ou de neutrons rapides dans les trois briques du système (scintillateur de détection, atténuateur, scintillateur de compensation) ont un impact négligeable sur la mesure. Il en va de même pour les électrons secondaires générés dans un scintillateur et traversant l'atténuateur pour interagir avec le second capteur.

En d'autres termes, pour la configuration choisie des deux voies et l'isolation dimensionnée, il n'y a pas d'effet d'écran significatif de l'une des briques fondamentales du système assemblé. Il n'existe pas non plus de contamination significative de l'une des voies de mesure par l'autre. A titre d'illustration, le Tableau III.6 présente la comparaison des coefficients de compensation $Q_{H3/E2}$ calculés en présence d'une raie de césium 137 à $E_\gamma = 662$ keV, pour les deux scintillateurs simulés séparément, puis assemblés avec l'atténuateur.

Coefficient Q	Spectre total	F_1	F_2
Séparément	1,10	1,09	1,10
Après assemblage	1,10	1,10	1,10

Tableau III.6 : Comparaison des coefficients de compensation pour les scintillateurs simulés séparément et assemblés en présence d'une raie de césium 137 à $E_\gamma = 662$ keV.

Les valeurs prises par le coefficient Q pour les capteurs simulés séparément ou juxtaposés diffèrent au plus d'une erreur relative de 1 %. Sur les trois plages de comptage, les valeurs

déterminées sont une fois de plus compatibles à $\pm 0,1\sigma_{E_\gamma}(\bar{Q})$ avec l'espérance \bar{Q} calculée au paragraphe 1 de la Partie VII pour un rayonnement photonique uniformément distribué.

Il ressort des résultats de simulations présentés ci-dessus que les réponses relatives des scintillateurs H3 et E2 peuvent être indifféremment étudiées séparément et successivement, ou côte à côte et simultanément, à condition d'isoler les deux scintillateurs. Pour des raisons de simplicité de mise en œuvre, le choix a, par conséquent, été fait d'évaluer la sensibilité aux neutrons thermiques, ainsi que la robustesse de la compensation gamma dans divers environnements radioactifs, en irradiant successivement et séparément H3 et E2.

PARTIE IX : Lissage non linéaire et test d'hypothèse pour la détection neutronique

Cette partie présente la simulation du traitement en ligne des signaux de comptage sur les voies de détection et de compensation tel qu'il doit être réalisé au niveau du logiciel de l'unité (9) portée sur la Figure III.1. A partir des valeurs de comptage intégrées sur une plage temporelle T , les taux de comptage espérés sur la voie 1 (H3) et la voie 2 (E2), respectivement notés λ_{H3} et λ_{E2} , sont calculés comme suit :

$$\lambda_{H3} = \frac{N_{H3}}{T} \quad (\text{III. 14})$$

$$\lambda_{E2} = \frac{N_{E2}}{T} \quad (\text{III. 15})$$

Afin de simuler une mesure de comptage réaliste, des trames temporelles de comptages affichés N_{H3}^t et N_{E2}^t sont créées avec un pas temporel $\Delta t = 100$ ms (compatible avec une acquisition en temps réel des signaux bruts) sur chacune des deux voies au moyen d'un tirage dans une loi de probabilité poissonnienne, notée \wp , à l'aide du logiciel commercial Matlab® [III.30]. Cette dernière fonction génère aléatoirement tous les Δt deux nombres N_{H3}^t et N_{E2}^t . Chacun de ces nombres est rangé dans la trame qui lui correspond. La génération des comptages instantanés suit une distribution probabiliste de type Poisson, paramétrée pour chaque voie par λ_{H3} et λ_{E2} comme explicité dans :

$$\forall t \in [0 ; T], N_{H3}^t \sim \wp(\lambda_{H3} \cdot \Delta t) \quad (\text{III. 16})$$

$$\forall t \in [0 ; T], N_{E2}^t \sim \wp(\lambda_{E2} \cdot \Delta t) \quad (\text{III. 17})$$

Avec un pas temporel aussi faible, la variance brute des signaux tous les Δt sur les voies 1 et 2 peut avoir tendance à excéder l'amplitude du signal lui-même, en particulier pour les faibles taux de comptage attendus avec des échantillons de petites dimensions. Or la détection neutronique, par conception, n'a lieu que lorsque la différence pondérée de ces signaux est significativement supérieure au niveau de fluctuations statistiques autour de cette différence. Ainsi, pour que la sensibilité attachée à la détection soit satisfaisante, ce niveau de fluctuations doit être réduit aussi drastiquement que possible. Ce besoin impose l'application d'un filtrage (ou lissage) adapté au signal recueilli sur chacune des voies, sous la forme d'une moyenne glissante, avant la mise en œuvre d'un test d'hypothèse pour la détection neutronique. L'algorithme de lissage des signaux nucléaires présenté ci-dessous permet, de

surcroît, d'adapter la taille de la fenêtre glissante en fonction des variations d'activités enregistrées.

1. Lissage non linéaire des signaux de comptage sur les deux voies

Le développement d'un algorithme de lissage *non linéaire* pour les mesures de comptage en ligne s'impose, dans le cadre applicatif de ces travaux, en vue d'améliorer la précision des estimées de taux de comptages recueillis en sorties des voies 1 et 2, tout en autorisant la prise en compte rapide d'un changement abrupt de radioactivité. En effet, dans les applications visant à détecter la présence de matière nucléaire, le porteur potentiel, piéton ou véhicule, est généralement en mouvement, et la détection doit être opérée sur la base d'une différence de taux de comptage entre la voie de détection et la voie de compensation estimée en temps contraint.

Le principe du lisseur est fondé sur l'adaptation de la taille d'une fenêtre de valeurs de comptage retenue pour l'estimation de l'activité en fonction de la détection ou de l'absence de détection d'un changement abrupt de la distribution du signal, décrite par une statistique poissonnienne. La détection ou l'absence de détection d'un changement de radioactivité résultent de l'acceptation ou du rejet d'une hypothèse de loi décrite ci-après. La validation de ce lisseur, dit de test de significativité autour du centre (*Centered Significance Test* en anglais, abrégé *CST*), ainsi que sa comparaison à l'état de l'art, sont décrites exhaustivement dans la référence [III.31]. L'algorithme décrit par le lisseur *CST* peut être schématiquement décomposé en quatre étapes, illustrées ci-dessous à partir des signaux recueillis en sortie de la voie 1 (H3).

1.1. Lecture et rangement des données

Durant chaque intervalle de temps élémentaire Δt , les événements sont comptés. A la fin, notée t , d'un intervalle de comptage donné, le comptage $N_{H3,1}^t$ est enregistré à l'entrée d'une mémoire-tampon contenant M cases. Avant toute nouvelle acquisition, l'ensemble des valeurs préalablement rangées est décalé à droite ainsi qu'indiqué ci-dessous :

$$\forall t \in [0,1 ; T], \forall j \in [2 ; M], N_{H3,j}^t = N_{H3,j}^{t-\Delta t} \quad (\text{III. 18})$$

1.2. Calcul du vecteur d'estimées

Un vecteur $\widehat{\Lambda}_{H3}^t$ est ensuite construit, comme indiqué dans l'Equation (III.19), dans lequel sont rangées les estimées notées $\hat{\lambda}_{H3,i}^t$ du taux de comptage, chacune étant calculée sur une fenêtre d'échantillons acquis de taille i . La taille de la fenêtre i gouverne le compromis entre le temps de réponse du lisseur utilisé comme filtre temporel (fonction croissante de i) et la valeur de la variance réduite de l'estimée (fonction décroissante de i). L'opération fondamentale du filtre consiste à déterminer, à chaque instant t , la valeur de i garantissant le meilleur compromis. Le scalaire l^t représente à chaque instant t le nombre maximal d'échantillons retenus pour le calcul de l'estimée.

$$\forall t \in [0,1 ; T], \forall i \in [1 ; l^t], \hat{\lambda}_{H3,i}^t = \frac{1}{i\Delta t} \sum_{j=1}^i N_{H3,j}^t \quad (\text{III. 19})$$

1.3. Test d'hypothèse

Soit λ_{H3}^t le taux de comptage vrai, à estimer, à l'instant d'acquisition t . La détection d'un changement abrupt du niveau de radioactivité, par exemple dû au passage d'une source de rayonnements, prend la forme d'un test d'hypothèse classique avec :

- une hypothèse nulle \mathbf{H}_0 représentant l'absence de changement de radioactivité ;
- l'hypothèse alternative \mathbf{H}_1 un changement de radioactivité.

Si γ_0 est le niveau de taux comptage initial, γ_1 un potentiel niveau de comptage différent résultant d'un changement de radioactivité, et ω^t le numéro d'échantillon acquis pour lequel un tel changement aurait dû être détecté, les hypothèses du test peuvent être réécrites :

$$\mathbf{H}_0 : \forall i \in [0 ; l^t], \lambda_{H3}^{t-i\Delta t} = \gamma_0 \quad (\text{III. 20})$$

$$\begin{aligned} \mathbf{H}_1 : \exists \omega^t \in [0 ; l^t] / \forall i \in [0 ; \omega^t], \lambda_{H3}^{t-i\Delta t} = \gamma_0 \\ \forall i \in [\omega^t ; l^t], \lambda_{H3}^{t-i\Delta t} = \gamma_1 \quad (\text{III. 21}) \end{aligned}$$

Afin de déterminer, à l'instant t , la position d'un changement significatif de radioactivité détecté à l'intérieur de la fenêtre d'intégration l^t délimitée, chaque estimée $\hat{\lambda}_{H3,i}^t$ est comparée à l'estimée $\hat{\lambda}_{H3,l^t}^t$. Un vecteur de variation est construit, dont les composantes sont calculées comme suit :

$$\forall i \in [1 ; l^t], \Delta \hat{\lambda}_{H3,i}^t = \hat{\lambda}_{H3,l^t}^t - \hat{\lambda}_{H3,i}^t \quad (\text{III. 22})$$

La variance empirique de cette différence est calculée comme la somme des variances de deux variables indépendantes suivant une statistique poissonnienne :

$$\sigma^2(\Delta \hat{\lambda}_{H3,i}^t) = \sigma^2(\hat{\lambda}_{H3,l^t}^t) + \sigma^2(\hat{\lambda}_{H3,i}^t) = \frac{\hat{\lambda}_{H3,l^t}^t}{l^t} + \frac{\hat{\lambda}_{H3,i}^t}{i} \quad (\text{III. 23})$$

Si la radioactivité est constante, comme la différence de deux estimées de taux de comptage sous le même taux vrai, la valeur absolue $|\Delta \hat{\lambda}_{B,i}^t|$ doit être compatible avec zéro. Au contraire, tout changement dans la radioactivité λ_{H3}^t devrait conduire au rejet de l'hypothèse \mathbf{H}_0 , c'est-à-dire à une valeur significativement non nulle de $|\Delta \hat{\lambda}_{B,i}^t|$. On introduit la notation $\alpha = P(\mathbf{H}_1 | \mathbf{H}_0)$ pour désigner la probabilité de détection erronée d'un changement de radioactivité et t_α le facteur d'élargissement du test d'hypothèse. Une distribution f associe une probabilité de fausse détection à chaque valeur de t_α : $\alpha = f(t_\alpha)$. En définitive, le test d'hypothèse pour la détection d'un changement de radioactivité à l'instant d'acquisition t prend la forme explicite suivante :

$$\text{Si : } \exists i \in [1 ; l^t], |\Delta \hat{\lambda}_{H3,i}^t| > t_\alpha \sigma(\Delta \hat{\lambda}_{H3,i}^t) \quad (\text{III. 24})$$

Alors : \mathbf{H}_1 est acceptée avec un niveau de confiance $1 - \alpha$.

1.4. Adaptation de la fenêtre pour le calcul de l'estimée

Dans cette dernière étape de l'algorithme de filtrage, la taille de la fenêtre d'échantillons sur laquelle est réalisée l'estimation du taux de comptage est adaptée en fonction du résultat du test d'hypothèse.

Dans le cas où l'hypothèse \mathbf{H}_0 est acceptée pour toutes les cases $i \in [0 ; l^t]$, aucun changement abrupt de radioactivité ne doit être pris en compte par le filtre. La précision de l'estimée peut alors être améliorée en étendant le nombre de cases allouées à l'acquisition suivante : $l^{t+\Delta t} = l^t + 1$.

Si, *a contrario*, \mathbf{H}_1 est acceptée pour le taux de comptage rangé à ω^t , un changement d'activité significatif est détecté. La fenêtre d'estimation doit dans ce cas être réduite, de façon à préserver l'information temporelle portant sur l'arrivée du changement abrupt, et rejeter l'information temporelle antérieure à cette arrivée, devenue obsolète. Le nombre d'échantillons, c'est-à-dire de cases mémoire, alloués à l'estimation du taux de comptage est par conséquent réduit d'un nombre F , égal au nombre de cases vérifiant l'Equation (III.24) : $l^{t+\Delta t} = l^t - F$.

Les estimées $\widehat{\lambda}_{H3}^t$, $\widehat{N}_{H3}^t = \widehat{\lambda}_{H3}^t \cdot \Delta t$ et $\sigma^2(\widehat{\lambda}_{H3,l^t}^t) = \frac{\widehat{\lambda}_{H3,l^t+\Delta t}^t}{l^{t+\Delta t}}$ sont finalement recueillies en sortie du lisseur comme, respectivement : le taux de comptage lissé, la valeur de comptage lissé et la variance réduite du taux de comptage lissé à l'instant t .

Une étude préliminaire a permis d'établir la convergence du lissage en présence de taux de comptage espérés supérieurs à 0,1 cps pour une taille de mémoire-tampon M supérieure à 100 échantillons, ainsi qu'une plage d'optimisation du facteur t_α comprise entre 1,5 et 1,7. Sur la base de cette étude, le facteur d'élargissement a été fixé à $t_\alpha = 1,65$.

L'algorithme présenté dans ce paragraphe permet d'optimiser dynamiquement la taille de la fenêtre de lissage des comptages sur chacune des voies de mesure au regard du compromis entre la précision des estimées et le temps de réponse du système. Dans la reconstitution de mesures fondées sur la compensation du scintillateur H3 par le scintillateur E2, décrites dans la partie suivante, les ambiances radioactives sont d'espérance mathématique constante sur la totalité du temps d'acquisition (sources immobiles, bruit de fond stable). La minimisation du temps de réponse n'entre donc pas en compte dans le réglage de la taille de la fenêtre de lissage. Etant donné le faible volume des scintillateurs, et donc de leur faible sensibilité attendue, la plus large fenêtre de lissage a été sélectionnée de façon à réduire le plus possible les fluctuations statistiques relativement à l'amplitude du signal. Le fenêtre de lissage sera par conséquent égale à la totalité du temps d'acquisition T , et ce dernier seulement borné de façon à se placer dans un cadre réaliste, où le temps de réponse doit être de l'ordre de grandeur de la minute.

2. Test d'hypothèse pour la détection neutronique

Soient :

- \widehat{N}_{H3}^t et \widehat{N}_{E2}^t les valeurs de comptage lissées en sortie du lisseur *CST* sur les voies 1 et 2 respectivement ;

- $\sigma^2(\widehat{N}_{H3}^t)$ et $\sigma^2(\widehat{N}_{E2}^t)$ les variances réduites associées à \widehat{N}_{H3}^t et \widehat{N}_{E2}^t en sortie du lisseur ;
- \bar{Q} et $\sigma_{E\gamma}(\bar{Q})^2$ respectivement le coefficient de compensation moyen calculé sans *a priori* sur le bruit de fond photonique et la variance de ce dernier pour une distribution de l'ambiance uniforme entre 0 et 2 MeV ;
- $\bar{\bar{Q}}$ enfin le coefficient de compensation calculé avec un *a priori* sur la distribution en énergie du bruit de fond.

Ces notations sont condensées dans les équations suivantes :

$$[\widehat{N}_{H3}^t ; \sigma^2(\widehat{N}_{H3}^t)] = CST(N_{H3}^t) \quad (\text{III. 25})$$

$$[\widehat{N}_{E2}^t ; \sigma^2(\widehat{N}_{E2}^t)] = CST(N_{E2}^t) \quad (\text{III. 26})$$

Dans les études expérimentales de principe décrites par ce document, la détection des neutrons thermiques est fondée sur le résultat d'un test d'hypothèse. Ce choix est justifié par les applications de suivi d'activité en temps réel visées par nos travaux. En effet, les algorithmes retenus doivent être embarqués sur des circuits logiques reconfigurables. Ils se limitent, par conséquent, à des fonctions logiques simples : somme, différence, produit, comparateur.

L'estimée à l'instant t du taux de comptage attribué aux neutrons est notée \widehat{N}_n^t . L'opération de détection et de comptage neutroniques est le résultat d'un test d'hypothèse paramétré par un facteur d'élargissement noté t_K . De même que pour le test de décision intervenant dans le filtre non linéaire décrit ci-dessus, une distribution g associe un taux de détection neutronique erronée K à chaque valeur prise par t_K : $K = g(t_K)$. Selon qu'un *a priori* existe (Equation (III.27)) ou non (Equation (III.28)) sur la distribution du bruit de fond, le test de décision et le comptage neutronique sont décrits par :

$$\begin{aligned} \text{Si : } & \widehat{N}_{H3}^t - \bar{Q} \cdot \widehat{N}_{E2}^t > t_K \cdot \sqrt{\sigma^2(\widehat{N}_{H3}^t) + \bar{Q}^2 \cdot \sigma^2(\widehat{N}_{E2}^t) + \sigma_{E\gamma}^2(\bar{Q}) \cdot \widehat{N}_{E2}^t} \\ \text{Alors : } & \widehat{N}_n^t = \widehat{N}_{H3}^t - \bar{Q} \cdot \widehat{N}_{E2}^t \\ \text{Sinon : } & \widehat{N}_n^t = 0 \quad (\text{III. 27}) \end{aligned}$$

$$\begin{aligned} \text{Si : } & \widehat{N}_{H3}^t - \bar{\bar{Q}} \cdot \widehat{N}_{E2}^t > t_K \cdot \sqrt{\sigma^2(\widehat{N}_{H3}^t) + \bar{\bar{Q}}^2 \cdot \sigma^2(\widehat{N}_{E2}^t)} \\ \text{Alors : } & \widehat{N}_n^t = \widehat{N}_{H3}^t - \bar{\bar{Q}} \cdot \widehat{N}_{E2}^t \\ \text{Sinon : } & \widehat{N}_n^t = 0 \quad (\text{III. 28}) \end{aligned}$$

Les valeurs de \widehat{N}_n^t sont placées dans un vecteur temporel noté \widehat{N}_n^t . En divisant les comptages obtenus tous les Δt par le pas temporel, on construit un vecteur de taux de comptage instantanés attribués aux neutrons $\widehat{\lambda}_n^t$:

$$\widehat{\lambda}_n^t = \frac{\widehat{N}_n^t}{\Delta t} \quad (\text{III. 29})$$

L'information utile sur la mesure de comptage neutronique est donnée par la moyenne temporelle de ce vecteur de taux de comptage instantanés, notée $\widehat{\lambda}_n$, autour de laquelle est calculée une variance empirique $\sigma^2(\widehat{\lambda}_n)$ représentant la dispersion des taux de comptages instantanés autour de la moyenne.

PARTIE X : Résultats expérimentaux avec les scintillateurs plastiques H3 et E2

Afin de réaliser une première étude expérimentale de principe sur la base des échantillons synthétisés, les quatre mesures de comptage suivantes sont conduites, sur une durée d'acquisition $T = 180$ s (en limite supérieure du temps de réponse acceptable pour un détecteur de matière nucléaire ou un outil de radioprotection), sur H3 et E2 séparément :

- mesure de la radioactivité ambiante dans la salle de mesure, dite mesure de *bruit de fond* ;
- mesure en présence d'une source de *césium 137* d'activité $A_{137\text{Cs}} = 178$ kBq placée à une distance $d = 10$ cm de la surface du scintillateur le long de l'axe de symétrie de ce dernier ;
- mesure en présence d'une source de *californium 252* d'activité $A_{252\text{Cf}} = 1,2$ MBq avec une épaisseur $e = 10$ cm de matériau modérateur (Polyéthylène Haute Densité, abrégé PEHD) entre la source et le détecteur ;
- mesure en présence d'une source d'*américium 241* d'activité $A_{241\text{Am}} = 1$ kBq placée au contact du scintillateur.

La durée d'intégration choisie assure une précision relative des comptages intégrés sur la totalité du spectre comprise entre 0,5 % (césium 137, H3) et 5 % (bruit de fond, E2). Les taux de comptage nets (c'est-à-dire après soustraction du bruit de fond pour les trois dernières séries) moyens déduits sur chacune des voies λ_{H3} et λ_{E2} , calculés sur la totalité des spectres enregistrés (comptage total) et sur les plages d'énergie $F_1 = [20 \text{ keV} ; 100 \text{ keV}]$ et $F_2 = [100 \text{ keV} ; 200 \text{ keV}]$, sont portés dans le Tableau III.7 et servent de données d'entrée au code de simulation d'une mesure en continu présenté dans la Partie IX.

Plage d'énergie \ Mesure	Bruit de fond		Césium 137 (10 cm)		Californium 252 (+ 10 cm PEHD)		Américium 241 (contact)	
	H3	E2	H3	E2	H3	E2	H3	E2
Comptage total (cps)	2,3	0,8	308,5	271,0	83,6	48,8	8,5	1,8
F_1 (cps)	H3	E2	H3	E2	H3	E2	H3	E2
	2,0	0,5	127,9	110,1	48,7	26,3	7,1	1,5
F_2 (cps)	H3	E2	H3	E2	H3	E2	H3	E2
	0,1	0,0	59,5	41,1	10,1	4,5	0,4	0,2

Tableau III.7 : Taux de comptage moyens en coups par seconde (cps) évalués avec les échantillons H3 et E2 sur les plages d'intérêt.

1. Estimation de la sensibilité neutronique avec la source de californium 252 en l'absence de bruit de fond

La source scellée de californium 252 utilisée dans la mesure décrite ci-dessus est un émetteur mixte de rayonnements neutronique et photonique. L'émission neutronique est décrite par la distribution de Watt présentée dans l'Equation (III.9). Cette émission résulte de fissions spontanées du californium 252 [III.32], lesquelles représentent 3,09 % de la radioactivité de l'isotope. Le nombre moyen de neutrons émis par fission se monte à $\nu_n = 3,77 \text{ n.f}^{-1}$. Cette émission neutronique s'accompagne d'un fond photonique, composé de rayonnements gamma prompts associés aux fissions spontanées du californium 252, ainsi qu'aux rayonnements gamma retardés émis lors des désintégrations bêta des produits de fission. Les rayonnements X et gamma liés aux désintégrations alpha de l'isotope sont, quant à eux, négligés dans ce modèle, étant donné les très faibles taux d'émission qui leur sont associés pour des énergies supérieures à 20 keV (de 10^{-6} à 10^{-4} par désintégration). La Figure III.25, extraite de la référence [III.33] représente le spectre de ce fond gamma.

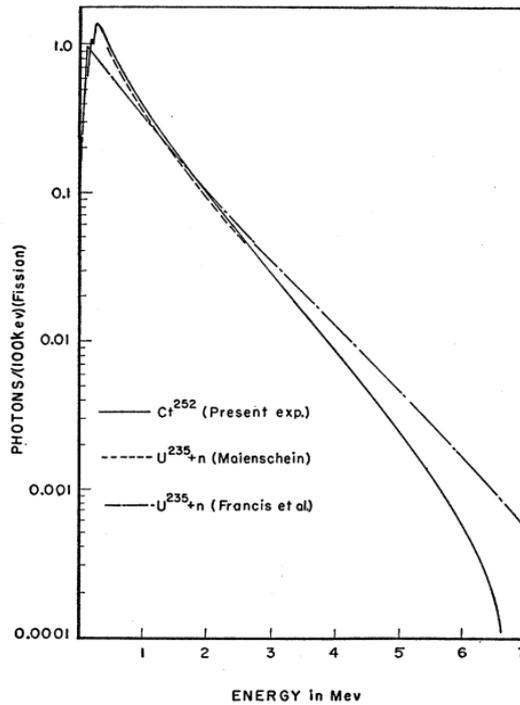


Figure III.25 : Spectre gamma prompt et retardé du californium 252 (Smith *et al.*, 1956).

Le fond gamma est modélisé [III.34] par une densité de probabilité p définie par morceaux en fonction de l'énergie du rayonnement E_γ sous la forme $p(E_\gamma) = Dc(E_\gamma)$, où D est une constante de normalisation et c est construite selon :

$$c(E_\gamma) = \begin{cases} 6,6 + e^{-1,1E_\gamma} & \text{pour } 20 \text{ keV} < E_\gamma < 500 \text{ keV} \\ 20,2e^{-1,78E_\gamma} + e^{-1,1E_\gamma} & \text{pour } 500 \text{ keV} \leq E_\gamma < 1,4 \text{ MeV} \\ 7,2e^{-1,09E_\gamma} + e^{-1,1E_\gamma} & \text{pour } 1,4 \text{ MeV} \leq E_\gamma < 10,4 \text{ MeV} \end{cases} \quad \text{(III. 30)}$$

Les valeurs avancées pour le nombre moyen, noté ν_γ , de raies gamma émises par fission spontanée du californium 252 s'échelonnent entre 7 et 10 [III.33], sans préjudice sur l'évaluation des ordres de grandeur des contributions respectives des neutrons rapides et des

gamma au bruit de fond à compenser : la valeur de $\nu_\gamma = 7,98 \gamma.f^{-1}$ citée par Valentine [III.35] a été retenue dans cette étude.

Afin d'estimer le coefficient de compensation \bar{Q} de l'irradiation au californium 252 en présence du thermaliseur (PEHD), la mesure a été simulée à l'aide du code MCNPX2.6.0. Les scintillateurs H3 et E2 sont modélisés comme précédemment. La source de californium 252 est modélisée par une source ponctuelle d'émission isotrope, distribuée selon les Equations (III.9) et (III.30) pour les émissions neutronique et gamma respectivement. Le modérateur neutronique est modélisé par un cylindre parfait de même axe de symétrie que le scintillateur, d'épaisseur $e = 10$ cm et de diamètre $D = 5,7$ cm, composé d'un tiers d'atomes de carbone et de deux tiers d'atomes d'hydrogène, de masse volumique $\rho = 0,95 \text{ g.cm}^{-3}$. La carte poly.01t du code MCNPX2.6.0 est utilisée pour rendre compte de l'influence de la liaison du système sur la diffusion des neutrons au sein du thermaliseur. Les taux de dépôt par particule source sont estimés au moyen :

- du tally 8 seul pour les rayons gamma sources ;
- du tally 8 avec adjonction du tally 6 et de la carte PHL pour les protons de recul, générés par la diffusion des neutrons rapides incidents sur le scintillateur en sortie du PEHD.

En notant $\Delta_{n/\gamma}$ le quotient de ces taux évalués au-dessus de 20 keV, la contribution en comptage total des neutrons rapides au bruit à compenser est estimée par :

$$\frac{\nu_n}{\nu_\gamma} \Delta_{n/\gamma} \sim 500 \quad (\text{III.31})$$

La contribution des neutrons rapides peut par conséquent être négligée, le thermaliseur ayant été dimensionné dans ce but. L'estimation du coefficient de compensation portera donc sur le terme source photonique :

$$\bar{Q} = \bar{Q}_\gamma + \bar{Q}_n \sim \bar{Q}_\gamma \quad (\text{III.32})$$

Les valeurs obtenues en comptage total et sur les plages d'énergie $F_1 = [20 \text{ keV} ; 100 \text{ keV}]$ et $F_2 = [100 \text{ keV} ; 200 \text{ keV}]$ sont portées dans le Tableau III.8 ci-dessous.

Paramètre	Comptage total	F_1	F_2
\bar{Q}_γ	1,21	1,03	1,13

Tableau III.8 : Coefficients de compensation de l'ambiance photonique de la source californium 252 thermalisée en comptage total, et sur les plages d'énergie F_1 et F_2 .

Les coefficients de compensation évalués en comptage total et sur les fenêtres F_1 et F_2 tombent dans l'intervalle d'incertitude $\bar{Q} \pm 0,1\sigma_{E_\gamma}(\bar{Q})$, tel qu'il a été défini au paragraphe 1 de la Partie VII. L'opération de détection et de comptage neutronique (Equation (III.27)) en présence de la source de californium 252 thermalisée peut ainsi être paramétrée par les couples de paramètres $\{\bar{Q} ; \sigma_{E_\gamma}(\bar{Q})\}$ « enveloppes » présentés dans ce dernier paragraphe.

Ce dernier résultat signifie que la radioactivité de fond de la source de californium 252 thermalisée est compensée de façon semblable à celle d'une source photonique émettrice à plus de 200 keV, telle que la source de césium 137 utilisée dans les mesures expérimentales de ce chapitre. Cette similitude entre la compensation des deux sources est par ailleurs confortée par l'équivalence des signatures énergétiques des sources de californium 252 thermalisée et de césium 137 au sein du scintillateur E2, insensible aux neutrons thermiques. Le Tableau III.8 montre ainsi que la proportion de coups en dessous de 200 keV se porte à 64 % dans E2 en présence de la source de californium 252 thermalisée, pour 66 % en présence de la source de césium 137. On explique aisément ces valeurs similaires en rappelant que l'estimation du coefficient de compensation dépend essentiellement des espérances des distributions énergétiques incidentes, comme l'ont illustré les résultats de simulation présentés en Partie VII, paragraphe 3 sur le spectre de Watt. Or l'espérance mathématique de la distribution décrite par l'Equation (III.30) est égale à $\widehat{E}_\gamma = 875$ keV, soit dans la zone de convergence du coefficient \bar{Q} , de même que celle du césium 137 (662 keV).

La valeur du facteur d'élargissement t_K dans le test d'hypothèse décrit au paragraphe 2 de la Partie IX gouverne le compromis entre la sensibilité aux neutrons thermiques S_n et la probabilité de fausse détection K . Afin d'assigner une valeur à t_K , nous traçons les distributions $K = g(t_K)$ associées aux couples de paramètres $\{\bar{Q}; \sigma_{E_\gamma}(\bar{Q})\}$ en comptage total et sur les fenêtres F_1 et F_2 , tels que consignés dans le Tableau III.4. Ces distributions dépendent des comptages en vertu de l'Equation (III.27), et sont d'autant plus lentement décroissantes que ces comptages sont faibles. Le choix a, par conséquent, été fait de régler le facteur t_K en fonction des distributions tracées pour le plus faible taux de comptage non nul relevé sur l'une des deux voies et consigné dans le Tableau III.8, égale à 0,1 cps, soit un comptage de 18 cp sur la plage d'intégration de $T = 180$ s. Le niveau de confiance $1 - K$ associé à une valeur de t_K pour ce taux représente ainsi un minorant pour l'ensemble des mesures de comptage résumées dans le Tableau III.8. Sur la base des trois distributions superposées sur la Figure III.26, le facteur d'élargissement est fixé à la valeur de $t_K = 3$, à laquelle correspond un niveau de confiance $1 - K = (99,99 \pm 0,01) \%$.

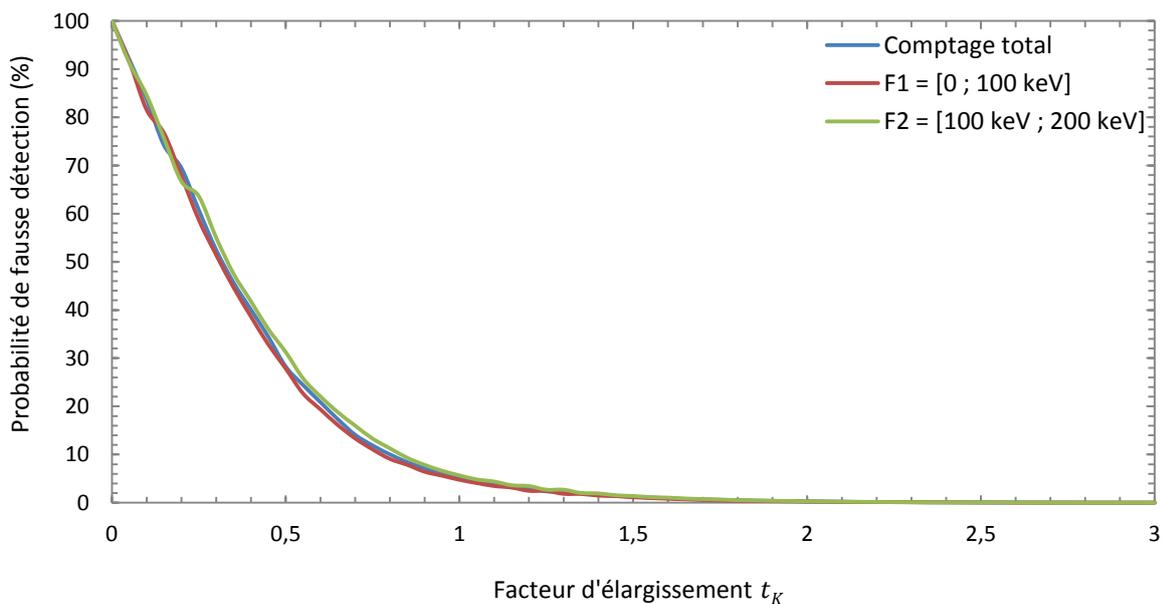


Figure III.26 : Distribution $K = g(t_K)$ évaluée pour $\widehat{N}_{H3}^t = 18$ cp, $\widehat{N}_{H3}^t = \bar{Q} \cdot \widehat{N}_{E2}^t$.

Les spectres enregistrés avec les scintillateurs plastiques H3 et E2 successivement en présence de la source de californium 252 thermalisée sont superposés sur la Figure III.27. Les deux spectres diffèrent principalement jusqu'au numéro de canal 50. Or, les courbes d'étalonnage présentées sur la Figure III.15 identifient une énergie de 200 keV à un numéro de canal égalant 37 ± 8 pour H3 et 43 ± 9 pour E2 respectivement. Les spectres valident donc *a posteriori* la sélection de plages de comptage en dessous de 200 keV, résultant de l'étude par simulation décrite dans la Partie IV. L'évolution du taux de comptage attribué aux neutrons thermiques $\widehat{\lambda}_n \pm \sigma(\widehat{\lambda}_n)$ en fonction du facteur d'élargissement t_K qui gouverne le test de détection neutronique est présentée sur les Figures III.28, III.29 et III.30 en comptage total et sur les plages F_1 et F_2 respectivement. En fixant le facteur d'élargissement à $t_K = 3$ pour la compensation de l'émission gamma de la source de californium 252, le taux de comptage affiché, attribué aux neutrons thermiques détectés, est égal à $\widehat{\lambda}_n = 11,1 \pm 0,2$ cps, $\widehat{\lambda}_n = 4,6 \pm 0,2$ cps et $\widehat{\lambda}_n = 2,8 \pm 0,1$ cps en comptage total et sur F_1 et F_2 respectivement.

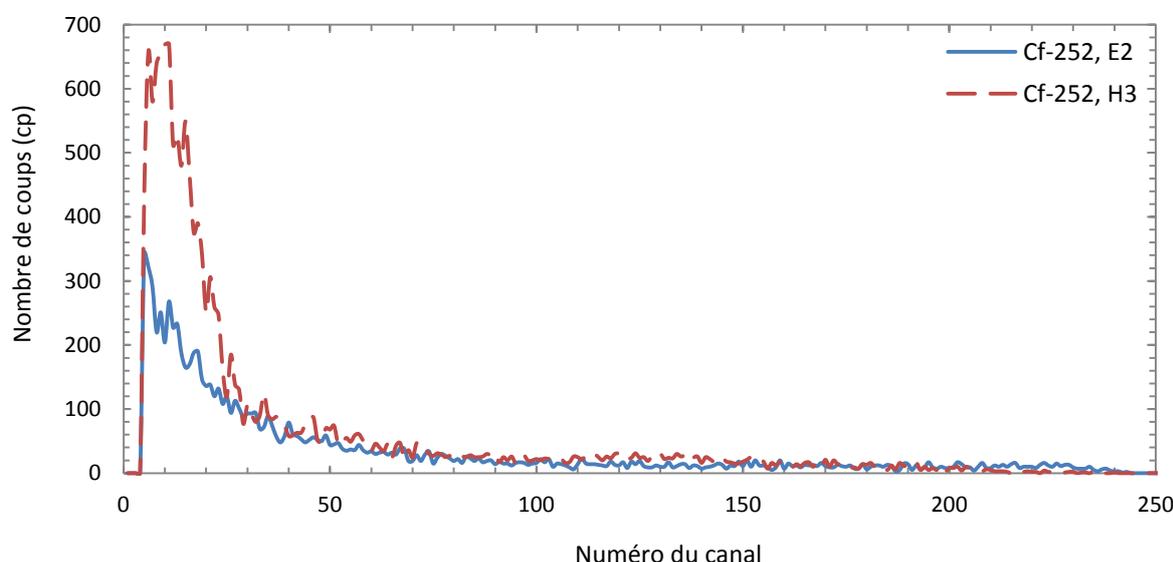


Figure III.27 : Spectres en énergie des scintillateurs H3 et E2 pour la mesure en présence de la source de californium 252 thermalisée.

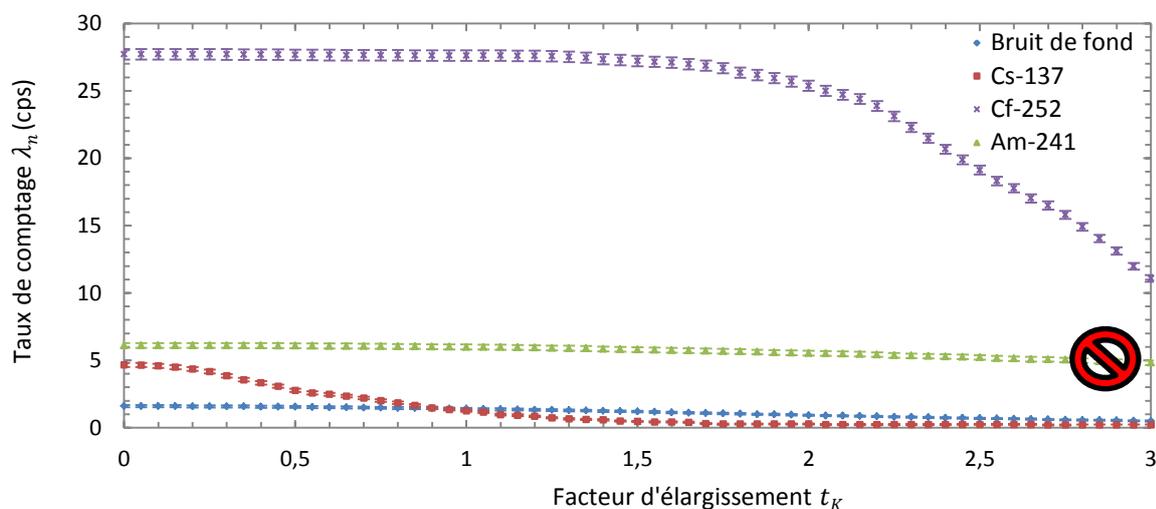


Figure III.28 : Taux de comptage $\widehat{\lambda}_n$ et $\widehat{\lambda}_{n/\gamma}$ en comptage total en fonction du facteur d'élargissement t_K .

Les distributions illustrées sur les Figures III.28 à III.30, interprétées avec les données de la littérature sur la distribution du spectre d'émission photonique de la source de californium 252, et recoupées avec les taux de comptages affichés dans E2, confirment ainsi l'existence d'un taux de comptage neutronique significatif après compensation, attribuable aux neutrons thermiques capturés dans H3.

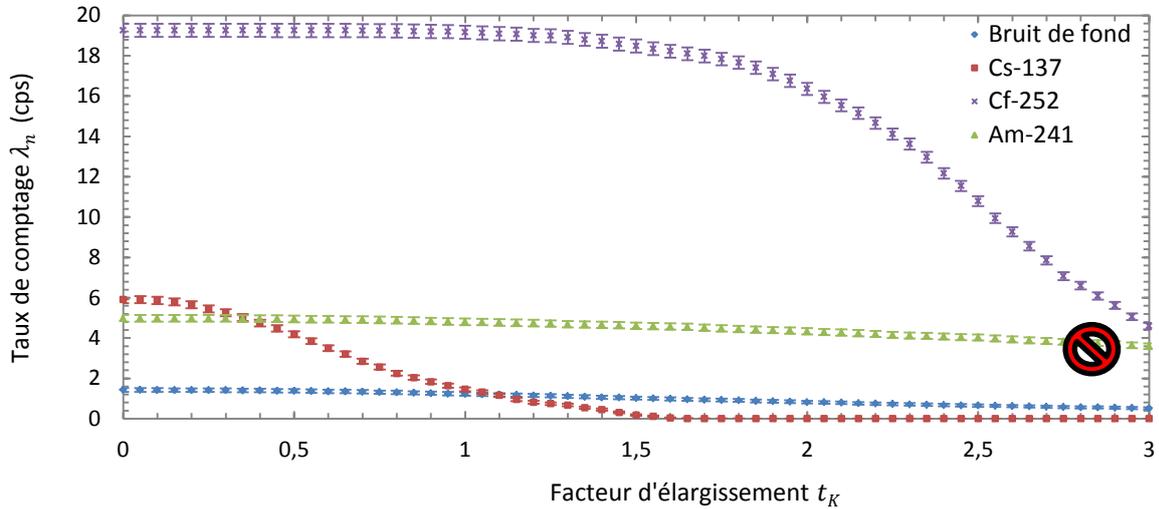


Figure III.29 : Taux de comptage $\widehat{\lambda}_n$ et $\widehat{\lambda}_{n/\gamma}$ sur F_1 en fonction du facteur d'élargissement t_K .

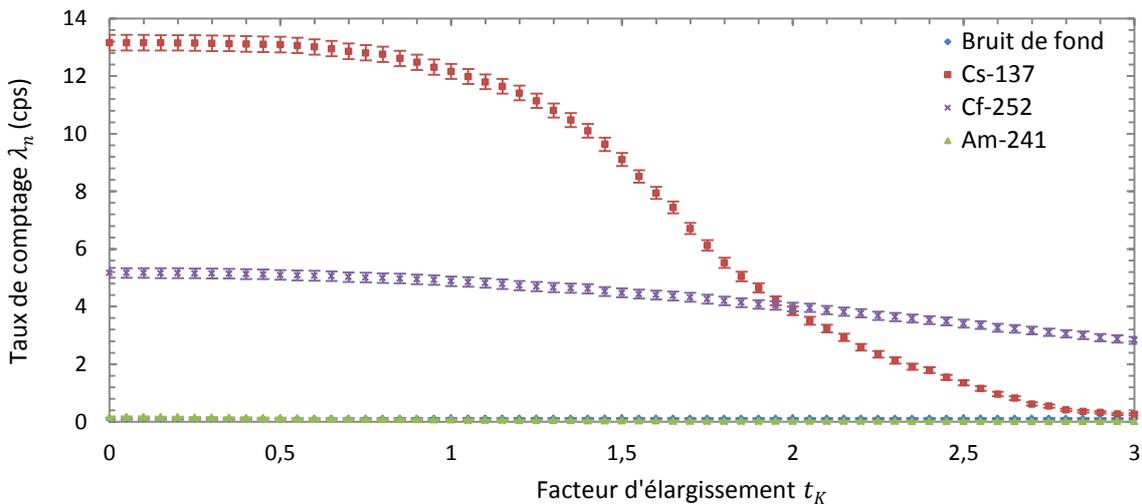


Figure III.30 : Taux de comptage $\widehat{\lambda}_n$ et $\widehat{\lambda}_{n/\gamma}$ sur F_2 en fonction du facteur d'élargissement t_K .

Afin d'évaluer le potentiel de déploiement du principe de détection des neutrons thermiques, la méthode la plus évocatrice demeure la comparaison à la sensibilité d'un compteur proportionnel de référence à hélium 3. A cette fin, une estimée de la sensibilité aux neutrons thermiques de la compensation de H3 par E2, notée \widehat{S}_n et exprimée en coups par neutron thermique (n_{th}) fois centimètre carré ($c \cdot n_{th}^{-1} \cdot \text{cm}^2$ ou cps/nv) est nécessaire. L'unité nv est celle du flux de neutrons *thermiques* incidents sur le capteur.

Le taux de fission spontanée $A_{252\text{Cf},f}$ de la source de californium 252 est donné par :

$$A_{252\text{Cf},f} = 0,0309 \cdot A_{252\text{Cf}} = 3,7 \cdot 10^4 \text{ f. s}^{-1} \quad (\text{III. 33})$$

exprimé en fissions par seconde, d'où est déduit le taux d'émission neutronique :

$$A_{252\text{Cf},n} = \nu_n \cdot A_{252\text{Cf},f} = 3,77 \cdot A_{252\text{Cf},f} = 1,4 \cdot 10^5 \text{ n. s}^{-1} \quad (\text{III. 34})$$

exprimé en neutron par seconde.

Aucune donnée n'est accessible par l'expérience sur la fluence de neutrons thermiques incidente sur H3 ou E2 à la sortie du bloc de PEHD, c'est à dire la fluence neutronique intégrée entre 1 meV et 25 meV. Cette fluence est notée $\Psi_{n_{th}}$ et exprimée en neutron thermique par neutron généré et par centimètre carré ($n_{th} \cdot n^{-1} \cdot \text{cm}^{-2}$). Elle est estimée par simulation en utilisant le tally 2 du code MCNPX2.6.0 pour le calcul du flux surfacique moyen. L'estimée obtenue est égale à $\Psi_{n_{th}} = 2,4 \cdot 10^{-5} \cdot n^{-1} \cdot \text{cm}^{-2}$. Nous en déduisons une estimée du flux de neutrons thermiques incident sur le scintillateur, notée $\Phi_{n_{th}}$ et exprimée en neutron thermique par centimètre carré et par seconde ($n_{th} \cdot \text{cm}^{-2} \cdot \text{s}^{-1}$), sous la forme :

$$\Phi_{n_{th}} = \Psi_{n_{th}} \cdot A_{252\text{Cf},n} = 3,3 n_{th} \cdot \text{cm}^{-2} \cdot \text{s}^{-1} \quad (\text{III. 35})$$

Le calcul donne alors accès à une estimée de la sensibilité aux neutrons thermiques par :

$$\widehat{S}_n = \frac{\widehat{\lambda}_n}{\Phi_{n_{th}}} \quad (\text{III. 36})$$

L'application numérique fournit les valeurs $\widehat{S}_n = 3,3 \pm 0,1 \text{ cps/nv}$, $\widehat{S}_n = 1,4 \pm 0,1 \text{ cps/nv}$ et $\widehat{S}_n = 0,9 \pm 0,1 \text{ cps/nv}$ en comptage total, sur F_1 et F_2 . En restant critique sur la précision d'une estimation par simulation, il reste toutefois possible d'avancer que les estimées obtenues sont du même ordre de grandeur que les sensibilités aux neutrons thermiques affichées par les compteurs proportionnels à hélium 3 commerciaux de référence VacuTec 70060, de volume actif similaire (2,8 cm³). Ces dernières sensibilités varient en effet entre 0,6 cps/nv et 2 cps/nv pour une pression du gaz comprise entre 2 et 10 bars [III.36].

2. Influence de la radioactivité de fond sur l'estimation de l'activité neutronique

En suivant à nouveau les étapes algorithmiques décrites dans la Partie IX, avec les données d'entrée expérimentales présentées dans le Tableau III.7, trois mesures d'ambiance ont été reconstituées, représentatives de trois types de radioactivité de fond à compenser pour afficher un taux de comptage neutronique fiable.

2.1. Bruit de fond dans la salle de mesure

Les Figures III.28, III.29 et III.30 présentent l'évolution du taux de comptage parasite $\widehat{\lambda}_{n/\gamma} \pm \sigma(\widehat{\lambda}_{n/\gamma})$ attribuable à la radioactivité de fond dans la salle de mesure en fonction du facteur d'élargissement t_K du test de détection neutronique, et ce en comptage total, sur F_1 et sur F_2 . Pour une valeur de $t_K = 3$, ce taux de faux comptage est égal à $\widehat{\lambda}_{n/\gamma} = 0,5 \pm 0,1 \text{ cps}$, $\widehat{\lambda}_{n/\gamma} = 0,5 \pm 0,1 \text{ cps}$ et $\widehat{\lambda}_{n/\gamma} = 0,1 \pm 0,1 \text{ cps}$ sur les trois plages de comptage, valeurs qui tombent toutes dans l'intervalle d'incertitude $\pm 3\sigma(\widehat{\lambda}_n)$ attaché à la mesure en présence de la source de californium 252 décrite dans le paragraphe précédent. Ce bruit de fond correspond à

un débit de dose gamma de $0,2 \mu\text{Sv}\cdot\text{h}^{-1}$, mesuré au moyen d'un radiamètre commercial de type Thermo Electron ESM FH 40G-L 10. Le résultat indique donc qu'en présence de la radioactivité naturellement présente dans la salle de mesure, la mesure neutronique présentée au paragraphe précédent n'est pas biaisée par le bruit de fond à plus ou moins trois fois l'écart-type. Or le réglage du facteur d'élargissement à $t_K = 3$, fondé sur le couple de paramètres $\{\bar{Q}; \sigma_{E_\gamma}(\bar{Q})\}$, est représentatif d'une activité à compenser dont l'énergie moyenne est supérieure à 200 keV. Ceci confirme le fait que la distribution de la radioactivité gamma naturelle, originellement générée avec une espérance de près de 1 MeV (telle que l'on peut calculer cette énergie moyenne, par exemple, à partir de l'inventaire des composantes de l'activité gamma naturelle dressé par Medhat *et al.* [III.37]), reste, après diffusion, compatible avec cette hypothèse. La mesure effectuée est représentative d'un environnement dit « conventionnel », légalement défini par un débit de dose inférieur à $0,5 \mu\text{Sv}\cdot\text{h}^{-1}$ [III.38]. Nous pouvons ainsi calculer, pour un tel environnement, une estimée de la *limite de détection*, notée \widehat{DL}_n et homogène à un flux de neutrons thermiques (nv), à partir du taux de faux comptage sous la forme :

$$\widehat{DL}_n = \frac{\widehat{\lambda}_{n/\gamma}}{\widehat{S}_n} \quad (\text{III. 37})$$

qui est égale à $\widehat{DL}_n = 0,15 \pm 0,03 \text{ nv}$, $\widehat{DL}_n = 0,36 \pm 0,07 \text{ nv}$ et $\widehat{DL}_n = 0,11 \pm 0,11 \text{ nv}$ pour des comptages réalisés sur la totalité des spectres acquis, et les fenêtres d'énergie F_1 et F_2 respectivement.

Ces limites, dont on retient une fois encore l'ordre de grandeur, sont à comparer aux limites de détection atteignables avec les compteurs proportionnels à hélium 3 de référence VacuTec 70060. Ces dernières varient entre $0,017 \text{ nv}$ et $0,005 \text{ nv}$ pour une pression du gaz comprise entre 2 et 10 bars. Les limites de détection évaluées en environnement conventionnel pour notre détecteur sont donc d'un ordre de grandeur à un ordre de grandeur et demi supérieures à celles de la référence commerciale, soit une performance dégradée d'autant.

2.2. En présence d'une source de césium 137

Les Figures III.28, III.29 et III.30 présentent l'évolution du taux de faux comptage $\widehat{\lambda}_{n/\gamma} \pm \sigma(\widehat{\lambda}_{n/\gamma})$ attribuable à la source de césium 137 en fonction du facteur d'élargissement t_K du test de détection neutronique, et ce en comptage total, sur F_1 et sur F_2 . Pour une valeur de $t_K = 3$, ces taux sont égaux à $\widehat{\lambda}_{n/\gamma} = 0,2 \pm 0,03 \text{ cps}$, $\widehat{\lambda}_{n/\gamma} = 0,01 \pm 0,01 \text{ cps}$ et $\widehat{\lambda}_{n/\gamma} = 0,3 \pm 0,04 \text{ cps}$ sur les trois plages de comptage. Ces valeurs tombent toutes dans l'intervalle d'incertitude $\pm 3\sigma(\widehat{\lambda}_n)$ attaché à la mesure en présence de la source de californium 252 décrite dans le paragraphe précédent. Le choix du césium 137 est conventionnel pour l'évaluation des facteurs de mérite d'un détecteur neutronique, y compris à un stade de validation préliminaire comme c'est ici le cas. Cet isotope est en effet représentatif des produits de fission de vie longue présents dans le cycle du combustible et, pour cette raison, illustratif d'un cadre applicatif concret en mesure neutronique. On déduit de ce résultat qu'en présence d'une ambiance gamma de césium 137, dont le débit de dose gamma a été mesuré à $3,2 \mu\text{Sv}\cdot\text{h}^{-1}$ au niveau des capteurs, la mesure neutronique présentée au paragraphe précédent n'est pas biaisée à plus ou moins trois fois l'écart-type.

La robustesse de la compensation d'une ambiance photonique de césium 137 s'explique sans ambiguïté à partir des observations formulées dans le paragraphe 1 de la Partie VII. Les coefficients de compensation évalués expérimentalement pour une irradiation au césium 137 (662 keV) tombent dans l'encadrement $\bar{Q} \pm 0,1\sigma_{E_\gamma}(\bar{Q})$. Par conséquent, le paramétrage du test de détection neutronique à $t_K = 3$ fondé sur les coefficients « enveloppes » $\{\bar{Q}; \sigma_{E_\gamma}(\bar{Q})\}$ est parfaitement opérationnel en présence d'une telle ambiance. La mesure effectuée est représentative d'un environnement dit de « zone surveillée », légalement défini par un débit de dose compris entre 0,5 et 7,5 $\mu\text{Sv}\cdot\text{h}^{-1}$ [III.38]. Nous pouvons ainsi calculer pour ce type d'environnements, une estimée de la limite de détection : $\widehat{DL}_n = 0,06 \pm 0,01 \text{ nv}$, $\widehat{DL}_n = 0,01 \pm 0,01 \text{ nv}$ and $\widehat{DL}_n = 0,33 \pm 0,04 \text{ nv}$, pour des comptages réalisés sur la totalité des spectres acquis et les fenêtres d'énergie F_1 et F_2 respectivement. Les deux premières limites de détection évaluées soit supérieures d'un demi-ordre de grandeur, voire du même ordre de grandeur, que celles de la référence commerciale, attestant le fonctionnement optimal du schéma de détection et de comptage pour l'irradiation considérée. Il convient toutefois de rappeler que les limites de détection neutronique affichée par les compteurs à hélium 3, cités comme référence dans cette étude, sont robustes quelle que soit la distribution énergétique de l'ambiance pour débits de dose gamma inférieurs au $\text{mSv}\cdot\text{h}^{-1}$.

2.3. En présence d'une source d'américium 241

Les Figures III.28, III.29 et III.30 présentent l'évolution du taux de faux comptage $\overline{\lambda_{n/\gamma}} \pm \sigma(\overline{\lambda_{n/\gamma}})$ attribuable à la source d'américium 241 en fonction du facteur d'élargissement t_K du test de détection neutronique, et ce en comptage total, sur F_1 et sur F_2 . Moins usuelle dans la qualification des détecteurs neutroniques, une ambiance d'américium 241 est toutefois représentative de points chauds radioactifs potentiellement présents dans les boîtes à gants. Une source d'américium 241 scellée, telle que celle utilisée, est un émetteur photonique à moins de 60 keV, ce qui explique qu'elle n'induit aucun comptage parasite significatif sur la fenêtre d'énergie $F_2 = [100 \text{ keV}; 200 \text{ keV}]$: $\overline{\lambda_{n/\gamma}} = 0,02 \pm 0,01 \text{ cps}$ à $t_K = 3$. On en déduit une limite de détection sur F_2 égale à $\widehat{DL}_n = 0,02 \pm 0,01 \text{ nv}$, similaire à celle des compteurs à hélium 3.

En revanche, on constate sur les courbes qu'il n'y a pas de compensation de l'ambiance américium 241 en comptage total ni sur F_1 à $t_K = 3$, si bien qu'il est impossible d'afficher un taux de comptage neutronique fiable sur ces deux plages. Ceci s'explique par le fait que les couples de paramètres « enveloppes » $\{\bar{Q} = 1,16; \sigma_{E_\gamma}(\bar{Q}) = 0,48\}$ en comptage total et $\{\bar{Q} = 1,12; \sigma_{E_\gamma}(\bar{Q}) = 0,49\}$ sur F_1 , ne sont pas représentatif de la compensation d'une ambiance d'américium 241. Les coefficients de compensation expérimentaux associés à une telle source et portés sur les Figures III.18 et III.19, sont en effet égaux à $Q_{H3/E2} = 5,0 \pm 0,3$ et $Q_{H3/E2} = 4,8 \pm 0,7$ en comptage total et sur F_1 respectivement. Une distorsion semblable aurait été observée en présence d'une source de cobalt 57, sur les trois plages dans ce dernier cas, puisqu'il s'agit d'une source photonique émettrice entre 20 et 200 keV.

Cette dernière mesure de bruit de fond démontre que, dans l'état de développement actuel, il est impossible d'afficher un taux de comptage neutronique fiable sans une dégradation rédhibitoire de la sensibilité en présence d'une ambiance à basse énergie. En vue de telles applications, il sera nécessaire, dans la préparation du scintillateur de compensation, d'affiner le dopage en élément lourd, qu'il s'agisse de bismuth ou d'une alternative à ce dernier, de numéro atomique plus proche de celui du gadolinium. Le but sera alors de réduire davantage

l'écart entre les valeurs du coefficient de compensation à basse énergie d'une part (moins de 200 keV) et à moyenne et haute énergie d'autre part (au-dessus de 200 keV).

CONCLUSION DU CHAPITRE ET PERSPECTIVES

Ce chapitre présente une application de la mesure par compensation à la détection et au comptage neutroniques. Le capteur dédié à la détection et le capteur dédié à la compensation de la radioactivité de fond prennent respectivement la forme d'un scintillateur plastique dopé au gadolinium et d'un scintillateur plastique dopé au bismuth, tous deux de géométries et de volumes identiques. La conformité aux prévisions des coefficients de compensation photoniques expérimentaux a été validée, et les paramètres du test d'hypothèse pour la détection neutronique, déterminés par simulation, ont été appliqués à une série de mesures de comptage. Les premiers résultats quantitatifs déduits de ces mesures ont confirmé l'absence de biais significatif dans le comptage neutronique en présence de la radioactivité naturelle ou d'une ambiance typique des produits de fission de vie longue, jusqu'à des débits de dose gamma d'entrée en zone surveillée. Ce point valide le principe de détection introduit dans le chapitre. Les estimées construites à partir des données expérimentales et des simulations mettent en lumière des sensibilités neutroniques du *même ordre de grandeur* que celles atteintes par des compteurs de référence à hélium 3 de volume actif semblable ($2,8 \text{ cm}^3$), confirmant ainsi l'intérêt pratique de la section efficace du gadolinium. En raison de leur sensibilité aux rayonnements parasites, notamment photoniques, les scintillateurs compensés accusent toutefois des limites de détection plus élevées que leurs concurrents de référence. La mise en œuvre du schéma de détection dépend, en outre, de la thermalisation des neutrons incidents : le dimensionnement d'un modérateur autour de la dizaine de centimètres demeure toutefois compatible avec le déploiement d'un système transportable. Le lissage des comptages bruts au moyen d'un filtre non linéaire, également introduit dans ce chapitre, doit permettre le suivi en temps réel de l'activité neutronique pour des taux de comptage plus élevés, qu'un passage à l'échelle des scintillateurs dopés autorisera.

Le dopage homogène des capteurs, par opposition à l'utilisation de convertisseurs dont l'épaisseur auto-absorbante doit faire l'objet d'une optimisation, justifie un passage à l'échelle des scintillateurs, l'ensemble du volume étant actif. Un volume de détection plus important doit en effet conduire à des taux de comptage plus élevés, et par conséquent à une précision supérieure associée à ces derniers. Le passage à l'échelle est toutefois réputé difficile dans la préparation des scintillateurs dopés, en raison des problèmes de turbidité, d'inhomogénéité et d'auto-absorption de la luminescence qui apparaissent alors [III.39]. Diverses montées en volume ont été réalisées sur la préparation du scintillateur H3, jusqu'à 13 cm^3 puis un maximum de 97 cm^3 , soit un facteur 30 environ des échantillons utilisés dans l'étude de principe décrite dans ce chapitre. La turbidité, l'homogénéité et la fluorescence satisfaisantes de ces derniers scintillateurs, polis et taillés, peuvent être observées sur la Figure III.31, en lumière naturelle et sous une lampe à ultraviolet ($\lambda = 365 \text{ nm}$). Il faut toutefois noter que la montée en volume s'effectue au prix d'une dégradation très sensible du rendement lumineux. Ce dernier passe, en effet, de $R_{ph}(662 \text{ keV}) \sim 7000 \pm 500 \text{ ph. MeV}^{-1}$ pour les échantillons de $2,8 \text{ cm}^3$ utilisés dans ce chapitre à $R_{ph}(662 \text{ keV}) \sim 3000 \pm 500 \text{ ph. MeV}^{-1}$ pour le barreau de 97 cm^3 . On constate ainsi qu'une montée en volume d'un ordre et demi de grandeur a pour résultat une dégradation du rendement lumineux d'un facteur supérieur à 2. Dans ce dernier cas, aucune pseudo-spectroscopie n'est accessible à moins de 200 keV, si bien qu'un étalonnage du détecteur à basse énergie, tel que réalisé dans ce chapitre, n'est plus réalisable. La première perspective ouverte par ces travaux porte donc sur l'amélioration des

scintillateurs plastiques de volumes élevés, dont la faisabilité a par ailleurs été établie. Une fois la synthèse de ces derniers optimisée, il sera pertinent de conduire une étude sur les biais d'anisotropie pouvant affecter la détection de points chauds avec des scintillateurs fortement asymétriques et volumineux, et, si besoin, de développer des outils algorithmiques dédiés à la correction de ces biais.

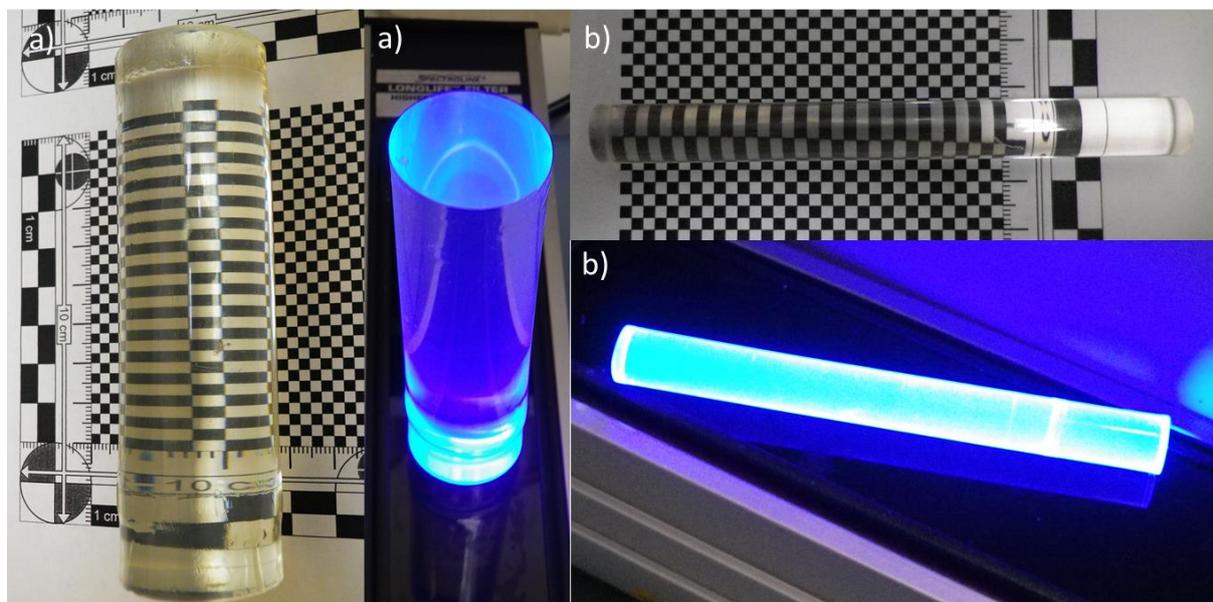


Figure III.31 : Scintillateurs plastiques dopés au gadolinium, de volume 97 cm^3 (a) et 13 cm^3 (b), éclairage naturel et UV.

La limite la plus évidente du schéma de détection et de comptage présenté dans ce chapitre porte sur la divergence des valeurs du coefficient de compensation de la réponse photonique à moins de 200 keV. Cette divergence a été atténuée par l'introduction d'un dopage modéré au bismuth, mais elle est demeurée assez significative pour entraîner une caducité de la compensation en présence d'américium 241. Il est impératif de pallier cette carence, qui est principalement attribuable à la différence entre les numéros atomiques effectifs des milieux scintillants. La première option consiste à doser plus finement l'incorporation de bismuth dans le scintillateur de compensation. La solution idéale repose néanmoins sur l'incorporation d'un dopant alternatif au bismuth, introduit avec le même ligand de tris-tétraméthylheptanedionate, et de numéro atomique plus proche de celui du gadolinium, c'est-à-dire un autre lanthanide. Il est toutefois indispensable que ce dernier ne contienne pas significativement, dans le mélange isotopique qui forme l'élément naturel, d'isotope radioactif, ce qui exclut par exemple le lanthane ($Z_{\text{La}} = 57$). L'élément sélectionné ne doit, en outre, pas fluorescer au voisinage de la longueur d'onde d'émission des photons de scintillation, soit $\lambda_e = 420 \text{ nm}$, ce qui exclut encore, d'après les spectres de luminescence tracés par Bünzli [III.40], le thulium ($Z_{\text{Tm}} = 69$) et le terbium ($Z_{\text{Tb}} = 65$) dans des complexes de tris(β -dikétonates). Des travaux futurs auront donc intérêt à être conduits sur la mise en œuvre d'une compensation à base des complexes organométalliques de lanthanides que cette discussion sommaire ne suffit pas à exclure.

Par conception, enfin, la limite de détection du schéma dans ce chapitre dépend fortement de l'activité photonique à compenser pour des débits de dose gamma élevés. Les prochaines campagnes de mesure viseront par conséquent à évaluer cette limite dans des débits de dose gamma typiques d'une zone contrôlée, soit à partir de $7,5 \mu\text{Sv}\cdot\text{h}^{-1}$ [III.38]. L'objectif est de

définir plus exhaustivement, pour un couple de scintillateurs de chargement massique et de volume donnés, un cadre d'emploi au regard du débit de dose et de la distribution énergétique de l'ambiance gamma.

Sur la base des conclusions tirées de ces premiers travaux, les approches développées dans les chapitres suivants se fondent sur un convertisseur de gadolinium distinct du milieu de détection, que ce soit en vue de l'exploitation de la signature à haute énergie des captures radiatives (Chapitre IV) ou de la signature à basse énergie de ces mêmes captures (Chapitres V et VII), étudiée dans ce chapitre.

Références du Chapitre III :

- [III.1] G. H. V. Bertrand, M. Hamel, S. Normand, F. Sguerra, "Pulse shape discrimination between (fast and thermal) neutron and gamma rays with plastic scintillators: State of the art", *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section A*, Vol. 776, pp. 114-128 (2015).
- [III.2] S. Normand, B. Mouanda, S. Haan, M. Louvel, "Study of a new boron loaded plastic scintillator", *IEEE Transactions on Nuclear Science*, Vol. 49, Iss. 2, pp. 577-582 (2002).
- [III.3] I. A. Pawelczak, A. M. Glenn, H. P. Martinez, M. L. Carman, N. P. Zaitseva, S. A. Payne, "Boron-loaded plastic scintillator with neutron- γ pulse shape discrimination capability", *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section A*, Vol. 751, pp. 62-69 (2014).
- [III.4] R. D. Breukers, C. M. Bartle, A. Edgar, "Transparent lithium loaded plastic scintillators for thermal neutron detection", *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section A*, Vol. 701, pp. 58-61 (2013).
- [III.5] L. Ovechkina, K. Riley, S. Miller, Z. Bell, V. Nagarkar, "Gadolinium loaded plastic scintillators for high efficiency neutron detection", *Physics Procedia*, Vol. 2, Iss. 2, pp. 161-170 (2009).
- [III.6] E. Velmozhnaya, A. Bedrik, P. Zhmurin, V. Titskaya, A. Adadurov, D. Sofronov, "Investigation of the behavior of gadolinium complexes in plastic scintillators", *Functional materials*, Vol. 20, N° 4, pp. 494-499 (2013).
- [III.7] A. M. Williams, P. A. Beelev, N. M. Spyrou, "Response of a lithium gadolinium borate scintillator in monoenergetic neutron fields", *Radiation Protection Dosimetry*, Vol. 110, Iss. 1-4, pp. 497-502 (2004).
- [III.8] B. D. Blasy, *Neutron Detection Utilizing Gadolinium Doped Hafnium Oxide Films*, Department of Engineering Physics, Air Force Institute of Technology (2008).
- [III.9] N. P. Zaitseva, M. L. Carman, M. A. Faust, A. M. Glenn, H. P. Martinez, I. A. Pawelczak, S. A. Payne, K. E. Lewis, "System and plastic scintillator for discrimination of thermal neutron, fast neutron and gamma radiation", Patent US 20130299702 A1 (2013).
- [III.10] J. Bendahan, E. J. Morton, "Composite gamma-neutron detection system", Patent US 8389941 B2 (2010).
- [III.11] G. Daniel, E. Marienbach, J.-L. Szabo, "Process and apparatus for the simultaneous selective detection of neutrons and X or gamma photons", Commissariat à l'Énergie Atomique, Patent US 005481114 A1 (1996).

- [III.12] R. Coulon, J. Dumazert, G. Bertrand, M. Hamel, F. Sguerra, “Dispositif de détection de neutrons et dispositif de comptage de neutrons thermiques associé”, Commissariat à l’Energie Atomique et aux Energies Alternatives, demande déposée le 24/10/2014 sous le n° FR1460266, publiée le 29/04/2016 sous le n° FR3027687.
- [III.13] I. G. Britvich, V. G. Vasilchenko, V. N. Kirichenko, S. I. Kuptsov, V. G. Lapshin, A. P. Soldatov, A. S. Solovev, V. I. Rykalin, S. K. Chernichenko, I. V. Shein, “New Polystyrene-Based Scintillators”, *Instruments and Experimental Techniques*, Vol. 45, Iss. 5, pp. 644-655 (2002).
- [III.14] H.-J. Im, C. Willis, S. Saengkerdsub, R. Makote, M. D. Pawel, S. Dai, “Scintillators for alpha and neutron radiations synthesized by room temperature sol–gel processing”, *Journal of Sol-Gel Science and Technology*, Vol. 32, Iss. 1, pp. 117-124 (2004).
- [III.15] D. V. Lewis, N. M. Spyrou, A. M. Williams, P. A. Beeley, “Lithium–gadolinium–borate as a neutron dosimeter”, *Radiation protection dosimetry*, Vol. 126, pp. 390–393 (2007).
- [III.16] V. R. Negin, V. N. Popov, V. V. Nazarov, “Plastic Scintillation of Increased Transparency Containing ${}^6\text{Li}$ ”, *Priroda i Tekhnika Eksperimenta*, N° 5, pp. 60-62 (1980).
- [III.17] N. J. Cherepy, R. D. Sanner, T. M. Tillotson, S. A. Payne, P. R. Beck, S. Hunter, P. A. Thelin, “Bismuth-loaded plastic scintillators for gamma spectroscopy and neutron active interrogation”, *IEEE Nuclear Science Symposium and Medical Imaging Conference Record*, pp. 1972–1973 (2012).
- [III.18] A. F. Adadurov, P. N. Zhmurin, V. N. Lebedev, V. N. Kovalenko, “Plastic scintillators with β -diketone Eu complexes for high ionizing radiation detection”, *Applied radiation and isotopes*, Vol. 69, Iss. 10, pp. 1475-1478 (2011).
- [III.19] A. I. Bedrik, E. S. Velmozhnaya, P. N. Zhmurin, A. F. Adadurov, V. N. Lebedev, V. D. Titskaya, “Plastic scintillator with gadolinium phenylpropionate”, *Functional Materials*, Vol. 18, Iss. 4, pp. 470-474 (2011).
- [III.20] M. Hamel, G. Turk, A. Rousseau, S. Darbon, C. Reverdin, S. Normand, “Preparation and characterization of highly lead-loaded red plastic scintillators under low energy X-rays”, *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research A*, Vol. 660, Iss. 1, pp. 57-63 (2011).
- [III.21] G. H. V. Bertrand, F. Sguerra, C. Dehé-Pittance, F. Carrel, R. Coulon, S. Normand, M. Hamel, “Influence of bismuth loading in polystyrene-based plastic scintillators for low energy gamma spectroscopy”, *Journal of Materials Chemistry C*, Vol. 2, Iss. 35, pp. 7304-7312 (2014).
- [III.22] C. Aberle, C. Buck, B. Gramlich, F.X. Hartmann, M. Lindner, S. Schönert, U. Schwan, S. Wagner, H. Watanabe, “Large scale Gd-beta-diketonate based organic liquid scintillator production for antineutrino detection”, *Journal of Instrumentation*, Vol. 7, pp. 6008-6023 (2012).
- [III.23] J. B. Czirr, “Gd-loaded plastic scintillator”, *Nuclear Instruments and Methods*, Vol. 108, Iss. 3, p. 613 (1973).
- [III.24] P. Martín-Ramos, V. Lavín, M. Ramos Silva, I. R. Martín, F. Lahoz, P. Chamorro-Posada, J. A. Paixão, J. Martín-Gil, “Novel erbium(III) complexes with 2,6-dimethyl-3,5-heptanedione and different N,N-donor ligands for Ormosil and PMMA matrices doping”, *Journal of Materials Chemistry C*, Vol. 1, Iss. 36, pp. 5701-5710 (2013).
- [III.25] S. Normand, V. Kondrasovs, G. Corre, K. Boudergui, N. Blanc de Lanaute, J.-M. Bourbotte, R. Woo, P. Pin, L. Tondut, “PING for Nuclear Measurements: First Results”, *IEEE Transactions on Nuclear Science*, Vol. 59, Iss. 4, pp. 1232-1236 (2011).

- [III.26] G. Knoll, *Radiation Detection and Measurement*, 3rd Ed., John Wiley & Sons, Inc., New York, pp. 119-133 (1999).
- [III.27] G. H. V. Bertrand, J. Dumazert, F. Sguerra, R. Coulon, G. Corre and M. Hamel, “Understanding behavior of different metals in loaded scintillators: discrepancy between gadolinium and bismuth”, *Journal of Materials Chemistry C*, Vol. 3, pp. 6006-6011 (2015).
- [III.28] K. Anderson, J. Pilcher, H. Wu, *Neutron Irradiation Tests of an S-Link-over-G-Link System*, ATLAS Tile Calorimeter internal document (1999).
- [III.29] M. Benmosbah, *Spectrométrie des neutrons : étude de la réponse d’un ensemble de compteurs proportionnel*, Thèse de Doctorat, Université de Franche-Comté, pp. 15-16 (2005).
- [III.30] *MATLAB and Statistics Toolbox Release 2012b*, The MathWorks, Inc., Natick, Massachusetts, United States.
- [III.31] R. Coulon, J. Dumazert, V. Kondrasovs, S. Normand, “Implementation of a nonlinear filter for online nuclear counting”, *Radiation Measurements*, Vol. 87, pp. 13-23 (2016).
- [III.32] M.-M. Bé, V. Chisté, $^{252}_{98}\text{Cf}$, *Table de radionucléides*, LNE-LNHB/CEA (2007).
- [III.33] A. B. Smith, P. R. Fields, A. M. Friedman, “Prompt Gamma Rays Accompanying the Spontaneous Fission of Cf^{252} ”, *Physical Review*, Vol. 104, N° 3, pp. 699-702 (1956).
- [III.34] R. B. Hayes, “Preliminary Benchmarking Efforts and MCNP Simulation Results for Homeland Security”, *Nuclear Technology*, Vol. 168, N° 3, pp. 852-857 (2008).
- [III.35] T. E. Valentine, *Evaluation of Prompt Gamma Rays for Use in Simulating Nuclear Safeguard Measurements*, ORNL/TM/-1999/300, Oak Ridge National Laboratory, Oak Ridge, Tennessee (1999).
- [III.36] www.vacutec-gmbh.de/fileadmin/user/Prospekt_He-3_Neutron_Detectors.pdf
- [III.37] M. E. Medhat, Y. Wang, “Estimation of background spectrum in a shielded HPGe detector using Monte Carlo simulations”, *Applied Radiation and Isotopes*, Vol. 84, pp. 13-18 (2014).
- [III.38] Légifrance, “Arrêté du 15 mai 2006 relatif aux conditions de délimitation et de signalisation des zones surveillées et contrôlées et des zones spécialement réglementées ou interdites compte tenu de l'exposition aux rayonnements ionisants, ainsi qu'aux règles d'hygiène, de sécurité et d'entretien qui y sont imposées”, *Journal Officiel de la République Française*, N° 0223, p. 16327 (2006).
- [III.39] J. B. Birks, *The Theory and Practice of Scintillation Counting*, Pergamon Press, International Series of Monographs on Electronics and Instrumentation, Vol. 27, pp. 97-98, pp. 185-188 (1964).
- [III.40] J.-C. Bünzli, “Lanthanide Luminescence for Biomedical Analyses and Imaging”, *Chemical Review*, Vol. 110, pp. 2729-2755 (2010).

CHAPITRE IV : SCHEMA DE COMPTAGE NEUTRONIQUE PAR UNE SPHERE DE PLASTIQUE SCINTILLANT AVEC UN CŒUR DE GADOLINIUM

Dans le Chapitre III, nous avons présenté une mise en œuvre de la signature à basse énergie des captures de neutrons thermiques par le gadolinium. Nous cherchons, dans ce chapitre, à mettre en œuvre la signature gamma prompte à haute énergie des désexcitations radiatives du gadolinium. Nous avons vu, au Chapitre I, que cette stratégie consiste à quantifier, au-dessus d'un seuil supérieur à 2,6 MeV, la signature de cette traîne gamma prompte. A cette fin, un capteur de rayonnement sensible aux photons de haute énergie est nécessaire. L'enjeu étant de proposer une alternative économiquement viable aux détecteurs à hélium 3, ce capteur doit en outre présenter un coût modéré. La solution proposée est celle d'un scintillateur plastique de volume élevé, typiquement de l'ordre du décimètre cube.

Selon ces contraintes, le dosimètre neutronique de référence dans l'état de l'art scientifique aussi bien que sur le marché demeure la sphère dite de Bonner à hélium 3, décrite dans le paragraphe 3.2 de l'Introduction. Il s'agit d'un compteur proportionnel à gaz d'hélium 3 sous pression, enveloppé d'une coquille sphérique de matériau modérateur. Le modérateur thermalise le rayonnement incident de façon à maximiser le taux de capture neutronique dans le compteur central. D'une masse inférieure à la dizaine de kilogrammes, ces appareils sont transportables. Ils possèdent une excellente sensibilité neutronique conjuguée à une très faible sensibilité au rayonnement photonique, respectivement de l'ordre du coup par nanosievert et de la dizaine de microsievert par heure en présence d'un débit de dose gamma pouvant atteindre 10 mSv.h^{-1} . C'est donc en alternative à ce dernier schéma de détection que sont élaborées des stratégies d'exploitation des interactions neutroniques, mettant en œuvre différents convertisseurs du rayonnement et différents capteurs de la signature de cette conversion. C'est également par rapport aux performances des sphères de Bonner à hélium 3 que les facteurs de mérite de ces schémas alternatifs doivent être évalués.

PARTIE I : Etude bibliographique

Le gadolinium a été mis en œuvre dans les détecteurs neutroniques à scintillation inorganique, tel que les cristaux de borure de lithium et gadolinium [IV.1] ou des céramiques dans lesquelles il est inséré sous forme d'oxyde [IV.2, IV.3]. La recherche d'alternatives aux cristaux inorganiques se justifie par les coûts de réalisation, ainsi que les limites en termes de passage à l'échelle et de flexibilité géométrique rencontrées avec ces derniers. Des réseaux de fibres incluant un verre de gadolinium ont ainsi été décrits [IV.4], autorisant une montée en volume sans excéder le coût d'un détecteur à hélium 3. Reprenant le concept d'une coquille de type Bonner avec une géométrie sphérique, Beil *et al.* [IV.5] ont conçu un détecteur neutronique dans lequel le compteur à hélium 3, au centre du thermaliseur, est remplacé par un cœur formé d'un scintillateur liquide chargé en gadolinium. Les risques présentés par les scintillateurs liquides, en raison de leur point éclair à température modérée et des fuites potentielles de matière toxique, sont toutefois été mentionnés dans cette référence.

L'ensemble de ces limitations a orienté les recherches vers le déploiement de solutions à base de scintillateurs plastiques, tels que les systèmes de nanoscintillateurs dans lequel le gadolinium est incorporé sous forme de grenat, d'halogénure ou d'oxyde [IV.6]. Après

comparaison de l'opportunité de disperser le gadolinium sous la forme de sphères cristallines dans une matrice de scintillateur plastique ou de l'intercaler en feuilles ou plaques entre des blocs de tels plastiques [IV.7], l'approche la plus répandue dans les travaux récents incline vers la seconde de ces deux stratégies. Ainsi, le principe breveté par Richard [IV.8], qui consiste à envelopper des scintillateurs inorganiques dans les feuilles de gadolinium, a été adapté à des systèmes dans lesquels des barreaux de scintillateurs plastiques forment le capteur de rayonnement [IV.9]. De la même manière, les systèmes fondés sur des lignes de scintillateur à iodure de lithium 6 intercalées entre des blocs de matière hydrogénée thermalisant les neutrons incidents, selon le principe breveté par Polichar *et al.* [IV.10], se trouvent transposés dans des prototypes du type de celui introduit dans le cadre du projet européen FP7 SCINTILLA sous le titre de *Gadolinium-lined plastic scintillator* [IV.11].

L'auteur présente un système de détection neutronique mettant en œuvre la capture des neutrons dans des feuilles de gadolinium, intercalées entre de larges blocs de plastique scintillant. Les blocs de plastique jouent à la fois le rôle de modérateurs du rayonnement neutronique et, lorsque les neutrons ralentis sont capturés dans le gadolinium, de capteurs de la signature gamma prompte à haute énergie. Ces structures duales feuille de gadolinium / scintillateur plastique sont juxtaposées pour former des moniteurs-portiques de détection du rayonnement de grand volume, de l'ordre de la centaine de décimètres cubes.

Ce chapitre décrit l'étude d'une transposition de cette méthode de détection, dont le but est de ramener le système à des dimensions transportables. La détection est fondée sur la signature gamma prompte à haute énergie des captures $Gd(n, \gamma)$, dans un scintillateur plastique de volume voisin de celui d'une sphère de Bonner à hélium 3 (700 à 1300 cm³). Ces dimensions rendent notamment son déploiement compatible avec des applications de protection contre les rayonnements fonctionnant en temps réel.

PARTIE II : Présentation de la méthode de détection et de comptage

1. Principe de la méthode de détection

Le principe du schéma de détection de rayonnement neutronique exposé dans ce paragraphe a fait l'objet d'une demande de dépôt de brevet, référencée en [IV.12]. Ce principe repose sur l'insertion d'un cœur riche en gadolinium, sous forme de métal, d'oxyde, d'alliage, de grenat ou autre, à l'intérieur d'un scintillateur plastique de géométrie sphérique et de volume décimétrique. Le rayonnement neutronique incident est ralenti dans la matrice hydrogénée du scintillateur, puis capturé dans les noyaux de gadolinium 157 et 155 du cœur. Au cours de la désexcitation radiative des noyaux absorbeurs, des rayons gamma de haute énergie sont émis, comme décrit dans le Chapitre I, paragraphes 2.1 et 2.2. Ces rayonnement gamma prompts, étant donné le volume du scintillateur, sont significativement atténués dans la matrice, et génèrent une signature d'ionisation jusqu'à 8 MeV. L'énergie déposée sous forme d'ionisation par les électrons secondaires est ainsi à l'origine d'un signal de scintillation discriminable par la hauteur des impulsions (*pulse height discrimination* en anglais, abrégé PHD), de celui associé à la radioactivité gamma naturelle. Nous rappelons, en effet, que la raie la plus énergétique, associée au thallium 208 (dernier descendant de la chaîne de désintégration du thorium 232), s'élève à 2,614 MeV [IV.13]. La quantification de cette signature autorise ainsi la détection et le comptage des neutrons incidents sur le capteur.

1.1. Justification préliminaire de l'intérêt du cœur de gadolinium

Le rayonnement neutronique incident induit, par diffusion, des protons de recul qui ionisent directement le scintillateur, et sont ainsi à l'origine d'un signal de scintillation propre. Le volume du scintillateur plastique autorisé dans ce chapitre, de l'ordre du décimètre cube, contrebalance les faibles sections efficaces microscopiques de diffusion neutronique citées dans le paragraphe 3.2 de l'Introduction. Le taux de diffusion neutronique par neutron incident, et par conséquent l'amplitude de la signature des particules de recul, deviennent ainsi significatifs. Ce constat conduit donc à s'interroger sur l'intérêt d'incorporer un absorbeur et convertisseur photonique de neutrons thermiques, générateur d'une signature supplémentaire, au centre du capteur.

Le spectre de fission spontanée du californium 252 est le plus couramment utilisé pour le dimensionnement et la qualification des compteurs neutroniques, étant notamment représentatif de l'émission des sources de fission spontanée visées par la détection de matière nucléaire. Comme décrit dans la Partie VII, paragraphe 3 du Chapitre III, la densité de probabilité d'émission $f(E_n)$ associée à l'énergie cinétique E_n d'un neutron de fission du californium 252 est représentée par l'Equation (III.9) où les valeurs des paramètres sont données par $(a, b, c) = (1,025 \text{ MeV} ; 2,926 \text{ MeV}^{-1} ; 0,3016)$.

La distribution associée à ce spectre de Watt est illustrée sur la Figure IV.1. Très asymétrique, cette distribution admet un maximum de densité de probabilité à $E_{n,\max} = 900 \text{ keV}$, une espérance de l'énergie d'un neutron émis $\widehat{E}_n = 2,3 \text{ MeV}$, et présente une longue traîne à haute énergie, usuellement considérée jusqu'à 10 MeV [IV.14, IV.15]. Cette dernière valeur correspond à la borne en dessous de laquelle 99,7 % des neutrons sont émis. Le but est ici d'exploiter la signature énergétiquement supérieure au plafond de la radioactivité gamma naturelle, c'est pourquoi l'étude peut être limitée aux premières diffusions entre les neutrons de fission incidents et les noyaux d'hydrogène du milieu de détection [IV.16].

Un neutron, incident avec une énergie cinétique E_n et entrant en collision avec un noyau d'hydrogène, transfère à ce dernier une fraction de son énergie cinétique T_p . Le neutron est lui-même diffusé avec une énergie cinétique T_n . Le noyau cible ayant acquis l'énergie cinétique T_p , possède un angle de recul, noté θ_r et mesuré par rapport à la direction d'incidence du neutron. Ces énergies s'expriment en fonction de E_n et θ_r sous la forme [IV.17] :

$$T_p = E_n \cdot \cos^2(\theta_r(E_n)) \quad (\text{IV. 1})$$

$$T_n = E_n \cdot (1 - \cos^2(\theta_r(E_n))) \quad (\text{IV. 2})$$

Pour $E_n \leq 10 \text{ MeV}$, l'hypothèse d'uniformité sur les distributions $\cos^2(\theta_r(E_n))$ et $(1 - \cos^2(\theta_r(E_n)))$ en fonction de E_n est justifiée à 0,5 % [IV.17]. Une densité de probabilité $g(\cos^2(\theta_r(E_n))) = 11_{[0;1]}$, indépendante de E_n , est donc associée à $\cos^2(\theta_r(E_n))$. Ainsi, la variable aléatoire T_p est définie comme le produit de deux variables aléatoires E_n et $\cos^2(\theta_r)$ indépendantes, de densités respectives f et $11_{[0;1]}$ et prenant leurs valeurs sur \mathbb{R}^+ . Sous ces conditions, on montre, suivant la preuve décrite dans l'Annexe I, que

les valeurs prises par T_p peuvent être décrites par une fonction de densité de probabilité explicite h sous la forme :

$$\forall T_p \in]0; +\infty[, h(T_p) = \int_{\ln(T_p)}^{+\infty} C \cdot \exp\left(-\frac{e^t}{a}\right) \cdot \sinh(\sqrt{b \cdot e^t}) dt \quad (\text{IV.3})$$

La fonction h , dont la distribution est illustrée sur la Figure IV.2, permet de calculer l'espérance \widehat{T}_p associée à l'énergie d'un proton de recul de première diffusion, égale à $\widehat{T}_p = 1,15$ MeV. Cette espérance correspond à la moitié de l'espérance associée à l'énergie d'émission d'un neutron de fission du californium 252. Ce résultat est conforme à l'intuition selon laquelle le neutron moyen, émis à 2,3 MeV, va générer par diffusion un proton de recul avec un angle moyen de $\pm \frac{\pi}{4}$, lequel emportera une énergie cinétique $\widehat{T}_p = \widehat{E}_n \cdot \cos\left(\pm \frac{\pi}{4}\right) = \frac{\widehat{E}_n}{2}$. La distribution de T_p est décalée vers les basses énergies par rapport à celle de E_n , avec 99,7 % des protons de recul générés à moins de 7 MeV.

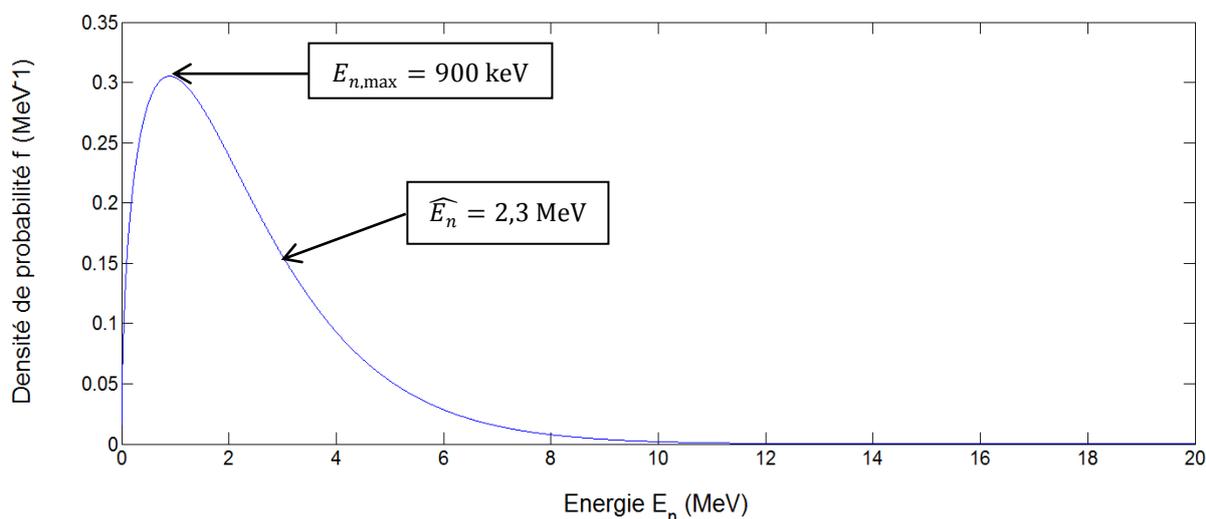


Figure IV.1 : Modèle du spectre de fission spontanée du californium 252 sur [25 meV ; 20 MeV].

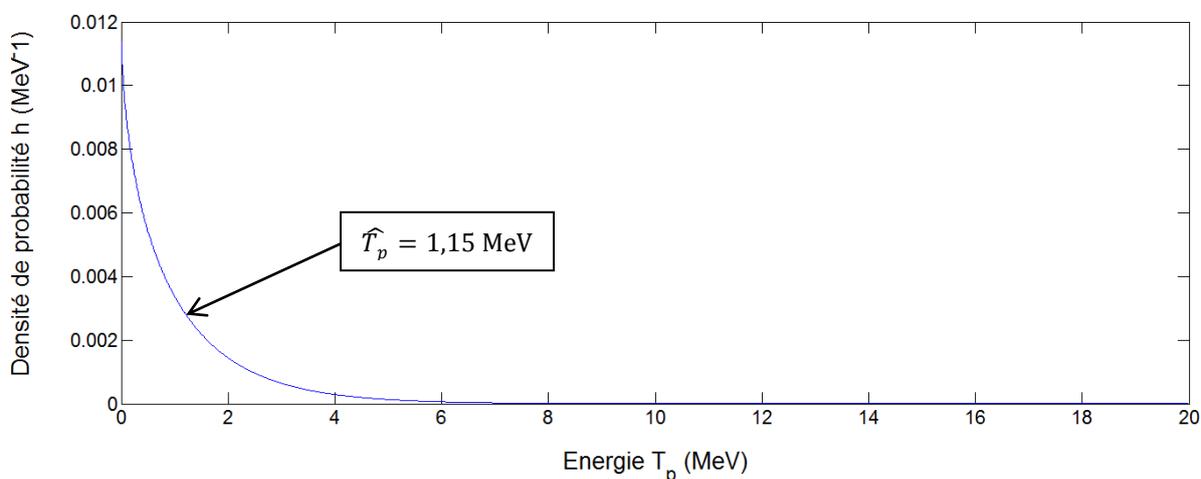


Figure IV.2 : Modèle du spectre des protons de recul de première diffusion sur [25 meV ; 20 MeV].

La valeur de 7 MeV excède bien le plafond de 2,614 MeV associé à la radioactivité gamma naturelle. Toutefois, le signal de scintillation est alors porté par les protons. Comme expliqué en Partie II, paragraphe 2.3 du Chapitre II, ce signal apparaît, par extinction de fluorescence, fortement décalé vers les basses énergies sur un axe étalonné par rapport au bruit de fond gamma (c'est-à-dire en MeV-électron équivalent ou MeVee). Or, c'est en MeVee que la réponse lumineuse peut être lue et analysée en sortie de la chaîne de mesure.

Pour un scintillateur plastique non modifié, le rapport hydrogène sur carbone est proche de l'unité (H:C = 1,100 pour le polyvinyltoluène, H:C = 0,998 pour le polystyrène), la densité également très proche de l'unité, et la valeur de $k \cdot B$ comprise entre 1,3 mm / MeV (citée pour le polystyrène [IV.18]) et 1,6 mm / MeV (reportée pour le polyvinyltoluène [IV.19]). On rend alors compte de l'extinction de fluorescence de la signature protonique *via* l'Equation (IV.4). Cette équation est tirée d'une extrapolation par Pozzi *et al.* [IV.20] des résultats expérimentaux d'irradiations protoniques entre 0 et 6,5 MeV sur un scintillateur plastique référencé BC-420, de volume décimétrique ($9,5 \times 9,5 \times 10,16$ cm) et à matrice de polyvinyltoluène :

$$T_p \text{ (MeVee)} \sim 0,034 T_p^2 \text{ (MeV)} + 0,125 T_p \text{ (MeV)} \quad (\text{IV. 4})$$

L'application de la formule de conversion au plafond calculé ci-dessus a pour résultat $T_p(7 \text{ MeV}) \sim T_p(2,66 \text{ MeVee})$, soit du même ordre que le seuil permettant de discriminer, par simple hauteur des impulsions, le signal neutronique de la radioactivité gamma naturelle. Ce premier calcul justifie donc l'étude d'une signature supplémentaire, résultant des interactions entre les neutrons ralentis dans le plastique et un cœur de gadolinium placé au centre de ce dernier.

1.2. Terme source gamma prompt à haute énergie des captures radiatives Gd(n, γ)

Le schéma de détection étudié ici repose sur l'exploitation des produits de réaction gamma prompts dans le gadolinium naturel, émis avec une énergie supérieure à 2,614 MeV, tels que décrits dans le paragraphe 2 du Chapitre I. L'extinction de fluorescence, portant sur l'énergie déposée par une raie gamma prompte d'énergie E_γ , est modélisée entre 8,1 keV et 10 MeV [IV.20] par :

$$E_\gamma \text{ (MeVee)} \sim 0,99 E_\gamma \text{ (MeV)} + 0,008 \sim E_\gamma \text{ (MeV)} \quad (\text{IV. 5})$$

Ainsi, pour un scintillateur plastique étalonné au moyen de radio-émetteurs gamma, avec une résolution énergétique attendue de l'ordre de la centaine de keV à plus de 3 MeV, la signature à haute énergie des captures radiatives Gd(n, γ) et celle de la radioactivité gamma naturelle peuvent être, conformément à la pratique, directement exprimées en MeVee. La signature des diffusions neutroniques, rapportée à cet axe étalonné au moyen de radio-émetteurs gamma, sera quant à elle convertie au moyen de l'Equation (IV.4)

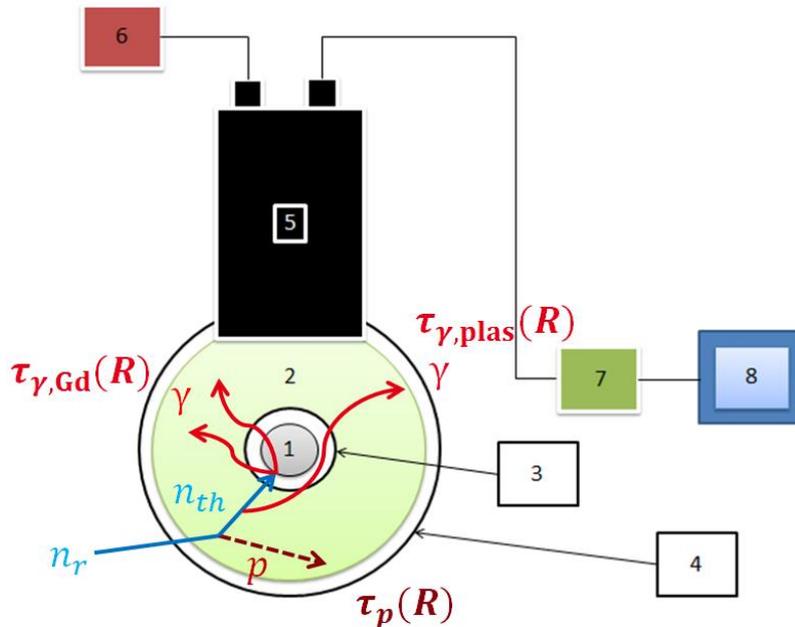
La signature à plus de 2,614 MeVee, portée par les photons gamma prompts des désexcitations $^{158}\text{Gd}^*$ et $^{156}\text{Gd}^*$, est ainsi, par nature, intégralement discriminable par la hauteur des impulsions de celle de la radioactivité gamma naturelle. L'enjeu de cette étude est de quantifier, dans un premier schéma de détection fondé sur la seule discrimination en amplitude du signal lumineux, le gain en efficacité autorisé par l'exploitation de cette

signature supplémentaire du rayonnement neutronique, dans un scintillateur plastique transportable et de coût modéré.

2. Mode de réalisation à un scintillateur

2.1. Le capteur physique

La partie *capteur* du système de détection, dont le schéma de principe est porté sur la Figure IV.3, est composée d'un cœur de gadolinium noté (1) sous forme de métal, d'oxyde, de grenat ou d'halogénure, placée au centre d'une coquille de plastique scintillant sphérique (2). Comme au Chapitre III, les symboles n_r , n_{th} , p , et γ représentent, dans l'ordre : les neutrons rapides, les neutrons thermiques, les protons de recul et les rayonnements gamma. Le choix d'une géométrie sphérique s'explique en ce qu'elle minimise les biais d'anisotropie dans les mesures de comptage, tout en maximisant la compacité à volume de scintillateur donné. Les dimensionnements respectifs du cœur et de la coquille, critiques en vue de la maximisation du signal mesuré, ont fait l'objet d'une étude par simulation présentée dans la Partie III.



Légende :

- 1 : Cœur de gadolinium
- 2 : Coquille de plastique scintillant
- 3 : Réceptacle
- 4 : Diffuseur
- 5 : Photomultiplicateur
- 6 : Alimentation haute tension
- 7 : Chaîne d'acquisition et de traitement des impulsions
- 8 : Logiciel et IHM

Figure IV.3 : Schéma de principe de mise en œuvre de la méthode de détection.

Le cœur peut être inséré à l'intérieur d'un réceptacle dédié (3), tel qu'une nacelle en Téflon dans les réalisations expérimentales. De façon à minimiser l'échappement des photons de scintillation, la surface extérieure de la coquille, hormis l'interface avec le photomultiplicateur, est recouverte d'une épaisseur de matériau diffusant (Téflon, peinture blanche diffusante) notée (4).

La conversion des photons de scintillation en signal photo-électronique est assurée par le photomultiplicateur (5) polarisé par une alimentation à haute tension (6). L'acquisition du signal électronique en sortie de (5) et le traitement des impulsions sont réalisés dans une chaîne électronique, notée (7), reliée à un logiciel (8) au niveau duquel est effectuée l'opération de comptage au-dessus d'un seuil en amplitude réglable. Le résultat de l'opération de comptage est affiché sur une interface homme-machine (IHM).

2.2. Numériseur, composant programmable, logiciel et interface homme-machine

La description de chaîne d'acquisition et de traitement des impulsions, ainsi que du logiciel, ne diffère pas de celle présentée en Partie I, paragraphes 2.2 et 2.3 du Chapitre III, à ceci près qu'il n'y a ici qu'une voie de mesure. Le seuil bas de comptage e_b est un degré de liberté de la mesure, dont la valeur doit être au moins égale à 2,614 MeV, et peut être élevée en présence d'un empilement significatif. Le seuil haut e_h est également réglable, et par défaut fixé au maximum autorisé par la dynamique de codage du convertisseur analogique-numérique. En l'absence de compensation dans ce schéma à une voie, l'estimée du taux de comptage neutronique est directement fournie en sortie de l'algorithme de lissage appliqué au signal compté entre les bornes e_b et e_h .

3. Mode de réalisation à deux scintillateurs et discrimination neutron / gamma

3.1. Mode de réalisation à deux scintillateurs

Le mode de réalisation à un scintillateur présenté dans le paragraphe précédent est construit sur le postulat qu'aucun émetteur de rayonnements gamma à une énergie supérieure à 2,614 MeV n'existe à proximité du détecteur. Ce postulat correspond à la plupart des applications réelles en matière de radioprotection comme de sécurité. Le cas échéant, toutefois, un tel émetteur serait identifié à une source de rayonnement neutronique. Les guides normatifs à destination des portiques-moniteurs de détection du rayonnement [IV.21] soulignent la présence de l'isotope de thorium 232 dans des pièces aussi variées que des garnitures de freins, des moteurs à réaction ou des briques réfractaires. Or le spectre d'émission gamma de thorium 232 s'étend au-delà de 3,2 MeV [IV.22]. De façon similaire, dans le cadre très spécifique du transport de crayons de combustible usagé, des produits de fission et des produits d'activation des gaines en acier sont susceptibles de générer des rayonnements gamma de haute énergie, dont la détection pourrait être confondue avec une fuite neutronique du crayon [IV.23]. Afin de rendre la mesure robuste en présence de tels émetteurs, une amélioration du schéma de détection est décrite par l'ajout, à la surface de la coquille de plastique scintillant, d'une couche d'un second scintillateur auquel est incorporé un isotope à forte section efficace de réaction avec les neutrons thermiques. Ce second scintillateur doit par ailleurs présenter :

- la plus faible probabilité d'interaction avec les rayonnements gamma émis au-dessus 2,614 MeV possible, sous la forme d'une couche mince et de numéro atomique effectif faible ;
- une constante de temps de décroissance significativement plus élevée que celle de la coquille scintillante (typiquement de l'ordre de 1 à 10 ns) de façon à autoriser une discrimination par la forme des impulsions entre les réponses des deux scintillateurs.

L'incorporation dans un polymère transparent de particules fines de fluorure de lithium 6 noté ${}^6\text{LiF}$ (enrichissement en isotope 6 supérieur à 95 %) et de cristaux inorganiques scintillants de sulfure de zinc dopé à l'argent, noté ZnS:Ag et de constante de décroissance de l'ordre de la centaine de nanosecondes [IV.24] remplit, par exemple, la triple condition de : sensibilité aux neutrons thermiques, haute réjection gamma et discriminabilité par la forme des impulsions. Le principe de cette évolution du schéma de détection est illustré sur la Figure IV.4, sur laquelle les épaisseurs diffusantes (blanc de titane, Téflon) n'ont pas été reproduites par souci d'allègement. La confrontation d'un signal de détection neutronique faible en sortie du second scintillateur et d'un signal significatif en sortie de l'ensemble initialement présenté dans le paragraphe précédent met alors en évidence la présence de rayonnements gamma d'énergie supérieure au seuil de comptage au lieu d'une émission neutronique. Les problématiques touchant au dépôt homogène du ${}^6\text{LiF:ZnS}$ sur une sphère décimétrique de plastique, ainsi que de collecte des photons de scintillation émis par cette couche additionnelle, restent toutefois à aborder.

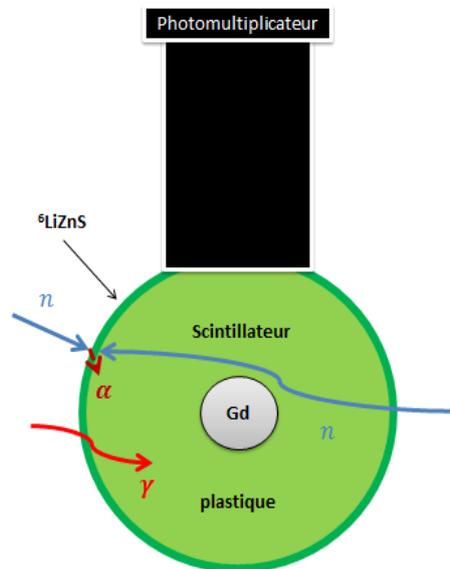


Figure IV.4 : Schéma de principe d'une consolidation de la mesure à base de deux scintillateurs plastiques.

3.2. Scintillateur plastique discriminant neutron / gamma

Le spectre d'émission neutronique par fission spontanée du californium 252 est représentatif des spectres de fission visés par la plupart des applications détaillées dans les paragraphes 2.2 et 2.3 de l'Introduction (dosimétrie en infrastructure nucléaire, suivi d'activité, détection de matière nucléaire). Plusieurs émetteurs neutroniques, notamment utilisés dans les laboratoires d'étalonnage, possèdent néanmoins une densité de probabilité d'émission $f(E_n)$ pondérée à plus haute énergie, tels que le plutonium-béryllium (PuBe) ou l'américium-béryllium (AmBe).

Dans le cas de l'émission de l'AmBe, qui est, avec celle du californium 252, la plus couramment utilisée pour la qualification des détecteurs neutroniques, le spectre neutronique est usuellement décrit jusqu'à près de 11 MeV [IV.25] et possède une espérance de l'énergie d'un neutron émis $\widehat{E}_n = 4,4$ MeV, soit près de deux fois supérieure à celle du californium 252.

La densité de probabilité f décrite par pas de 100 à 200 keV selon la norme ISO 8592-2, recommandée par l'AIEA, est reproduite sur la Figure IV.5 et met en évidence une traîne beaucoup plus significative à très haute énergie. Sur la base de cette distribution, la fonction de répartition associée à la Figure IV.5 est reconstruite, puis utilisée en conjonction avec l'Equation (IV.1) pour paramétrer un tirage Monte-Carlo sur l'énergie du proton de recul de première diffusion T_p , conduit à l'aide du logiciel Matlab. La densité de probabilité $h(T_p)$ (non normalisée) obtenue à l'issue de la simulation est reproduite sur la Figure IV.6. L'espérance \widehat{T}_p associée à l'énergie d'un proton de recul de première diffusion, obtenue par calcul, est égale à $\widehat{T}_p = 1,9$ MeV, soit une fois encore voisine la moitié de l'espérance $\widehat{E}_n = 4,4$ MeV. Le plafond d'énergie bornant 99,7 % de la densité de probabilité h , pour un rayonnement neutronique issu d'une source d'AmBe, est égale à 9,6 MeV, soit une équivalence en électrons calculée selon l'Equation (IV.4) de 4,6 MeVee.

Dans le mode de réalisation décrit au paragraphe 2, les contributions au signal à plus de 2,614 MeVee des protons de recul générés par la diffusion des neutrons rapides et des raies gamma issues des captures des neutrons thermiques, sont sommées sans discrimination. Or, comme l'illustre la comparaison des spectres de protons de recul de première diffusion du californium 252 et de l'AmBe, le rapport de ces deux contributions est susceptible d'apporter une information sur la distribution en énergie du rayonnement neutronique incident sur le capteur. Pour avoir accès à ce rapport, il est nécessaire que la préparation du plastique scintillant autorise une discrimination neutron / gamma, telle qu'introduite en Partie II, paragraphe 5 du Chapitre II. Dans un tel scintillateur, qui se substituerait alors à la coquille de scintillateur plastique non-discriminant, les rapports entre l'aire sous l'impulsion de scintillation à droite d'un seuil temporel (charge lente), l'aire sous cette même impulsion à gauche dudit seuil (charge rapide) et l'aire totale sous l'impulsion permettent de classer les événements en deux familles :

- les reculs protoniques induits par les neutrons rapides ;
- les électrons générés par effets photoélectriques et Compton des rayonnements gamma prompts.

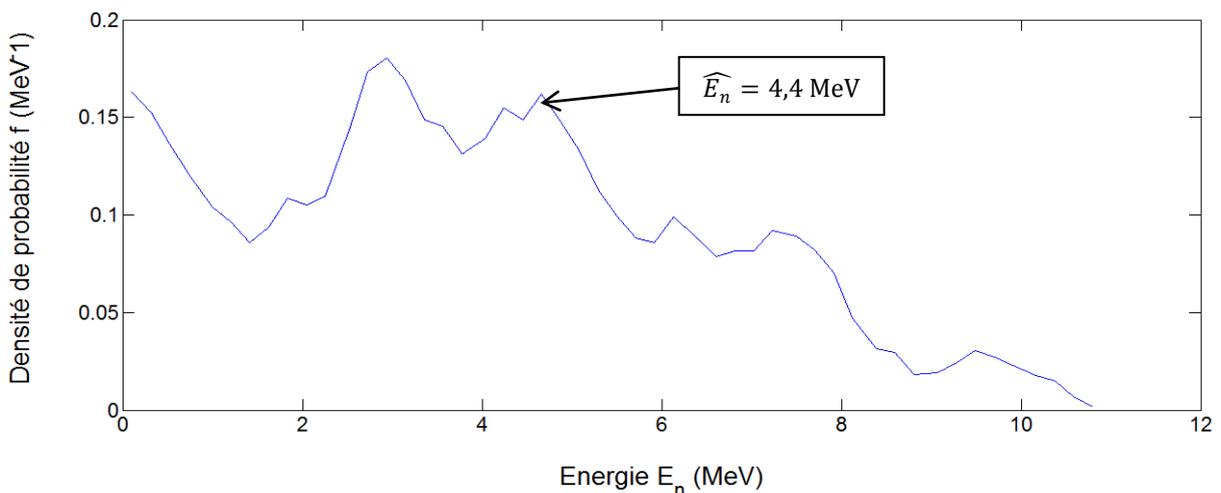


Figure IV.5 : Modèle du spectre d'émission neutronique de l'américium-béryllium (AIEA).

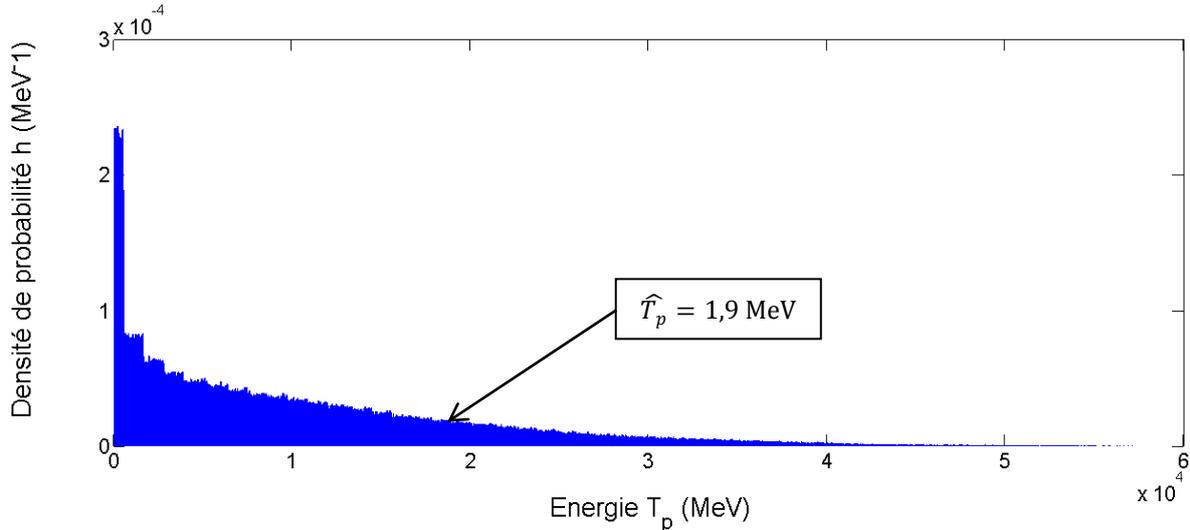


Figure IV.6 : Modèle du spectre des protons de recul de première diffusion de l'américium-béryllium.

Diverses préparations ont montré d'excellentes propriétés de discrimination neutron / gamma au-dessus de 500 keVee avec une longévité de plusieurs années, dont une à base de polystyrène autorisant une montée en capacité jusqu'à environ 1 litre [IV.26]. Il reste à vérifier que de tels milieux scintillants s'avèrent compatibles avec les volumes décimétriques prévus pour la mise en œuvre du schéma de détection décrit dans cette partie. Utilisés dans la coquille enveloppant le cœur de gadolinium, ils délivreraient alors un troisième type de signal, qui identifierait la contribution des protons de recul à haute énergie.

Les perspectives d'amélioration pointées dans ce paragraphe ont pour but de rendre la mesure du rayonnement à la fois plus robuste et plus complète, au prix d'une complexification de la chaîne de traitement des impulsions de scintillation, scindée en trois voies de signal. Le principe de ce schéma de détection, qui constitue une amélioration incrémentale du premier, a fait l'objet d'une seconde demande de dépôt de brevet, référencée en [IV.27].

PARTIE III : Dimensionnement d'un détecteur neutronique efficace par simulation

1. Dimensionnement par simulation d'un premier prototype pour l'évaluation des facteurs de mérite

Nous avons présenté dans la Partie II le principe de la méthode de détection. Afin d'attribuer de premiers facteurs de mérite au schéma de détection, il nous faut le réaliser en un point. Le dimensionnement d'un premier détecteur neutronique en vue de l'étude expérimentale du principe décrit dans la Partie II, paragraphe 2, est conduit par simulation au moyen du code MCNPX2.6.0.

Dans la simulation, nous faisons le choix d'une géométrie sphérique, conformément à la vue en coupe de la Figure IV.3. Le cœur de gadolinium est modélisé par une sphère pleine de rayon r , le scintillateur plastique qui l'enveloppe une coquille sphérique de rayon R (mesuré à partir du centre géométrique de l'ensemble). Le réceptacle est négligé dans le dimensionnement. En effet, l'atténuation d'un rayonnement gamma d'énergie comprise entre 2 MeV et 9 MeV par une épaisseur de 3 mm de polytétrafluoroéthylène (représentative de la

nacelle de Téflon utilisée pour la réalisation du prototype), calculée à partir des coefficients d'atténuation de la base de données du National Institute of Standards and Technology [IV.28], est inférieure ou égale à 1 %.

Le cœur de gadolinium naturel est simulé avec une pureté théorique de 100 %, selon les proportions isotopiques sont du Tableau I.1. La masse volumique du gadolinium est prise égale à $\rho_{Gd} = 7,901 \text{ g.cm}^{-3}$. La masse du cœur est fixée à la valeur de $m_{Gd} = 8,4 \text{ g}$, correspondant au chargement disponible pour la réalisation du premier prototype, décrite dans la Partie IV. Ce chargement modéré en masse doit permettre une première estimation de la sensibilité neutronique du capteur tout en limitant le coût primaire de fabrication. Sous l'hypothèse de sphéricité parfaite, ce chargement équivaut à un rayon $r = \sqrt{\frac{3m_{Gd}}{4\pi\rho_{Gd}}} = 0,633 \text{ cm}$ du convertisseur central. Le milieu plastique scintillant sera synthétisé suivant la composition décrite dans la Partie IV, paragraphe 1, modélisable par les proportions massiques suivantes : 86,4 %m de carbone ; 7,7 %m d'hydrogène ; 5,7 %m d'oxygène ; 0,2 %m d'azote. Une masse volumique $\rho_{PS} = 1,07 \text{ g.cm}^{-3}$ est déterminée pour la coquille de scintillateur plastique, évaluée au moyen d'une balance de pesée. La carte benz.01t du code MCNPX2.6.0 est utilisée pour rendre compte de la structure styrénique de la matrice plastique.

Le rayon R de la coquille de plastique est la *variable* de cette étude de dimensionnement, en fonction de laquelle le taux d'interactions utiles pour la détection neutronique par PHD est évalué.

L'émetteur de rayonnement neutronique utilisé pour le dimensionnement est une source ponctuelle de californium 252 d'émission isotrope, dont le spectre est décrit par le jeu de constantes explicité en Partie II, paragraphe 1.1 entre 25 meV et 20 MeV. La source ponctuelle est simulée à une distance $d = 10 \text{ cm}$ du point le plus proche à la surface du scintillateur plastique.

Le tally 4 du code MCNPX2.6.0, couplé à la carte multiplicatrice FM 102, fournit un taux de captures radiatives $Gd(n, \gamma)$ des neutrons de fission émis par la source dans le cœur de gadolinium naturel. Ce taux est noté $\tau_{cn,Gd}(R)$ et exprimé en captures neutroniques par neutron émis ($cn.n^{-1}$). Le taux de dépôt d'énergie du terme source gamma prompt est noté $\tau_{\gamma,Gd}(R)$ et exprimé en dépôt d'énergie gamma par neutron émis ($d_{\gamma}.n^{-1}$). Il est évalué au moyen du tally 8 pour les produits de réaction $Gd(n, \gamma)$ générés avec la librairie ENDF/B-VII.0. Cette librairie est retenue dans cette étude pour la modélisation du continuum et des raies les plus intenses à haute énergie, sur la base de la discussion du Chapitre I, paragraphes 2.2 et 2.3.

Le scintillateur plastique modélisé est composé d'atomes présentant, pour la capture radiative des neutrons thermiques, une section efficace microscopique inférieure à 1 barn. Toutefois, dans le cadre de cette étude, le volume du milieu scintillant représente jusqu'à trois ordres de grandeur de plus que celui du convertisseur de gadolinium. Ceci nous interdit de négliger la contribution à la signature gamma totale, notée $\tau_{\gamma}(R)$, des dépôts d'énergie $\tau_{\gamma,plas}(R)$ produits par les captures *dans le scintillateur plastique*. Nous avons ainsi $\tau_{\gamma}(R) = \tau_{\gamma,Gd}(R) + \tau_{\gamma,plas}(R)$. Les réactions concernées, avec la section efficace

microscopique $\sigma_{E_{th}}$ [IV.29] et l'encadrement en énergie E_γ des rayonnements gamma produits [IV.30], se déclinent comme suit :

- réaction $^1\text{H}(n, \gamma) : \sigma_{E_{th}} = 333 \text{ mb}, E_\gamma = 2,22 \text{ MeV} ;$
- réaction $^2\text{H}(n, \gamma) : \sigma_{E_{th}} = 0,5 \text{ mb}, E_\gamma = 6,25 \text{ MeV} ;$
- réaction $^{12}\text{C}(n, \gamma) : \sigma_{E_{th}} = 3,5 \text{ mb}, 595 \text{ keV} \leq E_\gamma \leq 4,95 \text{ MeV} ;$
- réaction $^{13}\text{C}(n, \gamma) : \sigma_{E_{th}} = 1,4 \text{ mb}, 495 \text{ keV} \leq E_\gamma \leq 8,17 \text{ MeV} ;$
- réaction $^{14}\text{N}(n, \gamma) : \sigma_{E_{th}} = 80 \text{ mb}, 131 \text{ keV} \leq E_\gamma \leq 10,83 \text{ MeV} ;$
- réaction $^{16}\text{O}(n, \gamma) : \sigma_{E_{th}} = 0,2 \text{ mb}, 871 \text{ keV} \leq E_\gamma \leq 4,19 \text{ MeV} ;$
- réaction $^{18}\text{O}(n, \gamma) : \sigma_{E_{th}} = 0,2 \text{ mb}, 18 \text{ keV} \leq E_\gamma \leq 4,01 \text{ MeV}.$

Afin d'isoler, dans le tally 8, la contribution $\tau_{\gamma, \text{Gd}}(R)$ des captures dans le cœur de gadolinium, un cœur vide est substitué à ce dernier pour chaque rayon R simulé, et la différence des taux de dépôt permet de séparer la signature des captures $\text{Gd}(n, \gamma)$ de celles des réactions listées ci-dessus.

Le milieu scintillant est un plastique non chargé en atomes lourds, de rapport H: (C + O + N) = 1,019 et de masse volumique $\rho_{PS} = 1,07 \text{ g.cm}^{-3}$, extrêmement proches de ceux de la matrice de polyvinyltoluène de référence (H: (C + O + N) = 1,105, $\rho_{PVT} = 1,03 \text{ g.cm}^{-3}$) étalonnée en équivalence électronique par les relations de Pozzi *et al.* Ceci justifie l'utilisation de l'Equation (IV.4) pour la prise en compte de l'extinction de fluorescence du signal porté par les protons de recul dans le scintillateur décrit ci-dessus [IV.26]. Le taux de dépôt énergétique des protons de recul, noté $\tau_p(R)$ et exprimé en dépôt d'énergie protonique par neutron incident ($d_p.n^{-1}$), est évalué au moyen du tally 8 avec adjonction du tally 6 muni de l'option Pulse Height Light (PHL). Le spectre de recul protonique est enfin rapporté à celui de la signature gamma par application de l'Equation (IV.4).

Les Figures IV.7, IV.8, IV.9 et IV.10 présentent, respectivement, l'évolution des taux $\tau_{\text{cn}}(R)$, $\tau_{\gamma, \text{Gd}}(R)$, $\tau_\gamma(R)$ et $\tau_p(R)$ en fonction du rayon R de la coquille de scintillateur plastique, variant par pas de 2 cm entre $R = 4 \text{ cm}$ et $R = 18 \text{ cm}$. Les taux de dépôt $\tau_{\gamma, \text{Gd}}(R)$, $\tau_\gamma(R)$ et $\tau_p(R)$ sont décrits pour des seuils de comptage placés à 2,6 MeVee, 3 MeVee, 4 MeVee, 5 MeVee et 6 MeVee. La répétabilité des tendances, ainsi que des amplitudes relatives, des taux présentés sur les Figures IV.8 à IV.10 a été vérifiée pour des distances détecteur-source comprises entre $d = 10 \text{ cm}$ et $d = 60 \text{ cm}$.

La Figure IV.7 montre qu'au-delà d'un rayon $R \sim 10,5 \text{ cm}$, l'effet adjuvant de la modération du rayonnement neutronique incident par un plus grand volume de plastique est contrebalancé par la dispersion spatiale des neutrons après diffusion. Les neutrons sont alors capturés dans le cœur avec une moindre probabilité (effet dit de *collimation* du thermaliseur). Ce dernier résultat est en accord avec le dimensionnement de la coquille de polyéthylène enveloppant un compteur proportionnel à hélium 3 dans l'état de l'art, avec, par exemple, un optimum déterminé au voisinage de $R \sim 11 \text{ cm}$ par Rühm *et al.* [IV.31].

Le dimensionnement d'un prototype mettant en œuvre la signature des captures radiatives $\text{Gd}(n, \gamma)$, pour le volume donné du cœur, s'appuie sur les caractéristiques de la Figure IV.8.

Ces caractéristiques mettent en évidence une plage d'optimisation comprise entre $R = 12$ cm et $R = 16$ cm, résultat d'un compromis entre les taux de captures de la Figure IV.7 et l'atténuation du rayonnement gamma prompt par le plastique. Sur la base de la contrainte de transportabilité du détecteur formulée dès l'introduction, le choix a été fait de réaliser le premier prototype dans un moule sphérique dont les dimensions approchent le plus possible, et par valeurs inférieures, la plage d'optimisation définie ci-dessus, soit un ballon commercial d'une capacité de 6 litres pour un rayon $R = 11,8$ cm.

Dans un simple schéma de comptage par PHD, c'est-à-dire de discrimination par amplitude, l'efficacité de détection neutronique, à valeurs de r et de R fixées, est donnée par la somme de $\tau_\gamma(R)$ et $\tau_p(R)$. La Figure IV.9 illustre une croissance continue de la signature gamma totale du rayonnement neutronique dans le plastique. La Figure IV.10 décrit, de façon similaire, une évolution croissante et continue de $\tau_p(R)$ avec le volume de plastique, c'est-à-dire avec le nombre d'atomes d'hydrogène présents dans le capteur.

Considérons le cas d'une coquille de scintillateur plastique de rayon $R = 11,8$ cm, égale à la valeur retenue pour la réalisation d'un premier prototype. Pour les seuils en énergie les plus bas, soit 2,6 MeVee et 3 MeVee, la signature totale est dominée par les produits de réactions avec les noyaux du scintillateur et les reculs de protons. L'insertion du convertisseur de gadolinium apporte alors, sur la base des résultats de simulation, un gain sur la signature totale, c'est-à-dire sur l'efficacité de détection, de $24 \pm 1\%$ (2,6 MeVee) à $32 \pm 1\%$ (3 MeVee). Le seuil en énergie, néanmoins, constitue un degré de liberté essentiel du schéma de détection, dont l'élévation permet de limiter les faux positifs en présence d'un fort empilement ou de radio-émetteurs gamma à haute énergie (thorium 232). Or, pour les seuils en énergie les plus élevés, la signature $Gd(n, \gamma)$ attendue représente un gain d'efficacité d'un facteur 2,5 (5 MeVee) à 3,2 (6 MeVee) par rapport à une sphère de plastique sans convertisseur, et ce pour un cœur de gadolinium de masse et de coût très limités (8,4 g, 65 €). Nous avons ainsi mis en évidence l'enrichissement de la signature à haute énergie autorisée par l'ajout du cœur de gadolinium.

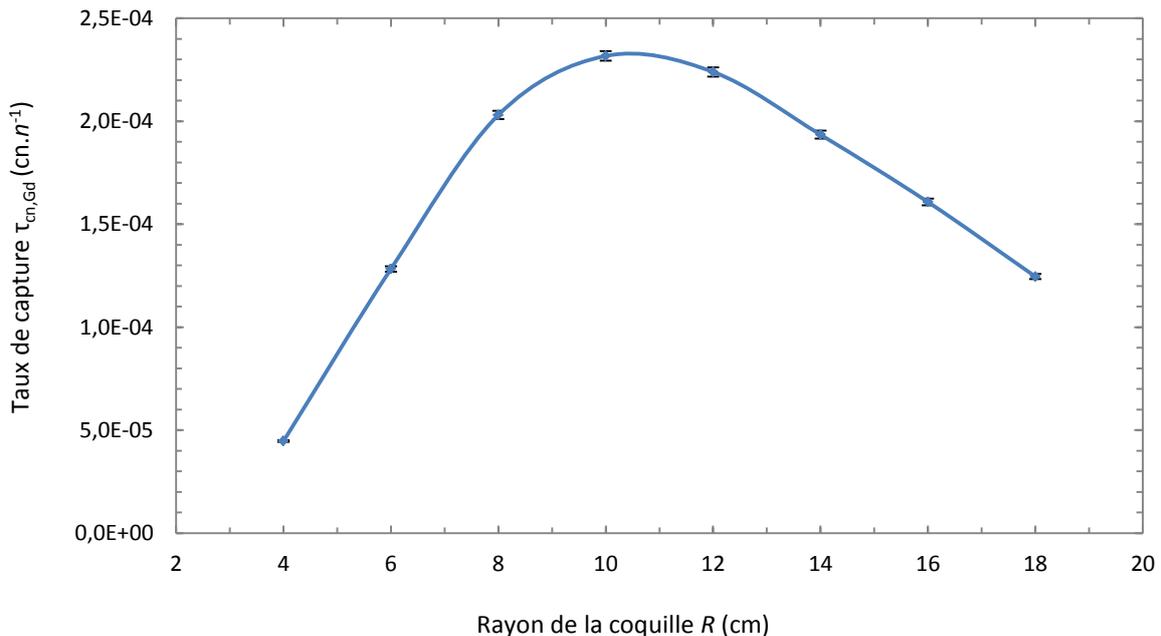


Figure IV.7 : Evolution du taux de capture $\tau_{cn,Gd}$ en fonction du rayon R .

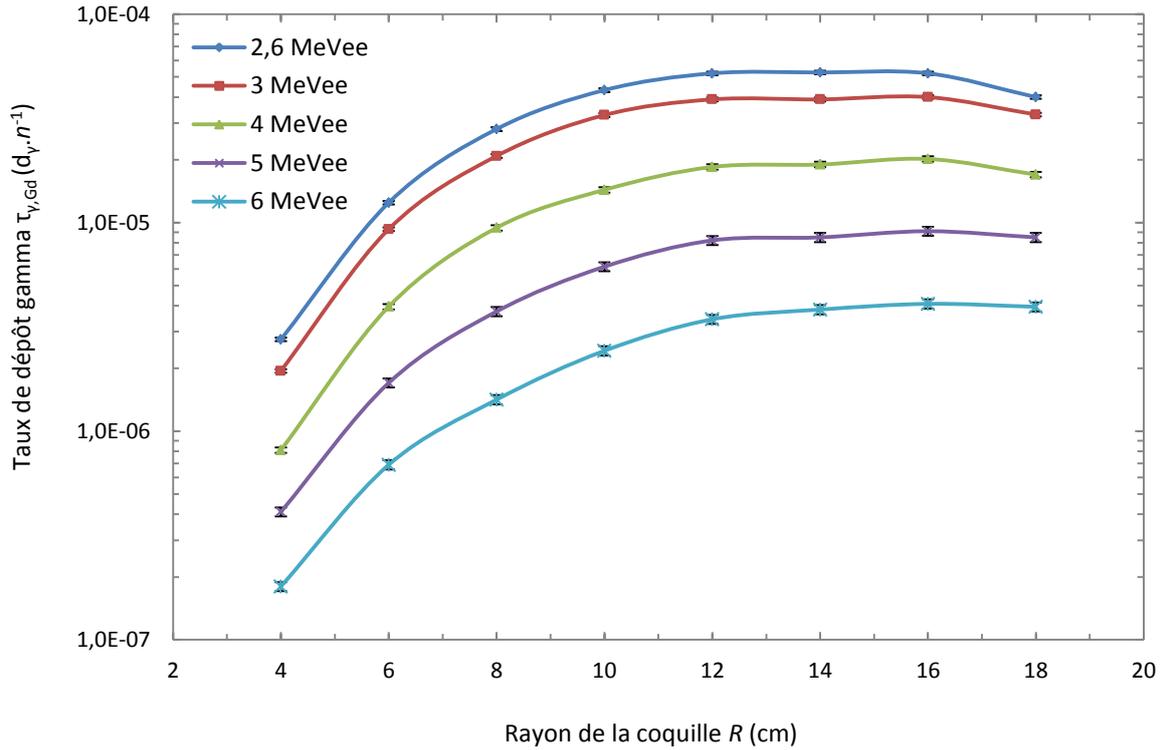


Figure IV.8 : Evolution du taux de dépôt $\tau_{\gamma,Gd}$ en fonction du rayon R pour différents seuils de comptage.

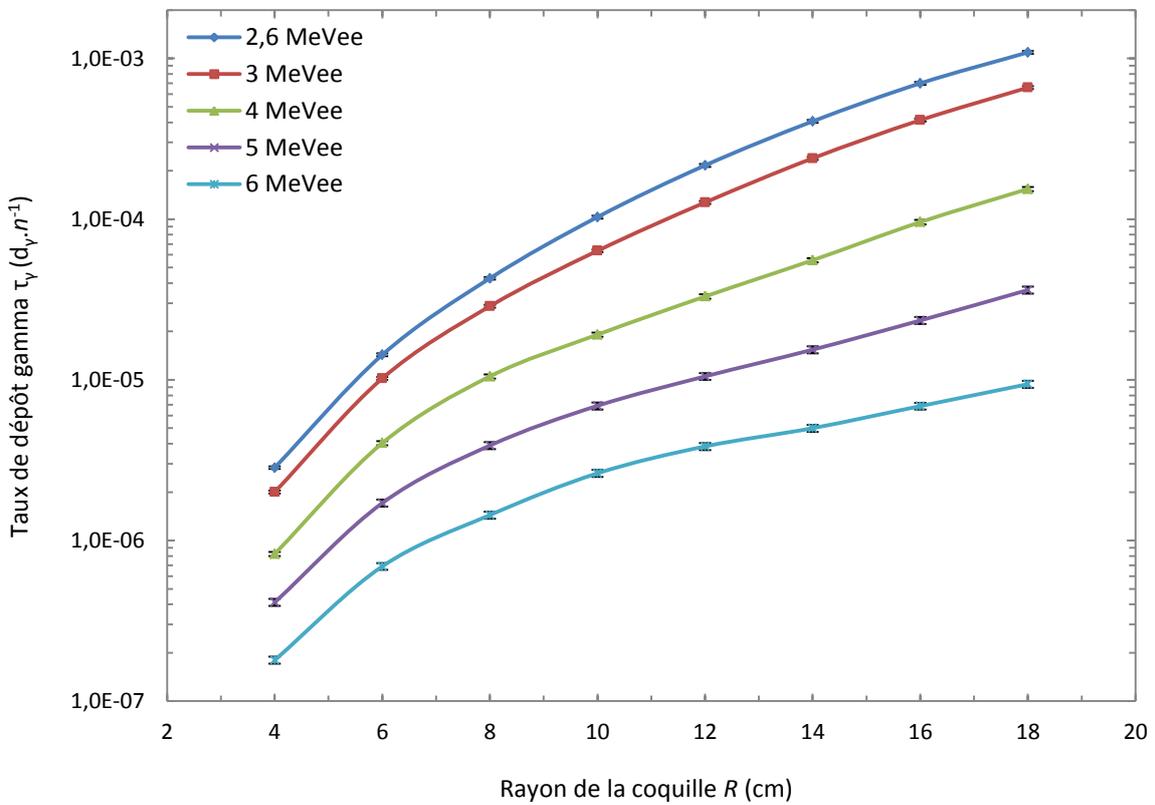


Figure IV.9 : Evolution du taux de dépôt τ_{γ} en fonction du rayon R pour différents seuils de comptage.

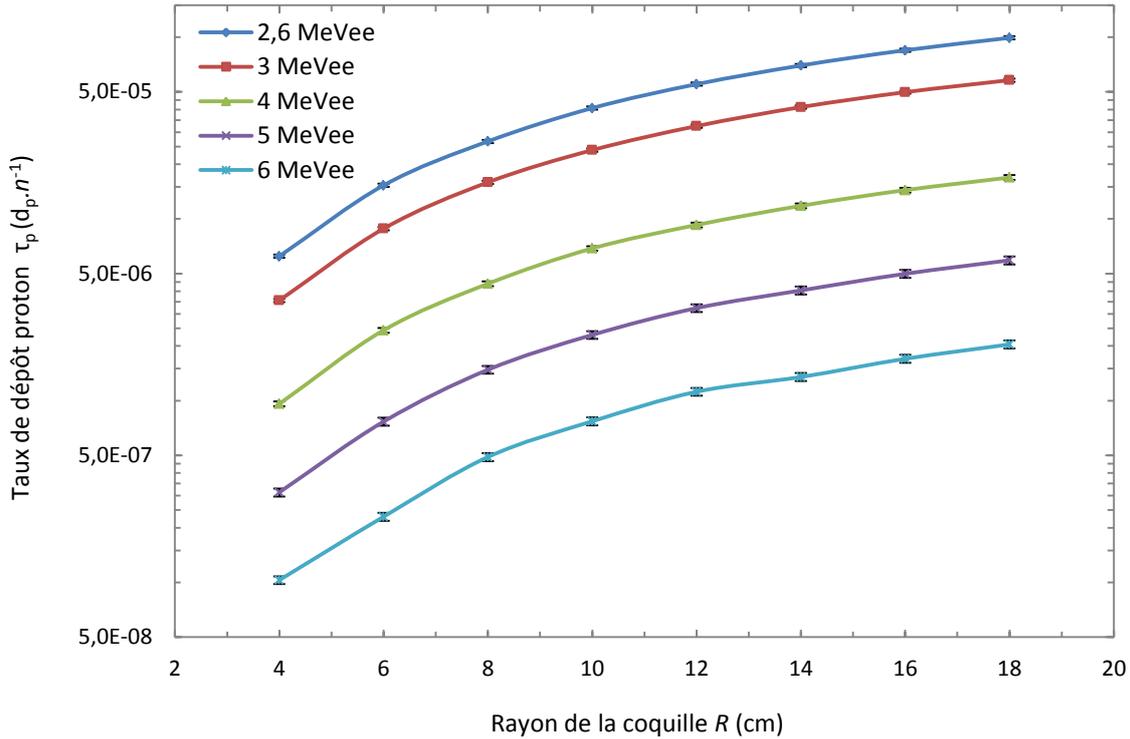


Figure IV.10 : Evolution du taux de dépôt τ_p en fonction du rayon R pour différents seuils de comptage.

La simulation décrit aussi finement que possible la composition, la structure moléculaire et la géométrie du convertisseur et du scintillateur plastique utilisés pour l'étude expérimentale de principe. Il convient toutefois de rester critique à l'endroit des écarts entre la modélisation détaillée dans ce paragraphe et la réalité physique qu'elle doit permettre d'interpréter. Le premier prototype expérimental caractérisé dans les Parties IV à VII de ce chapitre ne donne pas accès à une discrimination neutron / gamma. En outre, le processus de synthèse n'est pas, à ce stade de développement, suffisamment répétable pour qu'une compensation, au moyen d'un scintillateur sans cœur de gadolinium, permette de discriminer significativement les différentes contributions au signal neutronique total. Or l'objet du dimensionnement présenté dans cette étude, ainsi que de la réalisation qui en a été tirée, est de fournir de premières estimées des facteurs de mérite, notamment de la sensibilité neutronique, atteignable par PHD dans une configuration où le gadolinium contribue *le plus significativement possible* à la réponse du détecteur. Le choix a, par conséquent, été fait de limiter l'étude expérimentale à des seuils de comptage placés à 5 MeVee et 6 MeVee, au-dessus desquels le rapport $\frac{\tau_{\gamma, \text{Gd}}(R)}{\tau_{\gamma}(R) + \tau_p(R)} = 60 \pm 1,5 \%$ et $\frac{\tau_{\gamma, \text{Gd}}(R)}{\tau_{\gamma}(R) + \tau_p(R)} = 70 \pm 2 \%$ respectivement. L'extrapolation des sensibilités obtenues expérimentalement au-dessus de ces seuils, à partir de l'étude de maximisation abordée dans le paragraphe suivant, permettra alors de formuler de premières conclusions sur le schéma de détection introduit dans ce chapitre.

2. Etude par simulation en vue de maximiser l'efficacité de détection neutronique

Un jeu supplémentaire de simulations, conduit avec le tally 4 et la carte FM 102 du code MCNPX2.6.0, permet de montrer que le profil spatial des captures neutroniques dans le cœur est fortement « coudé », c'est-à-dire qu'une forte proportion des captures est concentrée en

surface du convertisseur de gadolinium. Cette concentration s'explique par la section efficace très élevée du gadolinium pour la capture des neutrons thermiques, ainsi que par la forte densité du cœur métallique pur. La distribution présentée sur la Figure IV.11 illustre la proportion de captures radiatives cumulées, notée $\% \tau_{cn,cumul}$, en fonction de la distance au centre e d'une sous-couche donnée du cœur (limite externe de la couche). Ce profil est évalué pour un cœur de gadolinium de rayon $r = 0,633$ cm, une coquille plastique de rayon $R = 11,8$ cm et une distance source-scintillateur $d = 10$ cm. Il apparaît que 60 % des captures radiatives se produisent dans une épaisseur de 10 μ m en surface du cœur, 88 % dans une épaisseur de 100 μ m et 95 % dans une épaisseur de 1 mm.

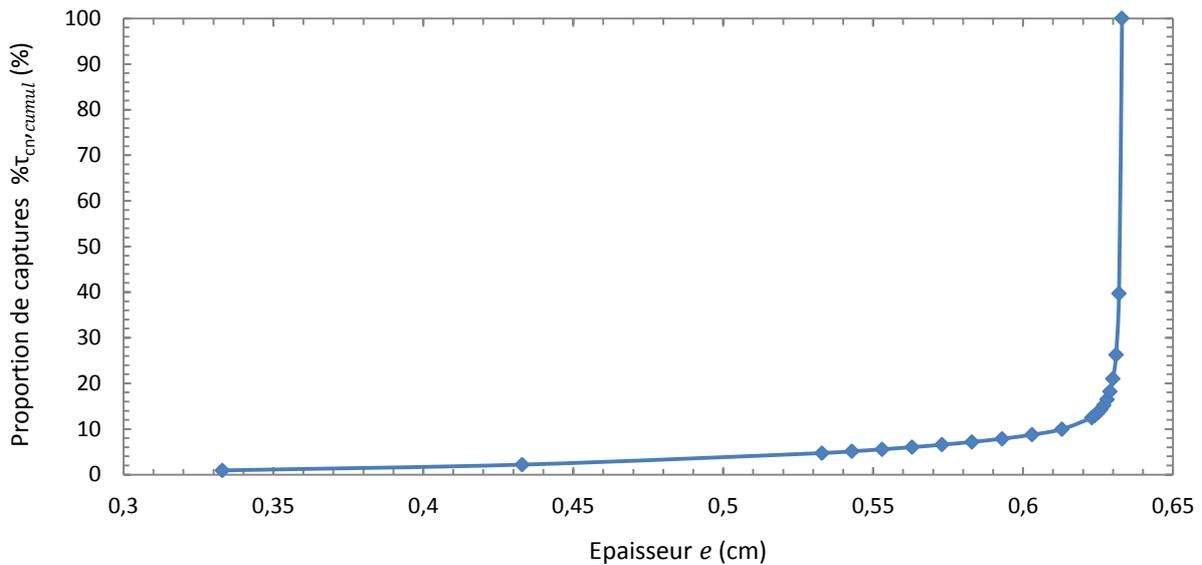


Figure IV.11 : Distribution spatiale des captures radiatives dans le cœur de gadolinium ($r = 0,633$ cm, $R = 11,8$ cm).

Une perspective d'amélioration de l'efficacité de détection peut ainsi être dégagée autour de l'optimisation géométrique du chargement massique en gadolinium. Supposons que le chargement massique de gadolinium m_{Gd} , et donc le coût primaire de gadolinium, sont invariants : 65 € pour 8,4 g. L'incorporation du gadolinium sous la forme d'une couronne solide comprise entre deux sphères de rayons r_1 et $r_2 = r_1 + 0,1$ (exprimés en centimètres), au lieu d'une bille pleine de rayon r , permet la couverture d'un angle solide plus vaste en vue de la capture des neutrons thermalisés dans la coquille de plastique. Nous reprenons les paramètres du dimensionnement présenté au paragraphe précédent :

- une masse de gadolinium $m_{Gd} = 8,4$ g pour un rayon $r = 0,633$ cm si bille est pleine,
- enveloppée d'une coquille de polystyrène réticulé et dopé de rayon $R = 11,8$ cm.

L'équation de conservation du volume de gadolinium V_{Gd} entre les deux géométries modélisées s'écrit :

$$V_{Gd} = \frac{4}{3} \pi r^3 = \frac{4}{3} \pi [(r_1 + 0,1)^3 - r_1^3] \quad (IV.6)$$

L'Equation (IV.6) admet pour solution réelle et positive la valeur de $r_1 = 0,869$ cm, d'où $r_2 = 0,969$ cm. Ces valeurs sont injectées dans le programme de modélisation des taux de capture et de dépôt, et la nouvelle configuration est simulée avec le code le MCNPX2.6.0. Tous les paramètres non cités ici sont identiques à ceux définis dans le paragraphe 1. Le volume laissé vide à l'intérieur de la couronne de gadolinium est, dans un cas idéalisé, rempli d'un milieu plastique scintillant identique à celui de la coquille externe. Les taux de dépôt $\tau_{\gamma,Gd}$, obtenus selon cette configuration, mettent en évidence un gain d'un facteur 2, en moyenne, de l'amplitude de la signature gamma prompt. Ce gain est obtenu à coût primaire constant de gadolinium et de composants chimiques, au prix toutefois d'une complexité de réalisation supérieure. Ajoutons que, pour permettre la récupération des photons de scintillation, la couronne sphérique devra être ouverte sur un ou plusieurs angles solides.

Considérons enfin une montée en masse de gadolinium, et par conséquent en coût primaire du convertisseur, d'un facteur 10 par rapport à la configuration simulée dans le paragraphe 1. Selon le mode d'insertion décrit dans le présent paragraphe, ce chargement équivaut à une couronne sphérique de gadolinium comprise entre $r_1 = 2,858$ cm et $r_2 = 2,958$ cm. Les autres paramètres sont inchangés dans cette modélisation ($R = 11,8$ cm, composition du scintillateur plastique). La Figure IV.12 superpose les taux de dépôt $\tau_{\gamma,Gd}$ obtenus pour le chargement et la configuration du paragraphe 1, et ceux évalués dans l'étude par simulation conduite ici. La comparaison des taux met en évidence un gain d'un facteur 8 (2,6 MeVee) à 10 (6 MeVee) dans la contribution attendue des captures $Gd(n,\gamma)$ à l'efficacité de détection neutronique totale. Ce gain est atteint pour un coût primaire de gadolinium inférieur à 1000 €. Il autorisera, par conséquent, sur la base des résultats de simulation, une extrapolation d'un facteur 10 des facteurs de mérite extraits de la première étude expérimentale de principe, menée à partir du dimensionnement détaillé par le paragraphe 1. Signalons également que, pour telle montée en masse, le plastique à l'intérieur de la couronne ne contribue qu'à hauteur de 10 % au dépôt total d'énergie. La mise en œuvre du mode d'insertion du gadolinium décrit dans ce paragraphe a été laissée en perspective de cette thèse, de même que la montée en masse de gadolinium au cœur du détecteur

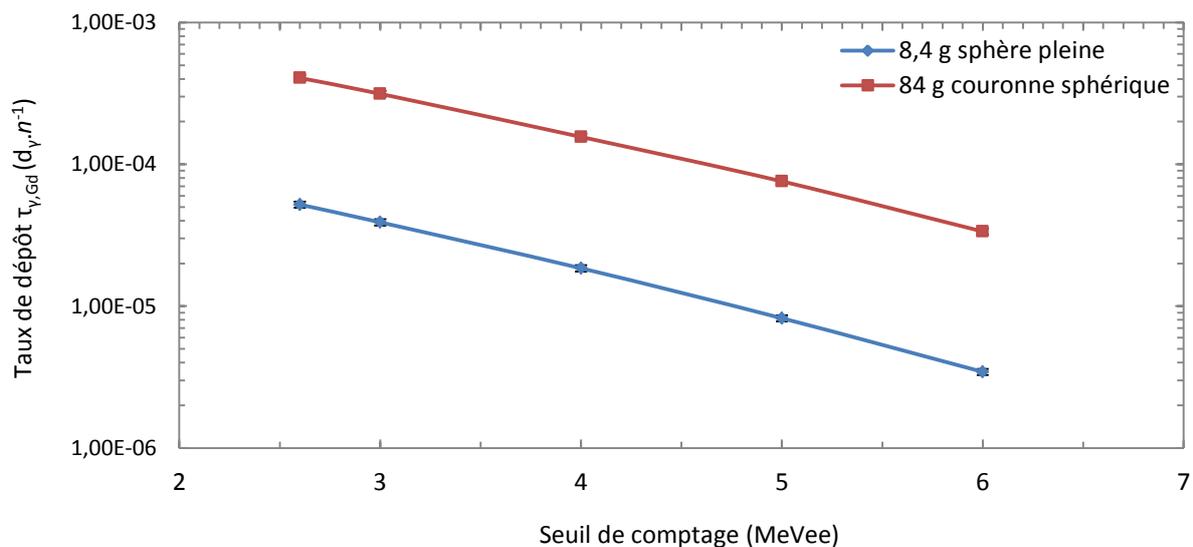


Figure IV.12 : Comparaison des taux de dépôt $\tau_{\gamma,Gd}$ en fonction du seuil de comptage pour une sphère pleine de 8,4 g et une couronne sphérique de 84 g de gadolinium.

PARTIE IV : Préparation du milieu plastique scintillant et montage de la chaîne d'acquisition et de traitement des impulsions

1. Préparation du milieu plastique scintillant

La synthèse de scintillateurs plastiques à grande échelle, dont la capacité est de l'ordre de grandeur du litre, représente un défi en termes de stabilité et d'homogénéité du mélange, de turbidité et d'auto-absorption de la matrice. Le premier prototype, destiné à l'étude expérimentale de principe et à l'estimation des facteurs de mérite associés à un comptage neutronique, a été préparé à partir d'une matrice styrénique réticulée. Un moule sphérique du commerce d'une capacité de 6 litres pour un rayon de 11,8 cm, soit à gauche de la zone optimale définie dans la partie précédente, a été sélectionné. Après purification préliminaire, les composants suivants sont mélangés dans le moule, suivant les quantités reportées dans le Tableau IV.I :

- le styrène à la base de la matrice polymère ;
- du 1,4-BuMA comme agent réticulant de la matrice ;
- du PPO comme fluorophore primaire ;
- du POPOP comme fluorophore secondaire.

La solution obtenue est placée sous atmosphère inerte d'azote, puis portée à ébullition durant approximativement une heure. Le cœur de gadolinium, sous la forme de lingots métalliques acquis auprès du fournisseur Strem Chemicals, de pureté égale à 99,9 %, agrégés jusqu'à une masse totale de 8,4 g, est alors placé dans une nacelle de forme quasi-sphérique en Téflon. Cette nacelle est insérée par le goulot du moule au centre de ce dernier. L'ensemble est à nouveau purifié sous argon, puis scellé et placé au four. Au terme d'un cycle en température de 40 jours, la polymérisation complète du plastique étant observée, le ballon est refroidi à la température ambiante et le moule brisé manuellement. En vue des mesures décrites dans la partie suivante, la surface du scintillateur destinée à être placée au contact de la photocathode a été polie. Le reste de la coquille plastique couvert d'une épaisseur de peinture blanche diffusante à l'oxyde de titane (TiO₂), afin de maximiser la collecte lumineuse.

$m_{\text{styrène}} \text{ (g)}$	$m_{1,4\text{-BuMA}} \text{ (g)}$	$m_{\text{PPO}} \text{ (g)}$	$m_{\text{POPOP}} \text{ (g)}$	$m_{\text{Gd}} \text{ (g)}$
4760	1190	178	1,8	8,4

Tableau IV.1 : Composition de la coquille scintillante à matrice de polystyrène.

2. Montage et chaîne d'acquisition

Le montage expérimental et la chaîne d'acquisition déployés en vue de l'étude des prototypes décrits dans le paragraphe précédent sont identiques à ceux présentées au Chapitre III, Partie III, paragraphe 2, à l'exception de l'alimentation haute tension qui est remplacée par une alimentation programmable à quatre canaux de modèle CAEN N147. Le montage expérimental incluant le scintillateur plastique et le photomultiplicateur est reproduit sur la Figure IV.13.

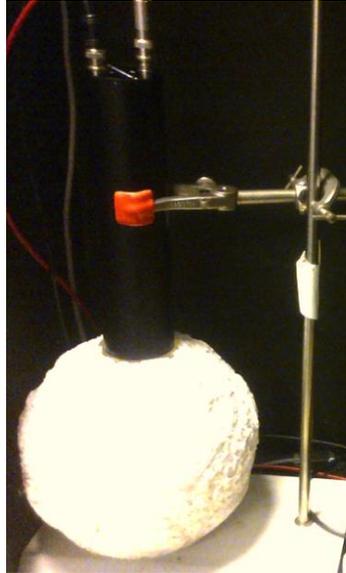


Figure IV.13 : Montage expérimental pour l'acquisition de spectres (matrice de polystyrène).

PARTIE V : Etalonnage en énergie du scintillateur plastique

La haute tension de polarisation du photomultiplicateur est réglée à 1600 V de façon à couvrir l'ensemble de la dynamique du signal jusqu'à 9 MeV. L'étalonnage en MeV à haute énergie est réalisé au moyen de deux sources émettrices de rayonnements gamma :

- une source de césium 137 dont le front Compton, associé à une raie d'énergie $E_{\gamma,^{137}\text{Cs}} = 662 \text{ keV}$, est observé à $E_{CE,^{137}\text{Cs}} = 478 \text{ keV}$;
- une source de sodium 22 dont le front Compton, associé à une raie d'énergie $E_{\gamma,^{22}\text{Na}} = 1275 \text{ keV}$, est observé à $E_{CE,^{22}\text{Na}} = 1062 \text{ keV}$.

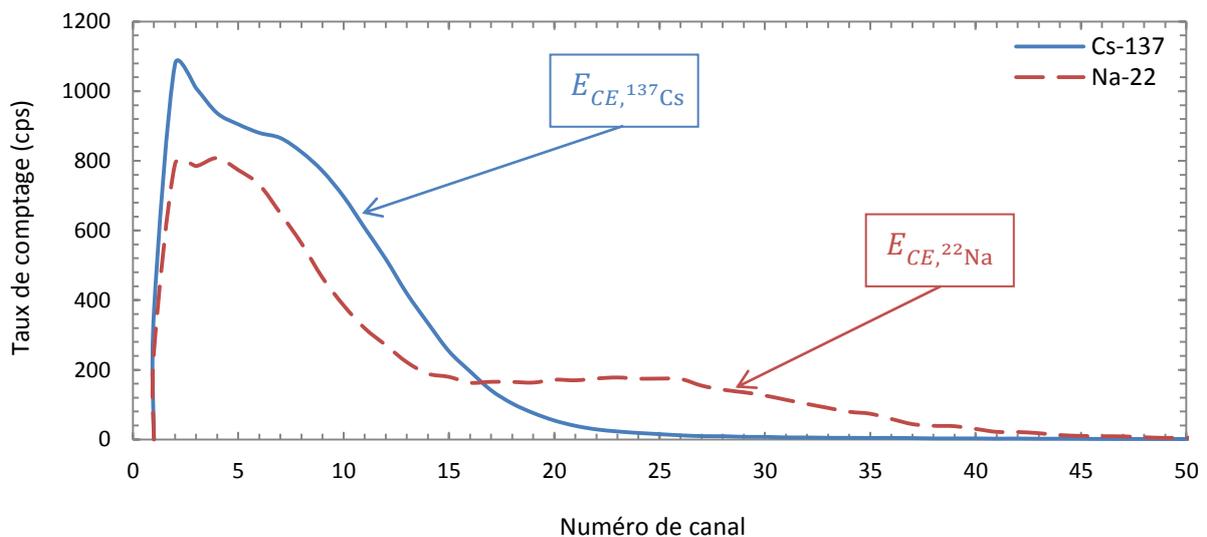


Figure IV.14 : Spectres en énergie du scintillateur à matrice de polystyrène en réponse à des sources de césium 137 et de sodium 22.

Conformément au protocole défini au Chapitre II, Partie II, paragraphe 4, ces énergies sont identifiées aux numéros de canaux associés à 80 % du maximum des continua Compton, respectivement 11 et 29, comme noté sur la Figure IV.14. La réponse à haute énergie du scintillateur étant supposée linéaire [IV.32], un coefficient d'étalonnage égal à 32,5 keV par canal est obtenu au-dessus de 500 keVee.

PARTIE VI : Mesures préliminaires et dimensionnement d'un écran de plomb pour l'évaluation des performances du prototype à matrice de polystyrène en présence d'un émetteur mixte

Nous ne disposons pas, dans le cadre de la campagne d'évaluation du prototype à matrice de polystyrène, d'un générateur de neutrons. C'est donc au moyen conventionnel d'une source mixte de californium 252, à la fois émettrice de rayonnements neutroniques et photoniques, que l'étude expérimentale du principe a été menée.

Comme il a été développé en Partie X, paragraphe 1 du Chapitre III, la source scellée de californium 252 utilisée dans les mesures décrites ci-après est un émetteur neutronique et photonique dans les mêmes ordres de grandeurs. Le rendement d'émission par fission spontanée se monte à $\nu_n = 3,77 n \cdot f^{-1}$ (neutron par fission) et $\nu_\gamma = 7,98 \gamma \cdot f^{-1}$ (gamma par fission). Le modèle décrit par l'Equation (III.30) pour le fond gamma prompt et retardé est défini jusqu'à 10,4 MeV, plafond qui dépasse les divers seuils de comptage autorisant la prise en compte de la signature gamma prompte des captures Gd(n, γ). Ce fond gamma est centré à moyenne énergie. Son espérance étant égale à $\widehat{E}_\gamma = 875$ keV, et sa distribution normalisée n'excède 3 MeV qu'à hauteur de 9 %, 5 MeV à hauteur de 1 % et 6 MeV à hauteur de 0,3 %. Il est néanmoins nécessaire, de placer au contact de la source un puissant atténuateur du fond gamma à haute énergie.

Une fois encore, le plomb apparaît comme le candidat idéal pour l'écrantage de la source de californium 252. De nombreux abaques existent dans la littérature pour décrire l'atténuation d'un rayon gamma incident avec une énergie E_γ par une épaisseur de plomb donnée. Le Tableau IV.2 présente les coefficients d'atténuation massiques $\mu_m(E_\gamma)$, ainsi que les coefficients d'atténuation linéiques $\mu(E_\gamma) = \mu_m(E_\gamma) \cdot \rho$, où $\rho = 11,35$ g.cm⁻³ est la densité du plomb. Ces coefficients fournis par la base de données du National Institute of Standards and Technology [IV.28].

E_γ (MeV)	Coefficient μ_m (cm ² .g ⁻¹)	Coefficient μ (cm ⁻¹)
1	0,0710	0,806
2	0,0461	0,523
3	0,0423	0,480
4	0,0420	0,477
5	0,0427	0,485
6	0,0439	0,498
7	0,0453	0,514
8	0,0467	0,530
10	0,0497	0,564

Tableau IV.2 : Coefficients d'atténuation photonique du plomb entre 1 et 10 MeV.

Sur la base des valeurs consignées dans le Tableau IV.2, et en appliquant la loi de décroissance exponentielle décrite par l'Equation (III.12), nous obtenons une valeur d'atténuation des rayonnements gamma de 2 à 10 MeV. L'atténuation varie entre 90 et 94 % en sortie d'un écran de plomb d'épaisseur $x = 5$ cm, et entre 99 et 99,7 % en sortie d'un écran d'épaisseur $x = 10$ cm.

Afin d'évaluer les contributions respectives du spectre neutronique et du fond gamma au comptage affiché au-dessus de divers seuils retenus pour l'étude, une source de californium 252 d'activité $A = 603$ kBq est placée à une distance $d = 60$ cm du point le plus proche à la surface du scintillateur plastique. On fait varier le seuil bas de comptage :

- par pas de 500 keVee entre 2,5 MeVee (valeur la plus proche du plafond de la radioactivité gamma naturelle) et 3 MeVee ;
- par pas de 1 MeVee entre 3 MeVee et 6 MeVee.

La valeur de d a été choisie de telle sorte que :

- à cette distance de la source, le débit de dose gamma enregistré avec un radiamètre commercial Thermo Electron ESM FH 40G-L 10 est égal à celui mesuré en l'absence de source dans le local d'essai, soit $\Delta_\gamma = 0,1 \mu\text{Sv} \cdot \text{h}^{-1}$;
- la différence entre le taux de comptage vrai λ et le taux de comptage affiché λ_r , ainsi que le taux d'empilement λ_{pu} , tels ces taux ont été définis dans les Equations (III.1) et (III.2), sont négligeables.

Les mesures sont d'abord conduites avec la source à nu. Par la suite, deux écrans de plomb, parallélépipédiques rectangles de section 10×10 cm, et d'épaisseurs respectives $x = 5$ cm et $x = 10$ cm sont ajoutés tour à tour au contact de la source, de façon à couvrir la totalité de l'angle solide irradiant le détecteur. L'évolution du taux de comptage, après soustraction du mouvement propre (détaillé dans la partie suivante), est affichée en fonction de l'épaisseur de l'écran ($x = 0$ correspondant à la mesure à nu) pour les différents seuils de comptage sur la Figure IV.15.

La faible pente des caractéristiques obtenues met en évidence la contribution prédominante des neutrons au signal mesuré. En présence d'un écran de 10 cm au contact de la source, héoriquement et *a minima*, 99 % des rayonnements gamma sources sont supprimés. Or, nous constatons que les taux de comptage au-dessus de 5 MeVee et 6 MeVee ne sont dégradés que de 15 ± 7 % et 9 ± 6 % respectivement par rapport à la mesure à nu. L'effet mis en évidence est celui de la faible atténuation des neutrons par le plomb, comparée à l'atténuation des rayonnements gamma. Cette dernière dégradation, en outre, prend en compte l'atténuation par diffusion du spectre neutronique à l'intérieur de l'écran de plomb.

Les taux de comptage affichés sur la totalité du spectre sont égaux à $\lambda_r = 1349 \pm 21$ cps, $\lambda_r = 749 \pm 14$ cps et $\lambda_r = 513 \pm 10$ cps pour les épaisseurs d'écran $x = 0$, $x = 5$ cm et $x = 10$ cm respectivement. L'Equation (III.1) prévoit pour de tels taux de comptage une divergence entre λ et λ_r inférieure à 0,01 %. Ce premier point justifie que l'ensemble des facteurs de mérite déduits de l'étude présentée dans la partie suivante soient fondés sur les taux de comptage affichés sans correction. Par ailleurs, les taux d'empilement calculés avec

l'Equation (III.2) sont égaux à $\lambda_{pu} = 0,09$ cps, $\lambda_{pu} = 0,02$ cps et $\lambda_{pu} = 0,01$ cps pour $x = 0$, $x = 5$ cm et $x = 10$ cm respectivement. Ce second point établit que l'empilement est négligeable, pour des taux affichés avec une précision de 0,1 cps, en présence de la source de californium 252 placée à $d = 60$ cm, que cette dernière soit blindée ou non.

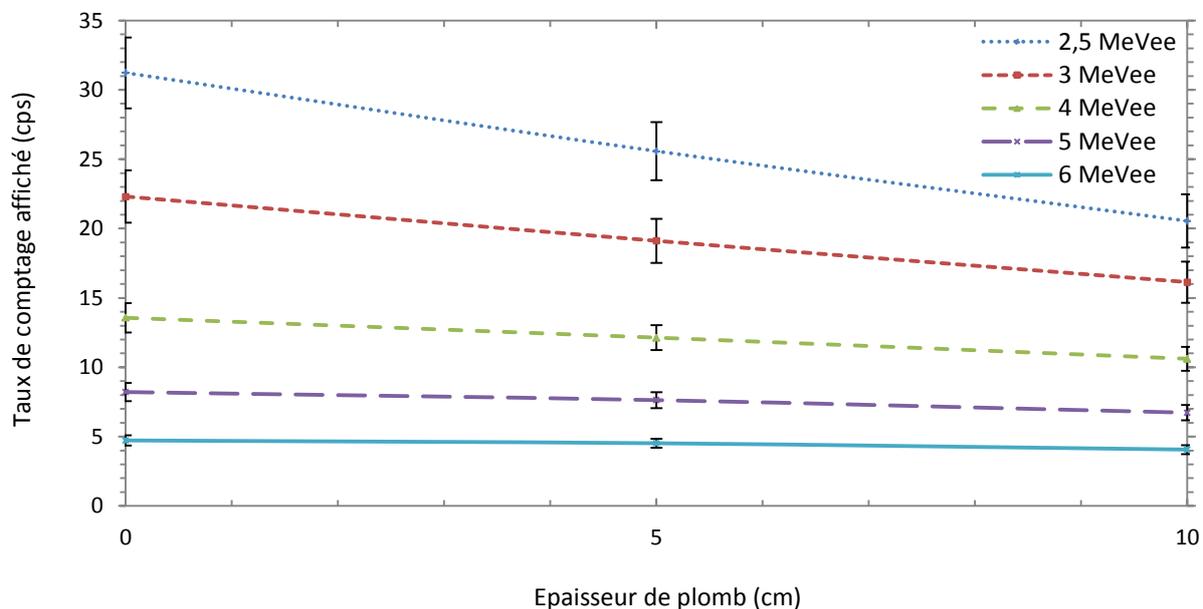


Figure IV.15 : Evolution du taux de comptage affiché en fonction de l'épaisseur du blindage pour différents seuils de comptage.

L'ensemble des tests conduits dans la Partie VII sur le prototype à matrice de polystyrène seront donc conduits avec un écran de plomb de 10 cm au contact de l'émetteur neutronique, qui maximise l'atténuation photonique sans dégradation significative des taux de comptage affichés.

PARTIE VII : Résultats expérimentaux obtenus avec le prototype à matrice de polystyrène

Le premier prototype à matrice de polystyrène forme un détecteur sensible à tous les types de rayonnements. La campagne de mesures détaillée dans cette partie a pour objet de fournir une estimée de deux facteurs de mérite cruciaux : la sensibilité neutronique et, déduite de la première, la limite de détection neutronique dans une ambiance gamma donnée. C'est sur la base de ces deux critères que l'intérêt du schéma de détection proposé pourra être étudié, en un premier point de réalisation expérimentale. L'extrapolation possible de ces facteurs de mérite a été pointée dans le paragraphe 2 de la Partie III.

1. Mesure de bruit de fond en l'absence de source radioactive

Le schéma de détection présenté dans la Partie II, paragraphe 2, est, par construction, sensible aux produits des rayonnements cosmiques, principalement formés de muons au niveau de la mer. Etant donné le volume du scintillateur plastique, la contribution des muons au signal est non négligeable. En se fondant sur la moyenne d'un muon dans la matière par

centimètre carré par minute [IV.33] et en considérant pour le prototype une section Σ égale à $\Sigma = \pi R^2 = 437,4 \text{ cm}^2$, une contribution muonique attendue λ_{mu} au taux de comptage total peut être grossièrement estimée $\lambda_{mu} \sim 7,3 \text{ cps}$.

Le bruit de fond gamma et le bruit de fond neutronique dans le local de mesure sont évalués au moyen de détecteurs du commerce, respectivement un radiamètre Thermo Electron ESM FH 40G-L 10 et une sonde neutronique LB 6411. Les débits de dose mesurés sont respectivement égaux à $\Delta_\gamma = 0,1 \mu\text{Sv} \cdot \text{h}^{-1}$ (gamma) et $\Delta_n = 0,01 \mu\text{Sv} \cdot \text{h}^{-1}$ (neutron). Dans cette ambiance, et en l'absence de source radioactive, l'évolution du taux de comptage affiché en sortie de la chaîne est tracée en fonction du seuil de comptage en énergie (MeVee), comme représenté sur la Figure IV.16.

La caractéristique obtenue prend des valeurs comprises entre $6,3 \pm 0,2 \text{ cps}$ pour un comptage au-dessus de 2,5 MeVee et $1,5 \pm 0,1 \text{ cps}$ pour un comptage au-dessus de 6 MeVee, dont l'ordre de grandeur est donc compatible avec la contribution attendue des muons. Notons qu'après conversion, le bruit de fond du compteur neutronique de référence LB 6411 ne s'élève qu'à 0,02 cps. Ceci qui signifie que le prototype testé est affectée d'un bruit de fond supérieur de deux ordres de grandeur à celui du compteur à hélium 3. Ce bruit de fond est dû au volume sensible du capteur plastique pour l'interaction avec les muons. Il est à l'origine d'un taux de comptage qui ne peut être annulé par aucune élévation du seuil sur la plage de [2,5 MeVee – 9 MeVee]. La stabilité de la contribution muonique a été vérifiée, dans la limite des barres d'erreur portée sur la Figure IV.16, tout au long de la campagne de mesure décrite dans les paragraphes suivants. Cette contribution doit donc être soustraite aux spectres préalablement à toute évaluation de la sensibilité neutronique.

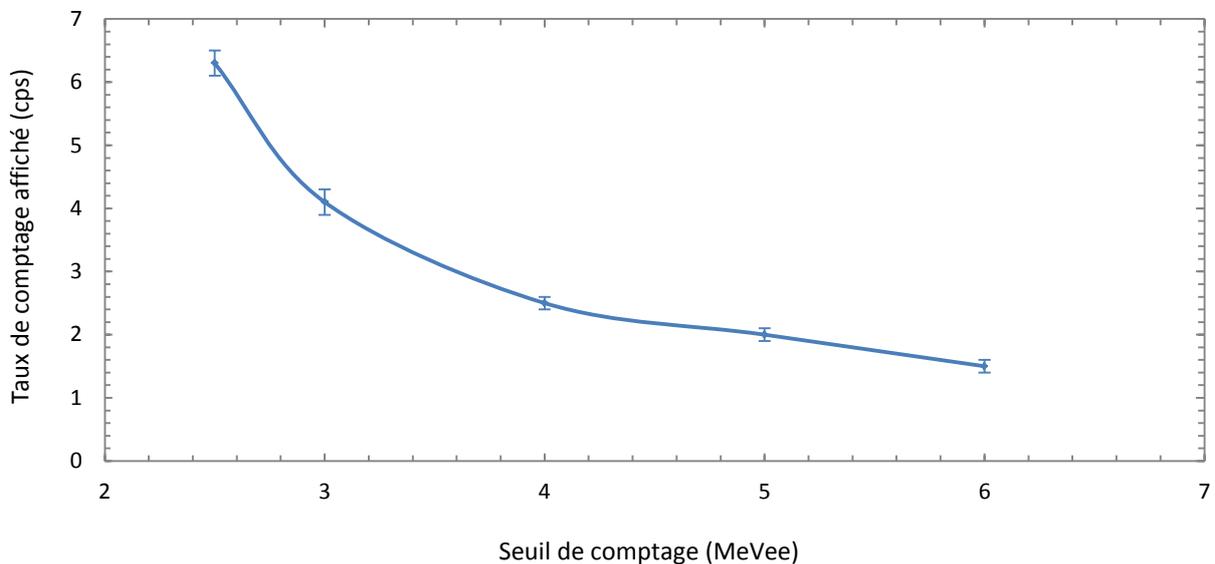


Figure IV.16 : Evolution du taux de comptage dans le local d'essai en fonction du seuil.

2. Courbes de stabilité en débit de dose des taux de comptage affichés en présence de sources neutronique et photonique

Le seuil de comptage applicable, en présence d'une source neutronique blindée, est une fonction de l'énergie et du débit de dose de l'ambiance gamma dans laquelle est effectuée la

mesure. Nous cherchons à évaluer la stabilité du taux de comptage affiché, attribué au rayonnement neutronique suivant la discussion de la Partie VI, dans une ambiance gamma dont le débit de dose est susceptible de varier. A cette fin, la source de californium 252 est à nouveau placée, derrière l'écran de plomb, à une distance $d = 60$ cm du point le plus proche à la surface du scintillateur. Deux sources émettrices de rayonnements gamma sont successivement ajoutées à proximité du capteur :

- une source de césium 137 d'activité $A_{137\text{Cs}} = 34$ MBq dont on fait varier la distance au scintillateur de façon à induire des débits de dose gamma Δ_γ compris entre 0,7 et $60 \mu\text{Sv}\cdot\text{h}^{-1}$ au point le plus proche à la surface de ce dernier (ces débits étant toujours mesurés à l'aide du radiamètre commercial) ;
- une source de cobalt 60 d'activité $A_{60\text{Co}} = 184$ kBq dont on fait varier la distance au scintillateur de façon à induire des débits de dose gamma Δ_γ compris entre 0,6 et $35 \mu\text{Sv}\cdot\text{h}^{-1}$ au point le plus proche à la surface de ce dernier.

Une ambiance de césium 137 est conventionnelle pour l'évaluation des facteurs de mérite d'un détecteur neutronique, comme représentative des produits de fission à vie longue présents dans le cycle du combustible. Cette ambiance à 662 keV génère toutefois un empilement peu susceptible d'affecter le taux de comptage affiché au-dessus de 2,5 MeVee jusqu'à des débits de dose élevés. Afin d'étudier le comportement du schéma de comptage dans une ambiance plus critique, le choix s'est porté sur le cobalt 60, émetteur à 1,117 MeV et 1,333 MeV. Un empilement simple de ces deux pics s'élève au seuil bas de comptage le plus bas considéré dans cette étude. Le cobalt 60 correspond, en outre, à un cadre applicatif concret, puisqu'il est représenté parmi les produits de corrosion-érosion les plus présents sur les installations nucléaires. Pour l'ambiance de césium 137 et celle de cobalt 60, l'évolution du taux de comptage affiché est relevée en fonction du débit de dose gamma et du seuil de comptage en énergie. Les caractéristiques obtenues, dites *courbes de stabilité en débit de dose*, sont présentées sur les Figures IV.17 et IV.18.

Les caractéristiques dressées en présence de la source de césium 137 montrent qu'un taux de comptage stable à un écart-type jusqu'à $\Delta_\gamma = 30 \mu\text{Sv}\cdot\text{h}^{-1}$ est affiché au-dessus d'un seuil de comptage placé à 3 MeVee. Il s'agit de la plus proche valeur de seuil bas, parmi celles considérées, de la valeur de 2,6 MeVee qui excède le plafond de radioactivité gamma naturelle. En présence de la source de cobalt 60, en revanche, ce n'est qu'à partir d'un seuil de 5 MeVee, soit environ deux fois ce même plafond, qu'un taux de comptage stable à un écart-type est affiché, jusqu'à $\Delta_\gamma = 35 \mu\text{Sv}\cdot\text{h}^{-1}$. Un affranchissement de cette vulnérabilité à une ambiance de plus haute énergie est toutefois accessible au moyen d'une gestion des empilements, permettant la mise en œuvre du schéma de détection en présence de débits de dose gamma plus élevés. La réjection des empilements a toutefois été laissée en perspective de ces travaux.

Ainsi, la stabilité du taux de comptage affiché en sortie de la chaîne, au-dessus des deux seuils définis dans cette première étude de principe, est assurée sur une gamme d'environnements radioactifs couvrant la totalité des zones surveillée et contrôlée, ainsi que l'entrée en zone spécialement réglementée, correspondant à autant de contextes de contrôle de l'activité neutronique.

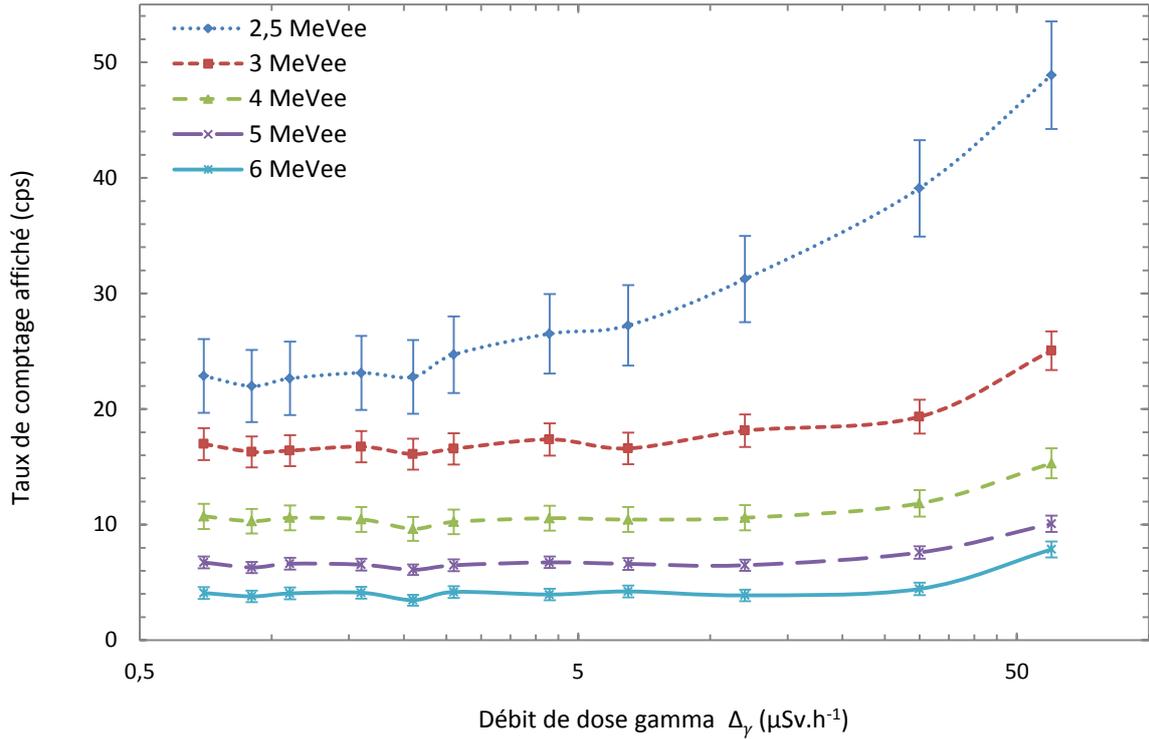


Figure IV.17 : Courbes de stabilité en présence d’une source de californium 252 et d’une ambiance de césium 137 pour différents seuils de comptage.

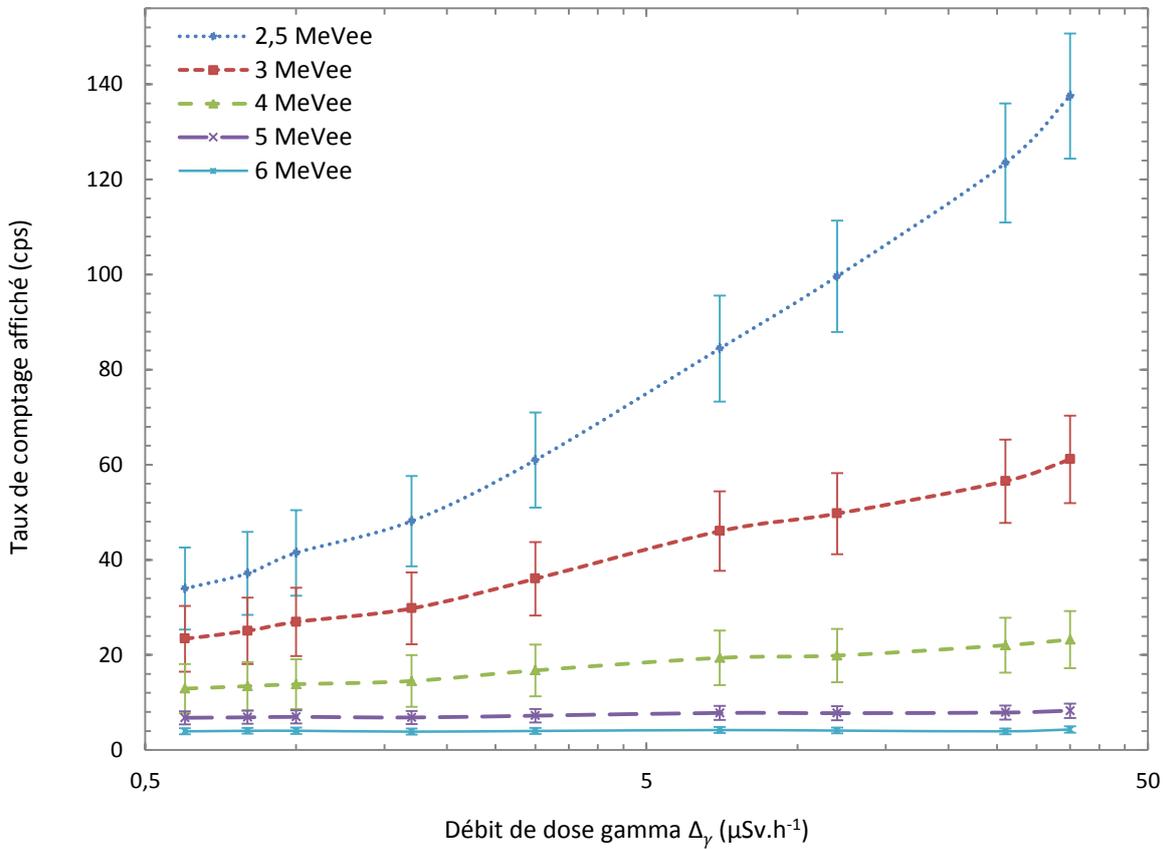


Figure IV.18 : Courbes de stabilité en présence d’une source de californium 252 et d’une ambiance de cobalt 60 pour différents seuils de comptage.

3. Estimation de la sensibilité neutronique en présence d'une source de californium 252 blindée

Afin d'estimer la sensibilité neutronique associée aux deux seuils déterminés dans le paragraphe précédent, les sources émettrices de rayonnements gamma sont retirées. seuls sont conservés la source de californium 252 à $d = 60$ cm du scintillateur et le blindage d'une épaisseur $x = 10$ cm placé au contact de cette dernière.

Les taux de comptage nets, c'est-à-dire après soustraction du bruit de fond décrit dans le paragraphe 1, affichés au-dessus de 5 MeVee et 6 MeVee sont égaux respectivement à $\widehat{\lambda}_n = 4,7 \pm 0,7$ cps et $\widehat{\lambda}_n = 2,6 \pm 0,5$ cps. Le nombre moyen de fissions spontanées dans la source est donné par $A_{252\text{Cf},f} = 1,9 \cdot 10^4$ f.s⁻¹ exprimé en fissions par seconde. Nous en déduisons le taux d'émission neutronique $A_{252\text{Cf},n} = 3,77 \cdot A_{252\text{Cf},f} = 7,2 \cdot 10^4$ n.s⁻¹, exprimé en neutron par seconde. Le choix est fait, dans cette étude, de calculer une estimée de la sensibilité neutronique totale en se fondant exclusivement sur les données de l'expérience. A cette fin, les hypothèses simplificatrices suivantes sont retenues :

- la source de californium 252 blindée peut être modélisée par un point source émetteur neutronique ;
- l'émission neutronique est isotrope ;
- l'écran de plomb est transparent au rayonnement neutronique incident. Cette hypothèse est, d'une part, justifiée par la faible décroissance du taux de comptage affiché au-dessus de 5 MeVee en fonction de l'épaisseur de plomb, significative à un écart-type au plus du taux, alors même que la quasi-totalité des contributions gamma au signal est supprimée. D'autre part, cette hypothèse ne peut conduire qu'à une sous-estimation de la sensibilité neutronique.

Sous ces hypothèses, le flux neutronique incident sur le scintillateur plastique de section $\Sigma = 437,4$ cm² est une fonction du rapport d'angles solides :

$$\frac{\Omega}{4\pi} = \frac{R^2}{4(R^2 + d^2)} \quad (\text{IV. 7})$$

où $R = 11,8$ cm est le rayon du scintillateur et $d = 60$ cm la distance source-scintillateur. L'estimée de la sensibilité neutronique est finalement calculée selon :

$$\widehat{S}_n = \frac{\widehat{\lambda}_n \cdot \Sigma}{A_{252\text{Cf},n} \cdot \frac{\Omega}{4\pi}} \quad (\text{IV. 8})$$

L'application numérique fournit les valeurs $\widehat{S}_n = 0,14 \pm 0,02$ c.n⁻¹.cm² pour un comptage au-dessus de 5 MeVee et $\widehat{S}_n = 0,08 \pm 0,01$ c.n⁻¹.cm² au-dessus de 6 MeVee.

Une comparaison à l'art est fournie en répétant la même mesure dans les mêmes conditions au moyen de la sonde neutronique LB 6411 (hélium 3). Le taux de comptage neutronique enregistré par la sonde commerciale est égal à $\widehat{\lambda}_n = 2,4 \pm 0,1$ cps pour un rayon $R = 12,5$ cm et une section $\Sigma = 490,9$ cm², soit d'après l'Equation (IV.8) une sensibilité neutronique estimée de $\widehat{S}_n = 0,070 \pm 0,003$ c. n⁻¹. cm².

La sensibilité neutronique estimée du prototype à matrice de polystyrène excède donc celle du compteur de référence de 15 à 100 % selon le seuil de comptage considéré. Sur la base des résultats de simulation présentés en Partie III, 60 % (5 MeVee) à 70 % (6 MeVee) du signal de comptage neutronique s'explique par la section efficace très élevée de réaction du gadolinium avec les neutrons thermalisés. Ce facteur de mérite tend ainsi à fournir, pour la géométrie sous-optimale et le volume limité du cœur métallique inséré dans ce prototype, un premier argument de justification du schéma de détection introduit dans ce chapitre.

4. Estimation des limites de détection neutronique en présence de sources photoniques

Le facteur de mérite le plus pertinent pour évaluer la performance d'un schéma de détection donné est sa limite de détection neutronique. En effet, la limite de détection rend compte aussi bien de la sensibilité au rayonnement neutronique, que l'on cherche à mesurer, que de la vulnérabilité du compteur au signal parasite.

Le détecteur dédié au comptage neutronique par amplitude des impulsions, qui fait l'objet de cette étude de principe, présente, d'après les résultats du paragraphe précédent, une sensibilité élevée au rayonnement neutronique. Cette sensibilité met à la fois en œuvre les reculs de protons dans le plastique et une thermalisation efficace des neutrons, associée à une conversion neutron-photon de haute énergie dans le gadolinium. Le scintillateur de volume décimétrique, toutefois, présente lui-même une sensibilité élevée à l'ambiance radioactive, qu'elle soit cosmique, gamma naturelle ou induite par un radio-émetteur gamma. Cette dernière vulnérabilité est prise en compte dans le calcul de la limite de détection en présence de sources photoniques. Le but est de comparer la limite à celle d'une sphère de Bonner à hélium 3, qui assure une excellente réjection des rayonnements gamma jusqu'à des débits de dose très élevés, de l'ordre de $\Delta_\gamma \sim 10$ mSv. h⁻¹.

Supposons que le prototype soit placé en œuvre dans une ambiance gamma donnée, de type césium 137 ou cobalt 60, de débit de dose gamma Δ_γ , et que la mesure soit effectuée sur une durée notée t . Le taux de faux comptage affiché en sortie de la chaîne est, pour chaque radio-émetteur et sans la soustraction du bruit de fond décrit dans le paragraphe 1, une fonction du débit de dose gamma, notée $\widehat{\lambda}_{n/\gamma}(\Delta_\gamma)$. Dans une telle ambiance, l'estimée de la limite de détection neutronique, notée $D\widehat{L}_n$ et exprimée en neutron par centimètre carré et par seconde (n. cm⁻². s⁻¹), est calculée de façon conventionnelle [IV.35] selon :

$$D\widehat{L}_n(\Delta_\gamma, t) = \frac{2,71 + 4,61 \sqrt{\widehat{\lambda}_{n/\gamma}(\Delta_\gamma) \cdot t}}{\widehat{S}_n \cdot t} \quad (\text{IV. 9})$$

Il est toujours possible d'abaisser la limite de détection en intégrant le signal sur une plage temporelle large. La durée d'intégration doit toutefois demeurer compatible avec les contraintes de réactivité qui pèsent sur un suivi de l'activité neutronique en situation réelle. Sur la base de cette considération, les durées d'intégration retenues pour l'étude sont : $t = 10$ s, $t = 30$ s et $t = 60$ s. L'évolution de la limite de détection neutronique en fonction du débit de dose gamma, pour un comptage au-dessus de 5 MeVee ($\widehat{S}_n = 0,20 \text{ c. n}^{-1} \cdot \text{cm}^2$), est présentée sur la Figure IV.19 dans le cas où la mesure est conduite avec une source de césium 137. Elle est portée sur la Figure IV.20 dans le cas où la mesure est conduite avec une source de cobalt 60. Des tendances identiques sont obtenues pour des comptages au-dessus 6 MeVee, avec une élévation de la limite de détection neutronique de 67 % en chaque point, puisque $\widehat{S}_n = 0,12 \text{ c. n}^{-1} \cdot \text{cm}^2$ au-dessus de 6 MeVee.

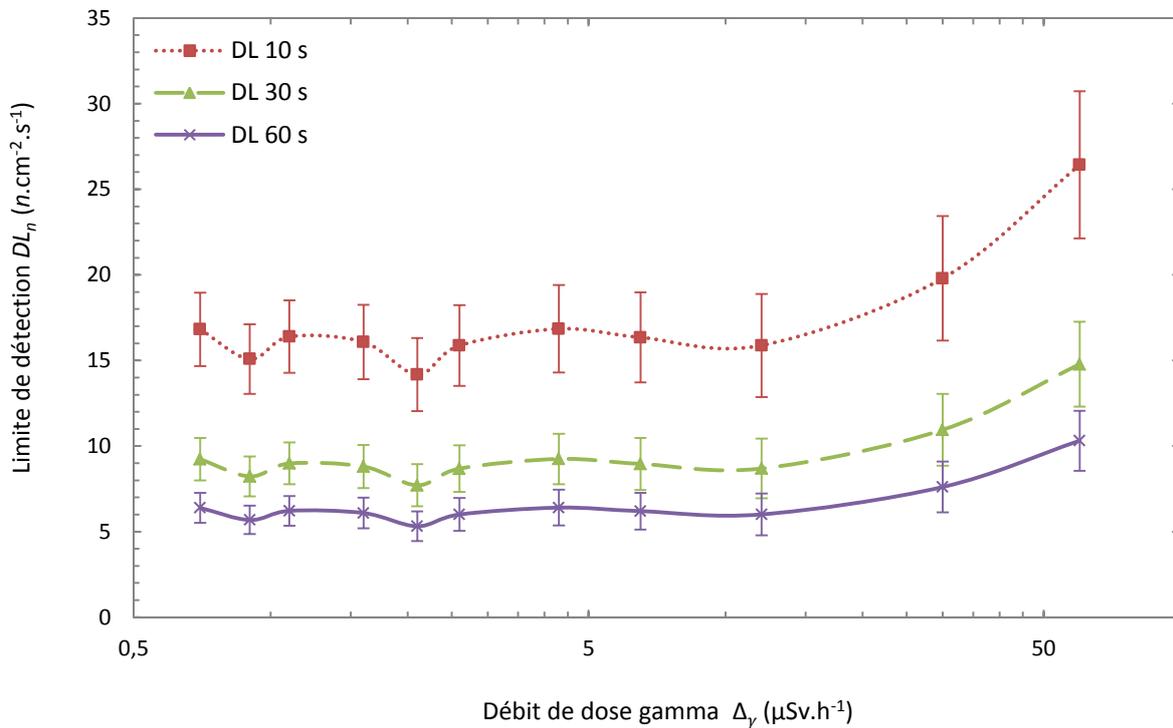


Figure IV.19 : Limites de détection neutroniques dans une ambiance de césium 137 pour différentes durées d'intégration (seuil à 5 MeVee).

En comparaison à ces caractéristiques, la sonde neutronique LB 6411 affiche un taux de faux comptage égal à $\widehat{\lambda}_{n/\gamma} = 0,02$ cps en présence des deux ambiances de césium 137 et de cobalt 60. Ce taux de faux comptage est stable sur les deux plages de débits de dose couvertes dans l'expérience.

Par application de l'Equation (IV.9), les limites de détection neutronique déduites pour le compteur de référence sont égales à :

- $\widehat{DL}_n(t = 10 \text{ s}) = 6,8 \pm 1,9 \text{ n. cm}^{-2} \cdot \text{s}^{-1}$;
- $\widehat{DL}_n(t = 30 \text{ s}) = 3,0 \pm 1,1 \text{ n. cm}^{-2} \cdot \text{s}^{-1}$;
- $\widehat{DL}_n(t = 60 \text{ s}) = 1,9 \pm 0,4 \text{ n. cm}^{-2} \cdot \text{s}^{-1}$.

En comparaison avec les limites de détection de la sonde LB 6411, pour des durées compatibles avec une mise en œuvre opérationnelle, les limites de détection évaluées dans cette première mise en œuvre du schéma de détection sont donc, pour un seuil de comptage placé à 5 MeVee :

- élevées, c'est-à-dire dégradées d'un facteur 3 à 4 entre $\Delta_\gamma = 0,5 \mu\text{Sv}\cdot\text{h}^{-1}$ et $\Delta_\gamma = 7,5 \mu\text{Sv}\cdot\text{h}^{-1}$ (zone surveillée) ;
- dégradées d'un facteur 4 à 5 entre $\Delta_\gamma = 7,5 \mu\text{Sv}\cdot\text{h}^{-1}$ et $\Delta_\gamma = 30 - 35 \mu\text{Sv}\cdot\text{h}^{-1}$ (zone contrôlée et début de la zone spécialement réglementée).

Ce résultat met à nouveau en évidence la sensibilité du schéma de détection, par simple discrimination par amplitude, aux rayonnements non neutroniques (muons, gamma). Cette vulnérabilité a pour conséquence *une élévation des limites de détection* par rapport à l'état de la technique, alors même que la *sensibilité neutronique est supérieure* à celle de la référence à base d'hélium 3. De surcroît, les limites de détection sont ici une fonction croissante du débit de dose gamma, alors qu'elles apparaissent stables, sur toute la dynamique de débits de dose considérée, pour le compteur de référence à base d'hélium 3.

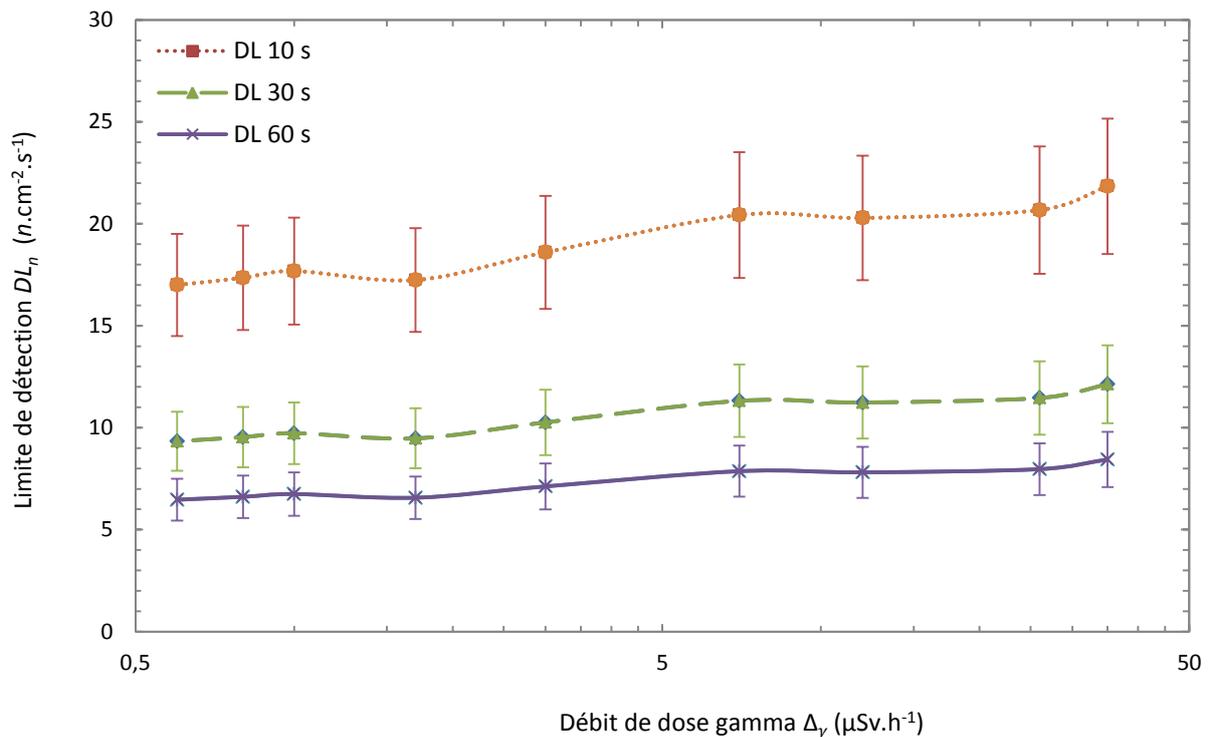


Figure IV.20 : Limites de détection neutroniques dans une ambiance de cobalt 60 pour différentes durées d'intégration (seuil à 5 MeVee).

Les limites de détection évaluées pour ce premier prototype ne sont toutefois dégradées que d'un demi-ordre de grandeur au plus par rapport à celles de la sonde de référence, sur une gamme de débits de dose couvrant deux zones réglementaires. Une gestion des empilements permettra d'étendre ultérieurement cette gamme. Ainsi, l'extrapolation de l'efficacité de détection devrait autoriser, sur la base des simulations présentées en Partie III, paragraphe 2, d'atteindre, voire de dépasser, les limites de détection du compteur à hélium 3 au moyen d'une montée en masse du cœur de gadolinium selon une géométrie optimisée.

CONCLUSION DU CHAPITRE ET PERSPECTIVES

Ce chapitre présente un schéma de détection et de comptage neutronique fondé sur l'insertion d'un convertisseur de gadolinium au centre d'un scintillateur plastique sphérique de volume décimétrique. Le rayonnement neutronique incident sur le capteur est thermalisé à l'intérieur de la coquille de plastique, de façon à maximiser le taux de captures radiatives par les isotopes de gadolinium 157 et 155 présents dans le cœur. Le milieu scintillant est ionisé par les raies gamma promptes de haute énergie émises au cours de la désexcitation radiative de ces noyaux absorbants. Cette ionisation est à l'origine d'un signal de luminescence discriminable par amplitude de la radioactivité gamma naturelle, dont le plafond de significativité est identifié à 2,614 MeV. Le dimensionnement par simulation Monte Carlo du prototype est le résultat d'un compromis entre la modération d'un spectre de fission de californium 252 et le taux de capture des neutrons ralentis par un cœur de gadolinium à bas coût (< 0,1 k€).

Sur la base des paramètres déduits de cette étude de dimensionnement, un premier prototype de laboratoire a été mis au point et testé en ambiance radioactive naturelle et sous irradiations photoniques et neutroniques. Le prototype est réalisé à base d'un cœur de gadolinium métallique sous la forme d'un agrégat de lingots et d'une coquille de polystyrène chargée en fluorophores. Il présente des limites de détection en environnement gamma dégradées d'un demi-ordre de grandeur par rapport à celles d'un compteur neutronique à hélium 3 (Sonde Neutronique LB 6411, 8-10 k€) pour un coût primaire de réalisation (monomères, fluorophores, gadolinium et moule sphérique) inférieur à 0,5 k€. La stabilité du taux de comptage affiché a, de plus, été validée dans des conditions correspondant à un début de zone spécialement réglementée ($\Delta_\gamma \sim 30 - 35 \mu\text{Sv} \cdot \text{h}^{-1}$). En vue d'une définition exhaustive de la plage d'utilisabilité du détecteur, la dérive du taux de comptage affiché au-dessus des seuils de comptage devra être étudiée en présence de débits de dose gamma supérieurs à $\Delta_\gamma = 35 \mu\text{Sv} \cdot \text{h}^{-1}$, et sous contraintes thermiques et mécaniques croissantes. Afin de s'affranchir de la nécessité d'élever le seuil de comptage lorsque le débit de dose gamma augmente, dans une ambiance d'énergie pourtant inférieure au plafond de 2,614 MeV, nous développerons des algorithmes de rejet des empilements. Ces algorithmes pourront être mis en œuvre par la suite dans le composant programmable.

En vue des développements futurs, nous avons souligné l'utilité d'un scintillateur de constante de temps de décroissance longue et incorporant un isotope fortement absorbant de neutrons thermiques. Le but est de consolider la mesure en présence de rayonnements gamma de haute énergie (thorium 232, produits d'activation). Nous avons également mentionné, en perspective, la modification du scintillateur plastique constituant la coquille, selon une formule autorisant une discrimination neutron / gamma. La discrimination du signal lumineux induit par les protons de diffusion de celle du signal attribuable aux différentes captures radiatives doit, en outre, permettre de confirmer expérimentalement les rapports de ces deux contributions au-dessus de différents seuils de comptage. A ce stade, ces rapports n'ont été estimés que par simulation. La compensation de la réponse du scintillateur chargé d'un cœur de gadolinium par celle d'une coquille identique mais dépourvue de ce cœur, constitue également une voie d'étude de la signature composite. La soustraction des réponses, affichées au-dessus d'un seuil donné, doit alors donner accès à la contribution des captures $\text{Gd}(n, \gamma)$. La montée en surface du convertisseur de gadolinium, ainsi que l'optimisation de la géométrie du cœur, permettront de statuer sur la faisabilité d'une détection neutronique atteignant des limites du même ordre de grandeur que celles d'une sphère de Bonner à hélium 3.

Le choix du monomère à la base de la coquille de plastique scintillant est, enfin, un paramètre crucial pour la génération du signal de luminescence. La sélection du matériau diffusant recouvrant le plastique doit en outre faire l'objet d'une étude approfondie, en vue d'une maximisation de la collecte des photons de scintillation produits.

Dans cette double perspective, un second prototype a été réalisé, dans lequel la matrice de polystyrène réticulée est remplacée par une solution de polyvinyltoluène sans réticulant. Les dopages en masse en fluorophores primaire (PPO) et secondaire (POPOP) sont identiques à ceux de la première préparation : respectivement 3 %m et 0,03 %m. La peinture blanche diffusante est, en outre, remplacée par un enrubannage homogène d'une épaisseur de 200 μm de Téflon. Ce dernier matériau diffuseur a été mis en œuvre dans des travaux de référence [IV.36] avec d'excellentes propriétés optiques (rendement lumineux augmenté, atténuation des photons de luminescence limitée). Le montage pour l'acquisition des spectres en énergie est illustré sur la Figure IV.21.



Figure IV.21 : Montage expérimental pour l'acquisition de spectres (matrice de polyvinyltoluène).

La haute tension est réglée à 1600 V, de même que dans l'étalonnage du prototype à matrice de polystyrène. La source de sodium 22 d'activité $A = 4$ MBq, utilisée pour l'étalonnage du premier scintillateur, est placée à la même distance $d = 30$ cm du point le plus proche à la surface du détecteur. Le spectre en énergie obtenu avec le scintillateur à matrice de polyvinyltoluène enrubanné est reproduit sur la Figure IV.22. Le numéro de canal 48 est identifié à 80 % du maximum du second continuum Compton, soit à une énergie de 1062 keV. A titre de comparaison, le numéro de canal 29 était identifié à ce même front Compton, dans les mêmes conditions, pour le scintillateur à matrice de polystyrène peint. Un gain de 65 ± 3 % du rendement lumineux est ainsi observé avec ce second prototype, dont la caractérisation complète est laissée en perspective pour les travaux futurs.

En complément de ce chapitre, l'Annexe II présente la formalisation et l'étude par simulation d'un algorithme dédié à la détection de radio-émetteurs mobiles, appliqué au déploiement en réseau de scintillateurs plastiques dans le cadre de la prévention des risques nucléaires et radiologiques.

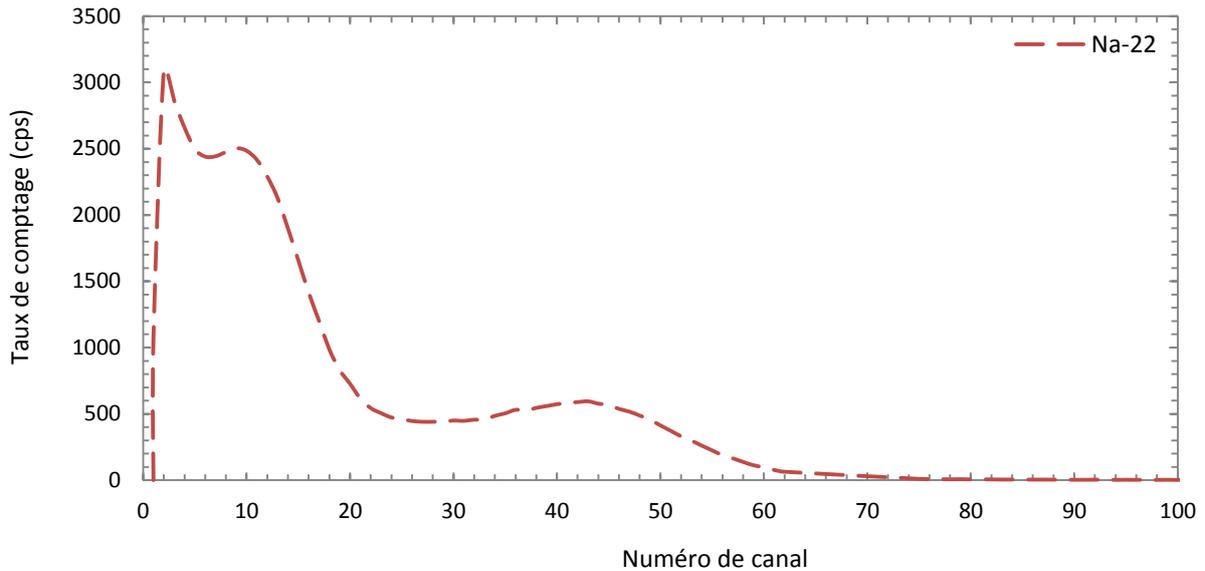


Figure IV.22 : Spectre en énergie du scintillateur à matrice de polyvinyltoluène en réponse à une source de sodium 22.

Références du Chapitre IV :

- [IV.1] A. M. Williams, P. A. Beeley, N. M. Spyrou, “Response of Lithium Gadolinium Borate in monoenergetic neutron fields”, *Radiation Protection Dosimetry*, Vol. 110, N° 1-4, pp. 497-502 (2004).
- [IV.2] B. La Course, A. Hardy, H. Rétot, Q. Chen, X. Peng, B. Vlana, M. Zandi, “Ceramic scintillator body and scintillator device”, Patent US 2012/0049118 A1 (2012).
- [IV.3] C. Greskovitch, S. Duclos, “Ceramic scintillators”, *Annual Review of Materials Science*, Vol. 27, pp. 69-88 (2007).
- [IV.4] R. G. Downing, W. B. Feller, “Radiation detectors and methods of detecting radiation”, Patent US 7233007 B2 (2007).
- [IV.5] H. Beil, R. Bergère, A. Veyssière, “Détection de photoneutrons avec un scintillateur liquide chargé au gadolinium”, *Service de Physique Appliquée*, Tome 4, pp. 249-250 (1969).
- [IV.6] M. A. Osinski, B. A. Akins, J. B. Plumley, A. C. Rivera, G. A. Smolyakov, J. M. Vargas, N. J. Withers, “Thermal neutron detectors based on gadolinium-containing nanoscintillators”, Patent US 0286166 A1 (2012).
- [IV.7] N. J. Hogan, *Characterization of a Cadmium Capture-gated Neutron Spectrometer*, Doctoral Thesis, Brigham Young University, pp. 22-25 (2011).
- [IV.8] W. J. Richard, “Scintillator detector with gadolinium-based sidewall axial restraint and compliance assembly”, Patent EP 1403661 A1 (2004).
- [IV.9] R. de Vita, F. Ambi, M. Battaglieri, M. Osipenko, D. Piombo, G. Ricco, M. Ripani, M. Taiuti, “A large surface neutron and photon detector for civil security applications”, *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research A*, Vol. 617, pp. 219-222 (2010).

- [IV.10] R. M. Polichar, J. Baltgalvis, “Neutron detector with layered thermal neutron scintillator and dual function light guide and thermalizing media”, Patent US 0224719 A1 (2005).
- [IV.11] E. Fanchini, “Performance of an RPM Based on Gd-lined Plastic Scintillator for Neutron and Gamma Detection”, *IEEE Transactions on Nuclear Science*, Vol. 33, Iss. 1, pp. 392-399 (2016).
- [IV.12] J. Dumazert, F. Carrel, R. Coulon, M. Hamel, “Dispositif de détection de neutrons thermiques, comportant une coquille de scintillateur plastique enveloppant un cœur de gadolinium ou de cadmium, et dispositif de comptage de neutrons thermiques associé”, Commissariat à l’Energie Atomique, demande déposée le 16/03/2015 sous le n° FR1552110.
- [IV.13] M. E. Medhat, Y. Wang, “Estimation of background spectrum in a shielded HPGe detector using Monte Carlo simulations”, *Applied Radiation and Isotopes*, Vol. 84, pp. 13-18 (2014).
- [IV.14] G. Knoll, *Radiation Detection and Measurement*, 4th Ed., John Wiley & Sons, Inc., New York, p. 19 (2010).
- [IV.15] T. Pochet, “Détecteurs nucléaires : différents types de particules à détecter”, *Techniques de l’Ingénieur*, BN 3 482 (2006).
- [IV.16] M. Marseguerra, E. Padovani, S. A. Pozzi, “Use of the MCNP-Polimi code for time-correlation safeguards measurements”, *Progress in Nuclear Energy*, Vol. 43, N° 1-4, pp. 305-311 (2003).
- [IV.17] J. B. Birks, *The Theory and Practice of Scintillation Counting*, Pergamon Press, International Series of Monographs on Electronics and Instrumentation, Vol. 27, pp. 39-41 (1964).
- [IV.18] B. D. Leverington, M. Anelli, P. Campana, R. Rossellini, “A 1 mm scintillating Fibre Tracker Readout by a Multi-anode Photomultiplier”, INFN, SIDS-Pubblicazioni, LNF – 10 / 21 (P) (2010).
- [IV.19] L. Torrisi, "Plastic scintillator investigations for relative dosimetry in proton-therapy", *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research B*, Vol. 170, pp. 523-530 (2000).
- [IV.20] S. A. Pozzi, J. A. Mullens, J. T. Mihalczko, “Analysis of neutron and photon detection position for the calibration of plastic (BC-420) and liquid (BC-501) scintillators”, *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research A*, Vol. 524, pp. 92-101 (2004).
- [IV.21] *Alarm Response Guidelines for Radiation Portal Monitoring Systems*, Canadian Nuclear Safety Commission, Catalogue Number CC172-68/1-2011E-PDF ISBN 978-1-100-17916-2, Minister of Public Works and Government Services Canada (2011).
- [IV.22] N. A. Mansour, “Measurement of natural activities of ²³⁸U, ²³²Th and ⁴⁰K in tin ore”, *Radiation Protection and Environment*, Vol. 34, pp. 270-274 (2011).
- [IV.23] *Manual for reactor produced radioisotopes*, IAEA-TECDOC-1340, International Atomic Energy Agency (2003).
- [IV.24] K. A. A. Gamage, A. J. Crompton, M. J. Joyce, “Performance characteristics of a polyethylene collimator with an EJ-426 detector in neutron source localization”, *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research A*, Vol. 755, pp. 1-5 (2014).
- [IV.25] U. Pujala, L. Thilagam, T. S. Selvakumaran, D. K. Mohapatra, E. Alagu Raja, K. V. Subbaiah, R. Baskaran, “Analysis of neutron streaming through the trenches at linac based neutron generator facility, IGCAR”, *Radiation Protection and Environment*, Vol. 34, pp. 262-266 (2011).

[IV.26] P. Blanc, M. Hamel, C. Dehé-Pittance, L. Rocha, R. B. Pansu, S. Normand, “Neutron/gamma pulse shape discrimination in plastic scintillators: Preparation and characterization of various compositions”, *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research A*, Vol. 750, pp. 1-11 (2014).

[IV.27] R. Coulon, J. Dumazert, M. Hamel, F. Carrel, “DéTECTEUR de neutrons, à plastique scintillant, entourant un cœur de gadolinium ou de cadmium, et couverture scintillante dopée ou couverte par du bore ou du lithium, et dispositif de comptage de neutrons associé”, Commissariat à l’Energie Atomique, demande déposée le 04/05/2016 sous le n° FR1654066.

[IV.28] J. H. Hubbell, S. M. Seltzer, “Tables of X-Ray Mass Attenuation Coefficients and Mass Energy-Absorption Coefficients from 1 keV to 20 MeV for Elements Z= 1 to 92 and 48 Additional Substances of Dosimetric Interest”, Radiation Physics Division, PML, NIST (1996).

[IV.29] A. D. Carlson, V. G. Pronyaev, D. L. Smith, N. M. Larson, Z. Chen, G. M. Hale, F.-J. Hamsch, E. V. Gai, S.-Y. Oh, S. A. Badikov, T. Kawano, H. M. Hofmann, H. Vonach, S. Tagesen, “International Evaluation of Neutron Cross Section Standards”, *Nuclear Data Sheets*, Vol. 110, Iss. 12, pp. 3215-3324 (2009).

[IV.30] H. D. Choi, R. B. Firestone, R. M. Lindstrom, G. L. Molnár, S. F. Mughabghab, R. Paviotti-Corcuera *et al.*, *Database of prompt gamma rays from slow neutron capture for elemental analysis*, International Atomic Energy Agency, Vienna (2007).

[IV.31] W. Rühm, V. Mares, C. Pioch, S. Agosteo, A. Endo, M. Ferrarini, I. Rakhno, S. Rollet, D. Satoh, H. Vincke, “Comparison of Bonner sphere responses calculated by different Monte Carlo codes at energies between 1 MeV and 1 GeV - Potential impact on neutron dosimetry at energies higher than 20 MeV”, *Radiation Measurements*, Vol. 67, pp. 23-34 (2014).

[IV.32] J. B. Birks, *The Theory and Practice of Scintillation Counting*, Pergamon Press, International Series of Monographs on Electronics and Instrumentation, Vol. 27, pp. 97-98, pp. 185-188 (1964).

[IV.33] N. Ramesh, M. Hawron, C. Martin, A. Bachri, “Flux Variation of Cosmic Muons”, *Journal of the Arkansas academy of Science*, Vol. 65, pp. 67-72 (2011).

[IV.34] Légifrance, “Arrêté du 15 mai 2006 relatif aux conditions de délimitation et de signalisation des zones surveillées et contrôlées et des zones spécialement réglementées ou interdites compte tenu de l'exposition aux rayonnements ionisants, ainsi qu'aux règles d'hygiène, de sécurité et d'entretien qui y sont imposées”, *Journal Officiel de la République Française*, N° 0223, p. 16327 (2006).

[IV.35] G. R. Gilmore, *Practical Gamma-ray spectrometry*, 2nd Edition, John Wiley & Sons Ltd, The Atrium, Southern Gate, Chichester, West Sussex, England, pp. 117-118 (2008).

[IV.36] A. Braem, E. Chesi, F. Ciocia, R. De Leo, C. Joram, L. Lagamba, E. Nappi, J. Séguinot, I. Vilardi, P. Weilhammer, “Scintillator studies for the HPD-PET concept”, *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research A*, Vol. 571, pp. 419-424 (2007).

CHAPITRE V : SCHEMA DE COMPTAGE NEUTRONIQUE PAR COMPENSATION A BASE DE SCINTILLATEURS PLASTIQUES DOPES AU BISMUTH ET DE CONVERTISSEURS DE GADOLINIUM ET DE TERBIUM

Le dopage de scintillateurs plastiques au gadolinium, compensé par un dopage au bismuth, a été étudié dans le Chapitre III. Le coût primaire du gadolinium sous forme de complexe organométallique, en l'occurrence de $Gd(TMHD)_3$, et la complexité de l'incorporation sont des désavantages. Le facteur limitant le déploiement de ce schéma de détection neutronique est la dépendance, à basse énergie (moins de 200 keV), du coefficient de compensation des sensibilités photoniques avec l'énergie moyenne du rayonnement à compenser. Cette dépendance rend, par exemple, la compensation du fond radioactif inopérante en présence de sources d'américium 241 ou de cobalt 57, utilisées dans l'étude expérimentale de principe du Chapitre III.

Le Chapitre V présente une alternative au dopage gadolinium / bismuth sous la forme de couvertures de gadolinium et d'un élément aux propriétés physiques plus proches de celles du gadolinium que le bismuth : le terbium. Il est attendu que la mise en œuvre de la section efficace d'absorption neutronique du gadolinium dans une couverture externe au plastique scintillant dégrade l'amplitude de la signature des produits de réaction, et par conséquent la sensibilité neutronique du capteur. Cette mise en œuvre doit, en revanche, permettre une compensation plus aisée de la radioactivité ambiante. Elle s'affranchit, en effet, des contraintes portant sur la fluorescence du terbium décrites dans la conclusion du Chapitre III, Elle est également plus robuste, aussi bien en fonction du débit de dose que de la pondération à basse énergie du fond gamma.

PARTIE I : Etude bibliographique sur l'utilisation de convertisseurs de gadolinium en détection neutronique

Au regard des considérations portant sur la facilité de réalisation, la reproductibilité et la réjection des rayonnements gamma tenues ci-dessus, la mise en œuvre la plus conventionnelle du gadolinium en détection neutronique repose sur l'utilisation d'un convertisseur distinct du capteur. Les captures radiatives $Gd(n, \gamma)$ se produisent au sein d'une quantité de matière donnée de gadolinium, typiquement présentée sous la forme d'une épaisseur homogène et continue. La signature électronique et photonique de ces captures est détectée dans le capteur de rayonnements, au contact ou à proximité du convertisseur. La modélisation et le dimensionnement de feuilles de gadolinium à destination des détecteurs gazeux ont ainsi été décrits en détail par Abdushukurov *et al.* [V.1]. La signature exploitée est alors celle des électrons à basse énergie émis après capture neutronique dans le gadolinium. Le schéma de principe du détecteur développé par Abdushukurov *et al.* a été reproduit sur la Figure V.1. Ce type de convertisseurs a également été déployé, sous la forme de couches multiples, à l'intérieur de chambres d'ionisation dédiées à une détection, sensible à la position, de rayonnements neutroniques associés à des expériences de diffusion [V.2].

Dans le cadre du développement de détecteurs portables destinés à assurer une dosimétrie neutronique personnelle, ce sont les capteurs de rayonnements à base de semi-conducteurs qui sont privilégiés, en raison de leur pouvoir d'arrêt des particules chargées élevé et de leur forte

atténuation photonique. Ces détecteurs autorisent ainsi une plus grande compacité du détecteur. Leurs performances spectroscopiques donnent, en outre, accès à l'identification de certains radio-émetteurs. C'est ainsi que Vitale *et al.* [V.3] ont breveté et validé expérimentalement, par des irradiations sous faisceaux neutroniques, le principe d'un détecteur semi-conducteur à couverture de gadolinium. De telles couvertures ont été ajoutées à des composants MOSFET par Lee *et al.* [V.4], ainsi que des diodes de tellurure de cadmium pixélisées par Miyake *et al.* [V5]. La signature des captures radiatives dans le gadolinium complète, dans ce dernier schéma, celle des captures radiatives dans le cadmium. Ces configurations seront décrites avec plus de détails dans le Chapitre VII. Nous reviendrons également sur l'exploitation possible de la double signature gadolinium / cadmium au Chapitre VII.

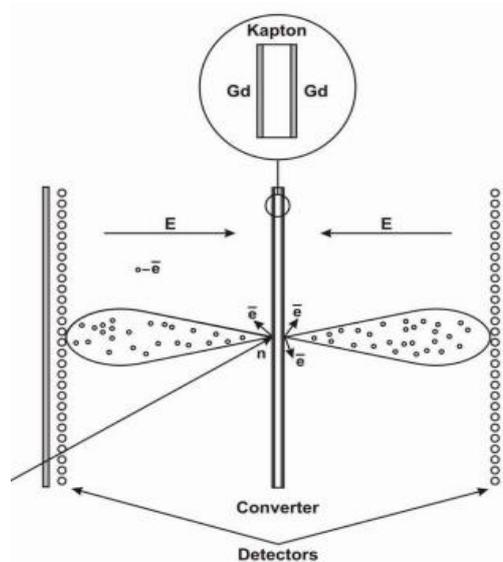


Figure V.1 : Schéma de principe pour la détection des neutrons (Abdushukurov *et al.*, 2007).

Le capteur physique voué à être inséré au sein d'un détecteur portable possède un volume typiquement compris entre la dizaine de mm³ et la dizaine de cm³. A ces échelles, pour le scintillateur plastique dopé au bismuth utilisé dans ce chapitre, la signature exploitable des captures ¹⁵⁷Gd(n,γ) et ¹⁵⁵Gd(n,γ) est principalement située à une énergie inférieure à 200 keV. La compensation de la radioactivité de fond, notamment gamma, qui contribue significativement au signal de comptage sur cette plage, est donc nécessaire au déploiement des capteurs couverts.

Ce problème est résolu, dans l'état de l'art, par la mise en œuvre de schémas de mesure fondés sur l'utilisation de deux capteurs en compensation. Ainsi, Kandlakunta *et al.* [V.6] présentent un système de détection à deux détecteurs de silicium, disposés tête-bêche, dont le principe est illustré sur la Figure V.2. Les auteurs quantifient les électrons de conversion interne libérés suite aux captures radiatives, notamment l'électron d'énergie égale à 72 keV, généré suite à la réaction ¹⁵⁷Gd(n,γ) selon les calculs présentés dans le paragraphe 3 du Chapitre I. Une feuille de 25 μm de gadolinium métallique est intercalée entre les détecteurs à silicium et une couche de Polyéthylène Haute densité (PEHD) arrête les électrons de conversion interne, en provenance du convertisseur, à l'entrée de l'un des deux capteurs. La différence des réponses au rayonnement des deux détecteurs met alors en évidence la signature électronique des captures neutroniques.

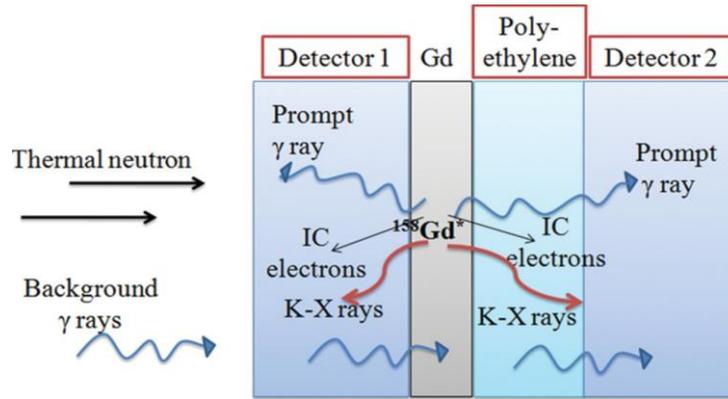
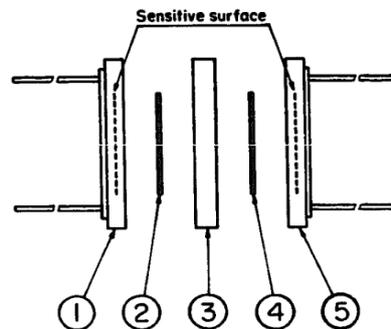


Figure V.2 : Schéma de détection des neutrons en compensation (Kandlakunta *et al.*, 2012).

Dans un autre schéma de détection, Aoyama *et al.* [V.7] décrivent un système à deux détecteurs de silicium et deux couvertures métalliques différentes. Une couverture de gadolinium est placée au contact du premier capteur, tandis que l'autre est couverte d'une feuille d'étain. L'étain est choisi comme matériau compensateur en raison de son numéro atomique ($Z_{Sn} = 50$) relativement proche de celui du gadolinium ($Z_{Gd} = 64$), et présentant, en conséquence, une sensibilité au rayonnement photonique relativement proche de celle du convertisseur neutronique. Une couche de 2 mm de polyméthacrylate de méthyle est apposée entre les deux capteurs, de façon à isoler les réponses électroniques de ces derniers aux rayonnements incidents. La soustraction des comptages enregistrés sur l'une et l'autre voie fait une fois encore apparaître la signature électronique à 72 keV, caractéristique de la capture des neutrons thermiques dans le gadolinium.



Construction of the detector. 1: photodiode for neutron detection, 2: gadolinium foil 25 μm thick, 3: Lucite board 2 mm thick, 4: tin foil 30 μm thick, 5: photodiode for γ -compensation. These components were glued together to construct a unified detector.

Figure V.3 : Schéma de détection des neutrons en compensation (Aoyama *et al.*, 1992).

Ce chapitre introduit une alternative, à base de scintillateurs plastiques, aux schémas de détection neutronique à deux capteurs de rayonnements présentés ci-dessus. Une résolution spectrale de l'ordre de 5 keV sur la signature des captures radiatives, telle qu'exploitée dans les détecteurs à silicium, n'est plus accessible avec les milieux plastiques scintillants. L'opération de compensation ne visera plus, par conséquent, l'identification des électrons de conversion interne à 72 keV. Il s'agira de mettre en évidence une différence significative des taux de comptage intégrés entre un plancher, à quelques dizaines de keV, et un plafond voisin de 200 keV. La définition de la fenêtre d'intégration jusqu'à 200 keV nécessite, *a minima*, des

performances pseudo-spectroscopiques du capteur de rayonnement, telles qu'accessibles par un dopage en métaux lourds des plastiques [V.8]. Les scintillateurs dopés au bismuth décrits dans le Chapitre III seront donc utilisés. La prise en compte de la totalité de la signature en provenance du convertisseur de gadolinium, qu'elle soit d'origine photonique ou électronique, requiert, en outre, la compensation la plus précise possible des comptages induits par ce convertisseur hors captures radiatives $^{157}\text{Gd}(n, \gamma)$ et $^{155}\text{Gd}(n, \gamma)$. Ce besoin nous conduit à remplacer l'étain par du terbium comme couverture du second capteur.

PARTIE II : Présentation de la méthode de détection et de comptage

1. Principe de la méthode de détection et de comptage

Le principe du schéma de détection de rayonnement neutronique exposé dans ce paragraphe a fait l'objet d'une demande de dépôt de brevet, référencée en [V.9]. La méthode utilisée est celle d'une mesure par compensation, fondée sur les mêmes idées fondamentales que celle décrite et mise en œuvre dans le Chapitre III de cette thèse. Le schéma de détection et de comptage qui fait l'objet de ce chapitre repose sur les trois points-clés suivants :

- 1.1. L'utilisation d'une couverture de gadolinium au contact ou au voisinage d'un scintillateur plastique. Une fraction des neutrons thermiques incidents sur le système est convertie, *via* les captures radiatives $\text{Gd}(n, \gamma)$ dans cette couverture, en un terme source électronique et photonique ;
- 1.2. La mise en œuvre adjacente de deux scintillateurs plastiques identiques et couverts, dont :
 - le scintillateur 1, dit *scintillateur de détection*, est couvert d'une épaisseur homogène de gadolinium de façon à être sensible aux neutrons thermiques incidents ;
 - le scintillateur 2, dit *scintillateur de compensation*, est couvert d'une épaisseur homogène d'un autre élément que le gadolinium. Cet élément est choisi de sorte que l'ensemble formé par le scintillateur de compensation et sa couverture présente, en présence de toutes les composantes du rayonnement incident sur le détecteur hormis les neutrons thermiques (radioactivité naturelle, émission photonique parasite, neutrons rapides), la sensibilité la plus voisine possible de celle de l'ensemble formé par le scintillateur de détection et sa couverture. L'élément sélectionné doit en outre présenter une section efficace d'interaction avec les neutrons thermiques négligeable devant celle du gadolinium ;

La couverture du scintillateur de compensation a notamment pour vocation de compenser l'effet d'écrantage du scintillateur de détection par le gadolinium. Cet effet est, en effet, responsable d'un abaissement de la ligne de base du spectre à basse énergie, à partir de laquelle on entend isoler la signature des captures radiatives. Afin d'assurer la correction la plus fine possible des interactions du rayonnement parasite avec le gadolinium, l'élément sélectionné, pour une même épaisseur de couche que le convertisseur neutronique, doit posséder le numéro atomique et la masse volumique les plus proches de ceux du

gadolinium. De fait, ces deux paramètres gouvernent respectivement la probabilité des effets photoélectriques et Compton dans le milieu.

A ce titre, le candidat le plus naturel pour la compensation est l'élément terbium, de numéro atomique $Z_{Tb} = 65$ et de masse volumique $\rho_{Tb} = 8,23 \text{ g. cm}^{-3}$ ($Z_{Gd} = 64$, $\rho_{Gd} = 7,901 \text{ g. cm}^{-3}$ pour le gadolinium). Le terbium se présente naturellement sous une forme mono-isotopique : $^{159}_{65}\text{Tb}$, stable avec 94 neutrons. Le terbium présente, en outre, une section efficace d'interaction avec les neutrons $\sigma_{Tb} = 23,3 \text{ b}$ [V.10]. Cette section, rapportée à la section efficace $\sigma_{Gd} = 48769 \text{ b}$ du gadolinium naturel, représente une section relative d'environ 0,05 %, donc bel et bien négligeable. A défaut, d'autres lanthanides de la classification périodique des éléments peuvent être envisagés, tel que l'euprasiolite ($Z_{Eu} = 63$, $\rho_{Eu} = 5,244 \text{ g. cm}^{-3}$).

Nous cherchons à accroître, par l'élévation du numéro atomique effectif et de la densité du milieu, le taux de dépôt énergétique de la signature photonique des captures $^{157}\text{Gd}(n, \gamma)$ et $^{155}\text{Gd}(n, \gamma)$ dans le scintillateur plastique. A cette fin, un dopage de ce dernier en métaux lourds, et également insensibles aux neutrons thermiques, tels que le plomb ou le bismuth, peut être introduit. L'ambition de réaliser une identification de pics caractéristiques des désexcitations des noyaux $^{158}\text{Gd}^*$ et $^{156}\text{Gd}^*$, grâce aux propriétés pseudo-spectroscopiques à basse énergie de ces scintillateurs dopés, est également retenue. Cette option est notamment envisageable à volume faible et chargement massique en métal élevé du scintillateur.

- 1.3. Le traitement en compensation des signaux de comptage recueillis en sortie des voies de détection et de compensation. La soustraction de la réponse totale du scintillateur 2 à celle du scintillateur 1 doit permettre d'isoler la signature des interactions entre neutrons thermiques et noyaux de gadolinium dans 1. Le choix d'une couverture de compensation aux caractéristiques très proches de celle du gadolinium doit permettre, en reprenant la notation de la Partie I, paragraphe 1 du Chapitre III, d'égaliser à 1 le coefficient de compensation Q . Il doit être par conséquent possible de linéariser l'équation gouvernant le test d'hypothèse pour la détection et le comptage neutroniques.

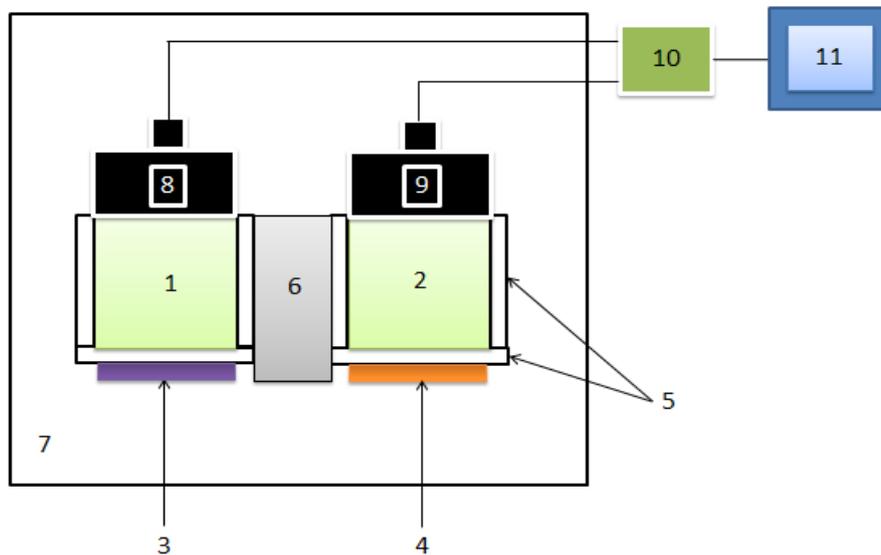
2. Mode de réalisation du schéma de détection et de comptage

2.1. Le capteur physique

La partie *capteur* du système de détection est constituée de deux scintillateurs plastiques identiques (mêmes volume, géométrie, composition et préparation), de composition classique ou dopés en élément lourd (bismuth dans la synthèse choisie pour l'évaluation du schéma de détection conduite dans le chapitre). Les scintillateurs peuvent être disposés côté à côté, ainsi comme représenté sur le schéma de principe de la Figure V.4, ou tête-bêche.

Le scintillateur de détection noté (1) est couvert d'une épaisseur de gadolinium (3) sous la forme d'une plaque ou feuille de métal, oxyde, grenat ou alliage, ou bien d'un dépôt homogène. Le scintillateur de compensation noté (2) est couvert d'une épaisseur identique de

terbium (4), dont la forme peut être déclinée selon les mêmes options. Les deux scintillateurs sont couverts par un matériau diffusant (5), peinture blanche ou Téflon, de façon à maximiser l'efficacité de collecte des photons de scintillation. Les deux voies identiques d'acquisition et de traitement des impulsions de scintillation sont isolées par une épaisseur de matériau au fort pouvoir atténuateur des rayonnements photoniques (6), du plomb par exemple. Cette isolation est dimensionnée de façon à minimiser le nombre de rayons X et gamma prompts générés par capture radiative $^{157}\text{Gd}(n, \gamma)$ ou $^{155}\text{Gd}(n, \gamma)$ dans (3) et détectés dans (2) par effet photoélectrique ou recul Compton. Les deux scintillateurs peuvent, de façon optionnelle, être isolés des rayonnements photoniques incidents sur le capteur par une épaisseur d'acier ou plomb atténuatrice (7). Ce blindage est complété par une couche de matériau modérateur des neutrons rapides ou épithermiques incidents, telle qu'une épaisseur de polyéthylène à haute densité (PEHD). Le but est alors de maximiser le rapport du signal d'intérêt, issu des neutrons thermiques, sur le signal à compenser induit par les autres rayonnements.



Légende :

- 1: Scintillateur plastique de détection (dopé au bismuth)
- 2: Scintillateur plastique de compensation (dopé au bismuth)
- 3: Couverture de gadolinium
- 4: Couverture de terbium
- 5: Diffuseur
- 6: Atténuateur
- 7: Blindage / modérateur
- 8: Photomultiplicateur
- 9: Photomultiplicateur
- 10: Chaîne d'acquisition et de traitement des impulsions
- 11: Logiciel et IHM

Figure V.4 : Schéma de principe de mise en œuvre de la méthode de détection.

La conversion des photons de scintillation émis dans (1) et (2) en photoélectrons et l'amplification du signal photo-électronique sont assurées au niveau des photomultiplicateurs (8) et (9). L'acquisition du signal électronique en sortie de (8) et (9) et le traitement des impulsions sont réalisés dans une chaîne électronique dédiée, notée (10). Les données de sorties sont transmises à un logiciel (11), au niveau duquel est effectuée l'opération mathématique de compensation. Le résultat de l'opération de compensation est affiché sur une interface homme-machine (IHM). On constate que le mode de réalisation du schéma introduit

dans le paragraphe précédent est semblable à celui décrit dans la Partie I, paragraphe 2 du Chapitre III, à l'exception de la forme sous laquelle sont introduits les éléments d'intérêt.

2.2. Numériseur, composant programmable, logiciel et interface homme-machine

La description de chaîne d'acquisition et de traitement des impulsions de scintillation, ainsi que du logiciel, est identique à celle présentée en Partie I, paragraphes 2.2 et 2.3 du Chapitre IV. Le seuil bas de comptage e_b est un degré de liberté de la mesure. Le plafond de comptage e_h est également réglable et par défaut fixé à la Q-value de la réaction $Gd(n, \gamma)$, soit environ 8 MeV en énergie. L'estimée du taux de comptage neutronique est directement fournie en sortie de l'algorithme de lissage appliqué au signal compté entre les bornes e_b et e_h . Le test d'hypothèse gouvernant la détection et le comptage neutroniques est décrit dans la Partie VII de ce chapitre.

PARTIE III : Préparation du milieu plastique scintillant et montage de la chaîne d'acquisition et de mesure

1. Préparation du milieu plastique scintillant

La mise en œuvre du schéma de détection et de comptage détaillé dans la Partie II nécessite la synthèse de scintillateurs plastiques dopés pour la conversion de la signature électronique et photonique des captures en un signal exploitable. Afin de s'affranchir des problèmes de répétabilité de la préparation, en vue de l'étude expérimentale de principe de la Partie VIII, la synthèse se limite à un scintillateur unique. Ce scintillateur sera couvert successivement par deux épaisseurs identiques de gadolinium et de terbium.

Comme indiqué dans la Partie II, le dopage du scintillateur plastique en élément lourd et sa montée en volume permettent d'élever le nombre d'interactions avec les produits de désexcitation des noyaux $^{158}Gd^*$ et $^{156}Gd^*$, et par conséquent le signal utile pour la détection. Le dopage donne également accès à un étalonnage à basse énergie, qui nous permettra de limiter le comptage par compensation à des plages énergétiques d'intérêt, dans une stratégie de maximisation du rapport signal sur bruit. Dans le même temps, le dopage et la montée en volume sont responsables d'une augmentation du nombre d'interactions photoélectriques et Compton avec le rayonnement gamma d'ambiance, et donc d'un surcroît de bruit de mesure. Ainsi, le taux massique d'élément lourd incorporé et le volume du milieu scintillant sont deux variables en fonction desquelles un optimum pour la préparation du capteur de rayonnement neutronique doit être déterminé.

La flexibilité requise a orienté le choix du complexe organométallique, dédié à l'incorporation d'élément lourd, vers le triphénylbismuth ($BiPh_3$) introduit dans la Partie II, paragraphe 4 du Chapitre III. Ce dernier complexe autorise, en effet, aussi bien un dopage en masse de bismuth élevé (jusqu'à 17 %m de bismuth) que la montée en volume des échantillons synthétisés (jusqu'à 155 cm³ pour 5 %m de bismuth). L'étude bi-paramétrique, dont le principe a été exposé ci-dessus, n'a pu être conduite dans le cadre de cette thèse. Nous nous sommes donc arrêtés sur une composition intermédiaire, introduisant un dopage modéré en bismuth, égal à 0,8 %m, et une montée en volume d'un ordre de grandeur par rapport aux scintillateurs plastiques dopés au bismuth de 2,8 cm³ décrits dans le Chapitre III.

La composition quinaire du milieu scintillant est identique à celle décrite pour E2 dans la Partie II, paragraphe 4.2 du Chapitre III, avec l'application d'un facteur multiplicatif égal à 6 sur la totalité des masses de composants introduits. La composition exacte du milieu scintillant est portée dans le Tableau V.1, où l'appellation *monomères* désigne le styrène à la base de la matrice et le 1,4-BuMA utilisé comme agent réticulant de la matrice. Le protocole de synthèse de l'échantillon est également identique à celui détaillé dans la Partie II, paragraphe 4.2 du Chapitre III. Le scintillateur plastique obtenu est découpé et poli en cylindre de diamètre $D = 3,3$ cm et de hauteur $h = 2,9$ cm, soit un volume total $V = 24,8$ cm³. Ce volume représente donc un facteur d'échelle approximativement égal à 9 par rapport au scintillateur E2 décrit dans le Chapitre III. La surface extérieure du scintillateur dopé au bismuth est enfin enveloppée dans une épaisseur homogène de 200 µm de Téflon, afin d'accroître l'efficacité de collecte des photons de scintillation.

$m_{\text{monomères}}$ (g)	m_{PPO} (g)	$m_{\text{Bis-MSB}}$ (g)	m_{BiPh_3} (mg)	% m_{Bi} (%m)
13,44	4,14	15,4	420	0,8

Tableau V.1 : Composition du scintillateur plastique dopé au bismuth.

Comme il a été mentionné dans la Partie II, paragraphe 1.2 du Chapitre II, le rendement lumineux, noté R_{ph} et exprimé en photons de scintillation par MeV (ph. MeV⁻¹) déterminé en sortie de chaîne est le facteur de mérite le plus crucial pour la caractérisation d'un scintillateur plastique. Ce rendement gouverne, en effet, la sensibilité et la résolution, à gain du photomultiplicateur et propriétés du rayonnement incident donnés, atteignables par le capteur. La préparation décrite ci-dessus représente une montée en volume d'un ordre de grandeur par rapport aux échantillons caractérisés dans la Partie III du Chapitre III. Or le passage à l'échelle des milieux plastiques scintillants, notamment dopés en éléments lourds, génère une auto-absorption de la luminescence qui dégrade le rendement lumineux. Il importe donc de s'assurer que cette dernière dégradation n'est pas incompatible avec la mise en œuvre du scintillateur.

Le rendement lumineux du scintillateur plastique dopé au bismuth est déterminé selon la méthode relative de la Partie II, paragraphe 4 du Chapitre II, avec la chaîne d'acquisition et de traitement des impulsions décrite Chapitre IV, Partie IV, paragraphe 2. La haute tension est réglée à 1700 V. Le scintillateur de référence, de rendement lumineux égal à $R_{ph}(478 \text{ keV}) = 10000 \pm 100$ ph. MeV⁻¹, est un scintillateur commercial EJ-200 de géométrie identique à notre échantillon, et de même volume. Les deux scintillateurs plastiques sont successivement exposés à une source de césium 137 d'activité $A = 34$ MBq contenue dans un pot de plomb pendant une durée $T = 600$ s. Le rapport des numéros de canaux correspondant à 80 % du maximum Compton fournit alors une valeur du rendement lumineux relatif de l'échantillon par rapport au scintillateur de référence. Un rendement lumineux égal à $R_{ph}(478 \text{ keV}) = 8200 \pm 200$ ph. MeV⁻¹ est ainsi calculé pour le scintillateur plastique dopé au bismuth, facteur de mérite satisfaisant pour la détection des rayonnements gamma. Or ces derniers constituent une fraction importante de la signature des captures neutroniques dans la couverture de gadolinium, comme nous le verrons dans l'étude présentée en Partie IV.

Les propriétés optiques correctes du scintillateur dopé, au regard de la turbidité, de l'homogénéité de la luminescence, sont illustrées sur la Figure V.5 en éclairage ultraviolet, à la longueur d'onde $\lambda = 365$ nm (à gauche, à comparer avec la réponse UV du scintillateur EJ-200 à droite).

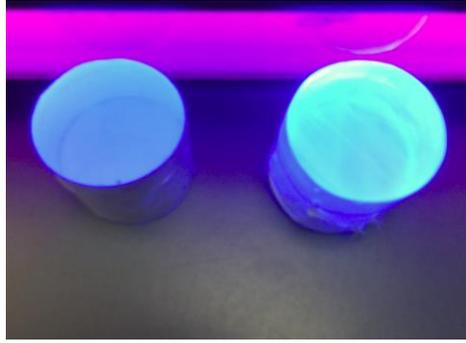


Figure V.5 : Eclairage UV du scintillateur plastique dopé au bismuth (à gauche) et du scintillateur EJ-200 de référence (à droite).

2. Montage et chaîne d'acquisition

Le montage expérimental et la chaîne d'acquisition déployés en vue de l'étude des couvertures de gadolinium et de terbium, sur le scintillateur plastique dopé au bismuth et décrit dans le paragraphe précédent, sont identiques à ceux présentées au Chapitre IV, Partie IV, paragraphe 2.

PARTIE IV : Etude par simulation de la signature des captures neutroniques dans le scintillateur plastique dopé au bismuth et couvert de gadolinium

Nous suivons ici la même méthodologie que celle décrite dans la Partie IV du Chapitre III. La signature dans le milieu plastique scintillant des produits de réactions, issus des captures $Gd(n, \gamma)$ dans la couverture de gadolinium, est étudiée par simulation au moyen du code MCNPX2.6.0. La simulation est conduite, successivement, en utilisant le terme source fourni par la librairie ENDF/B-VII.0, et le terme source simplifié et explicite calculé aux paragraphes 2 et 3 du Chapitre I.

Le scintillateur de détection dopé à 0,8 %m en bismuth est modélisé sous la forme d'un cylindre parfait de hauteur $h = 2,9$ cm et de diamètre $D = 3,3$ cm, de masse volumique $\rho_{PS} = 1,1$ g.cm⁻³ évaluée au moyen d'une balance de pesée. La carte benz.01t du code MCNPX2.6.0 est utilisée pour rendre compte de la structure styréniq ue de la matrice plastique. La composition du scintillateur est décrite par les proportions massiques suivantes : 84,6 %m de carbone ; 7,1 %m d'hydrogène ; 6,2 %m d'oxygène ; 1,3 %m d'azote ; 0,8 %m de bismuth.

La couverture est quant à elle modélisée sous la forme d'une épaisseur de 250 μ m de gadolinium naturel, de densité $\rho_{Gd} = 7,901$ g.cm⁻³ et de pureté 100 %, au contact du scintillateur plastique. Ce modèle représente la plaque métallique utilisée pour l'évaluation expérimentale du principe détaillée dans la Partie VIII.

Notons ici que cette dernière épaisseur ne correspond pas à l'épaisseur optimale de couverture. L'optimum est, en effet, le résultat d'un compromis entre le taux de capture des neutrons thermiques (croissant avec l'épaisseur) et le taux d'échappement des produits de réaction de la plaque (décroissant avec l'épaisseur). Il est voisin de 25 μ m. L'épaisseur de 250 μ m était, toutefois, l'épaisseur minimale disponible au sein du laboratoire lors de la

conduite de ces travaux. Par ailleurs, la courbe d'optimisation est « douce », c'est-à-dire de dérivée faiblement variée pour des épaisseurs de gadolinium comprises entre 10 μm et 250 μm . Sur cet intervalle, l'écart relatif de l'amplitude de la signature totale dans le milieu de détection est au plus de -15% par rapport à l'optimum. Nous avons, par conséquent, retenu l'épaisseur disponible pour l'étude expérimentale de principe de la Partie VIII. L'enrubannement de Téflon décrit dans la Partie III n'étant, enfin, pas présent à l'interface avec le convertisseur, il a été négligé dans cette simulation.

La configuration simulée est illustrée sur la Figure V.6 avec l'interface homme-machine Moritz 1.23. La distribution spectrale de la signature, estimée avec la librairie ENDF/B-VII.0, est reproduite sur la Figure V.7 entre 20 keV et 1 MeV. Le taux de dépôt par capture neutronique $\text{Gd}(n, \gamma)$ (d. cn^{-1}), évalué, a été porté sur l'axe des ordonnées.

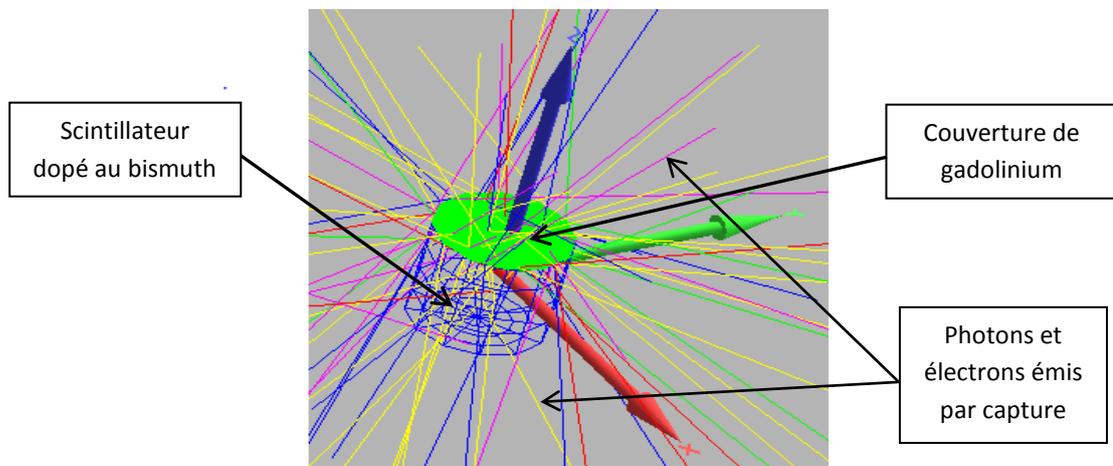


Figure V.6 : Configuration simulée au moyen du code MCNPX2.6.0 pour l'estimation de la signature d'une capture neutronique dans le scintillateur dopé au bismuth (Moritz 1.23).

La signature prend, de même que celle obtenue au Chapitre III, Partie IV, la forme d'un continuum jusqu'à 8 MeV, dont la distribution est fortement pondérée à basse énergie. Ceci s'explique, une fois encore, par les faibles densité et numéro atomique effectif du scintillateur, ainsi que le volume modéré de ce dernier. Le volume du scintillateur étant toutefois plus élevé que celui du scintillateur H3 simulé dans le Chapitre III, cette pondération est moins prononcée. Ainsi, la signature entre 20 keV et 1 MeV, représentée sur la Figure V.7, contient $66 \pm 0,5\%$, soit un taux de $2,00 \pm 0,1 \text{ d. cn}^{-1}$, de la totalité du taux de dépôt énergétique des produits de réaction $\text{Gd}(n, \gamma)$ générés avec ENDF/B-VII.0, contre 82 % pour le scintillateur H3.

Le spectre obtenu fait apparaître un front entre 50 keV et 200 keV. Ce front correspond aux énergies des rayonnements gamma prompts à basse énergie les plus intensément émis, décrits dans le Chapitre I, paragraphes 2.1. Les contributions respectives de ces termes sont toutefois indiscernables sur la distribution générée. L'apparition de deux pics à 43 keV et 50 keV, qui correspondent aux raies X les plus intenses du Tableau I.6, différencie, en outre, la signature obtenue dans cette configuration de celle reproduite sur la Figure III.12.

Afin d'interpréter physiquement la distribution spectrale de la Figure V.7, les deux simulations complémentaires de la Partie IV du Chapitre III sont appliquées à la configuration de ce chapitre. Ces simulations utilisent le terme source photonique et électronique simplifié et explicite calculé au Chapitre I, par la réunion :

- du spectre gamma prompt de la Figure I.3 ;
- des électrons de conversion interne du Tableau I.4 ;
- des émissions X et Auger du Tableau I.6.

Le modèle d'élargissement gaussien de l'Equation (III.1) est paramétré à partir des largeurs à mi-hauteur relevées sur les pics d'absorption totale de l'américium 241 ($E_{PP,^{241}\text{Am}} = 59,5 \text{ keV}$) et du cobalt 57 ($E_{PP,^{57}\text{Co}} = 122 \text{ keV}$) de la Figure V.11, présentée dans la Partie VI. Les valeurs des paramètres $a = -0,0522 \text{ MeV}$ et $b = 0,2468 \text{ MeV}^{-1/2}$, calculées à partir de ces relevés et de l'Equation (III.1), sont portées en entrée de la carte GEB.

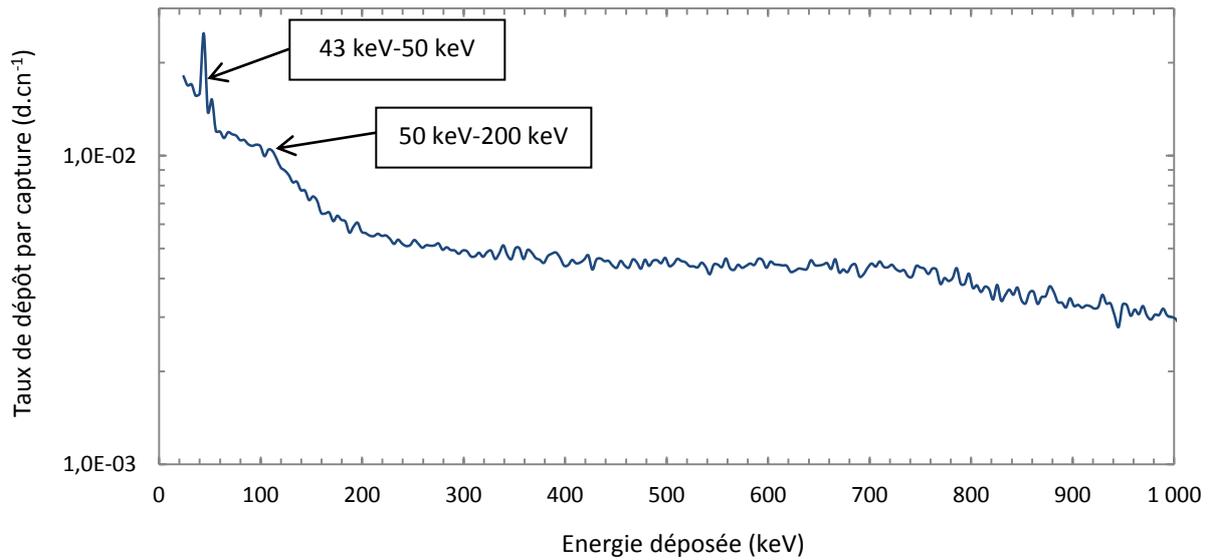


Figure V.7 : Distribution en énergie simulée avec la librairie ENDF/B-VII.0 de la signature d'une capture neutronique dans le scintillateur dopé au bismuth.

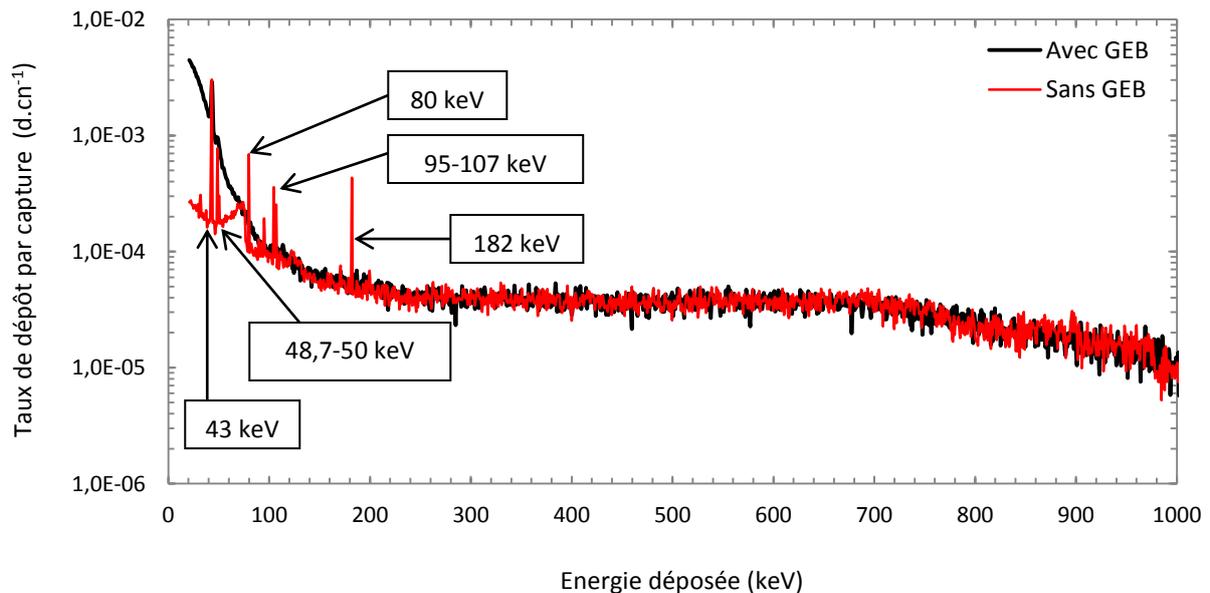


Figure V.8 : Distribution en énergie simulée avec le terme source explicite de la signature d'une capture neutronique dans le scintillateur dopé au bismuth (avec et sans GEB).

Les spectres d'énergie déposée par le terme source dans le scintillateur plastique dopé au bismuth, estimés au moyen du tally 8 de MCNPX2.6.0, avec et sans utilisation de la carte GEB, sont superposés sur la Figure V.8.

Le spectre en énergie déposée, simulé sans la carte GEB, met en évidence, de même qu'au Chapitre III, des pics caractéristiques au taux de dépôt très significatif. Les pics à 80 keV et 182 keV, qui correspondent aux deux raies gamma promptes de capture $^{157}\text{Gd}(n, \gamma)$ dominant le spectre de la Figure III.1 à basse énergie, sont communs aux signatures de la Figure III.13 et de la Figure V.8 présentée ici.

En revanche, les pics associés aux électrons de conversion interne à 29 keV, 72 keV, 89 keV et 132 keV ne sont plus identifiables dans la configuration de ce chapitre, ce qui s'explique par l'auto-absorption du convertisseur métallique. Les électrons, en effet, formant un terme source directement ionisant, présentent un taux d'échappement de la couverture significativement plus faible que les photons.

La Figure V.8 fait, en revanche, apparaître des pics intenses à 43 keV, 48,7 keV, 50 keV, et 105-107 keV. Les trois premiers correspondent aux raies X les plus intenses du Tableau I.6, et leurs taux de dépôt sont les plus élevés de la signature simulée sans la carte GEB, en accord avec les observations faites sur la Figure V.7. Ces pics n'apparaissaient pas dans les résultats de la simulation portés sur la Figure III.11, en raison de la sommation de leurs contributions à celle des électrons de conversion interne auxquels leur émission est associée, selon la description du Chapitre I, paragraphe 3. Ainsi, les énergies de 43 keV à 50 keV ajoutées à celle de l'électron de conversion interne émis à 29 keV forment un pic d'absorption totale au voisinage de 80 keV, observé sur la Figure III.11, et confondu avec celui de la raie à 80 keV du terme source gamma prompt. Dans le schéma de détection simulé ici, au contraire, le terme source électronique est en grande partie arrêté par l'épaisseur de gadolinium métallique, si bien que les raies X seules apparaissent identifiables. L'apparition de pics à 95-107 keV correspond, quant à elle, à des pics d'échappement X caractéristiques d'un milieu de détection dopé au bismuth associés aux effets photoélectriques pour la raie gamma prompte émise à 182 keV. En effet, l'énergie de liaison des électrons de la couche principale K du bismuth varie entre 74 keV et 90 keV [V.11].

Le spectre en énergie déposée, simulé avec la carte GEB, préserve l'importance de ces signatures sous la forme unique entre 20 keV et 200 keV, décrivant un profil analogue à celui obtenu au moyen de la librairie ENDF/B-VII.0, borné à 200 keV. Les taux de dépôt très élevés des raies X se détachent toutefois du spectre obtenu, offrant une interprétation physique à leur identification sur le spectre de la Figure V.7. Ces résultats tendent une fois encore à corroborer la prépondérance du terme source, ici essentiellement photonique, entre 20 keV et 200 keV construit au Chapitre I, dans la signature des captures au sein du scintillateur dopé.

De même que le spectre simulé sur la Figure V.7, le spectre attendu d'après la Figure V.8 n'autorisera pas l'identification de raies caractéristiques des désexcitations radiatives $^{157}\text{Gd}(n, \gamma)$ et $^{155}\text{Gd}(n, \gamma)$, hormis les raies X du gadolinium. En conséquence, l'étude expérimentale du principe, fondée sur l'irradiation d'un scintillateur plastique dopé au bismuth, se bornera à la *comparaison des comptages* enregistrés à moins de 200 keV avec des couvertures de gadolinium et de terbium.

L'intensité relative des signatures espérées, telles que représentées sur les Figures III.11 et V.8, fournit en outre une première indication sur le rapport des sensibilités du schéma de détection mis en œuvre dans le Chapitre III et du schéma alternatif illustré dans ce chapitre. Ainsi, par exemple, les taux de dépôt associés à l'absorption totale de la raie gamma prompte d'énergie $E_\gamma = 79,5 \text{ keV}$ (80 keV) dans le scintillateur dopé au gadolinium du Chapitre III et le scintillateur dopé au bismuth et couvert d'une plaque de gadolinium modélisé ici, valent respectivement $D_\gamma = 1,1 \cdot 10^{-3} \text{ d. cn}^{-1}$ et $D_\gamma = 6,9 \cdot 10^{-4} \text{ d. cn}^{-1}$. Le quotient de ces taux, pour être évocateur des sensibilités relatives, doit être rapporté aux masses de gadolinium modélisées dans les deux études, soit :

- $m_{\text{Gd}} = 198 \text{ mg}$ pour le scintillateur plastique dopé à 2 %m en gadolinium du Chapitre III ;
- $m_{\text{Gd}} = 1689 \text{ mg}$ pour l'épaisseur de 250 μm de gadolinium simulée dans ce chapitre.

Le quotient admet alors pour valeur :

$$\eta = \frac{1,1 \cdot 10^{-3} \cdot 1689}{6,9 \cdot 10^{-4} \cdot 46} \sim 60 \text{ (V.1)}$$

ce qui représente un ordre et demi de grandeur en faveur du schéma de détection mis en œuvre dans le Chapitre III, au regard de ce premier critère de mérite. En sommant la totalité des dépôts sur la plage $\mathcal{F} = [60 \text{ keV} ; 200 \text{ keV}]$, le quotient $\eta \sim 30$. Cette sommation correspond à la plage d'intérêt définie ci-dessus et sera mise en œuvre dans la Partie VIII pour l'étude expérimentale du concept, Ce résultat confirme la prédiction d'Abdushukurov [V.12] quant à l'efficacité supérieure d'une incorporation homogène du gadolinium, par rapport à une stratégie de couverture externe au milieu de détection. Cette efficacité repose sur la collecte des produits de réactions photoniques à basse énergie, notamment les raies X et les rayonnements gamma prompts d'énergie inférieure à 200 keV.

PARTIE V : Compensation de la réponse photonique et neutronique rapide par la couverture de terbium

Afin d'estimer la réjection du bruit de fond gamma, nous étudions par simulation, les réponses des ensembles {scintillateur plastique + couverture de gadolinium} et {scintillateur plastique + couverture de terbium} à un jeu de sources photoniques. Ces sources sont d'émission sphérique et isotrope, et simulées à une distance $d = 10 \text{ cm}$ du centre de masse des ensembles définis. Le scintillateur plastique dopé au bismuth et la plaque de gadolinium métallique sont modélisés identiquement à ceux décrits dans la Partie IV. La plaque de terbium, utilisée comme couverture du scintillateur de compensation, est modélisée sous la forme d'une épaisseur homogène de 250 μm , de densité $\rho_{\text{Tb}} = 8,23 \text{ g. cm}^{-3}$ et de pureté 100 %, au contact du scintillateur plastique. Ce modèle représente la plaque métallique utilisée pour l'évaluation expérimentale du principe détaillée dans la Partie VIII.

Les spectres d'énergie déposée dans le scintillateur plastique dopé au bismuth sont évalués au moyen du tally 8 de MCNPX2.6.0, sans utilisation de la carte GEB, afin de mettre en évidence les processus physiques sous-jacents aux éventuelles divergences entre les réponses. Les résultats sont présentés sur les Figures V.9 et V.10 pour des termes sources gamma mono-

énergétiques d'énergie $E_\gamma = 662 \text{ keV}$ et $E_\gamma = 122 \text{ keV}$ respectivement. Nous rappelons qu'une raie à 662 keV est représentative, au premier ordre, de l'émission gamma d'une source de césium 137. De même, une raie à 122 keV est représentative, au premier ordre, de l'émission gamma d'une source de cobalt 57. L'axe des ordonnées représente le taux de dépôt énergétique dans le scintillateur dopé au bismuth par photon gamma généré, exprimé en dépôt par photon gamma ($\text{d.}\gamma^{-1}$).

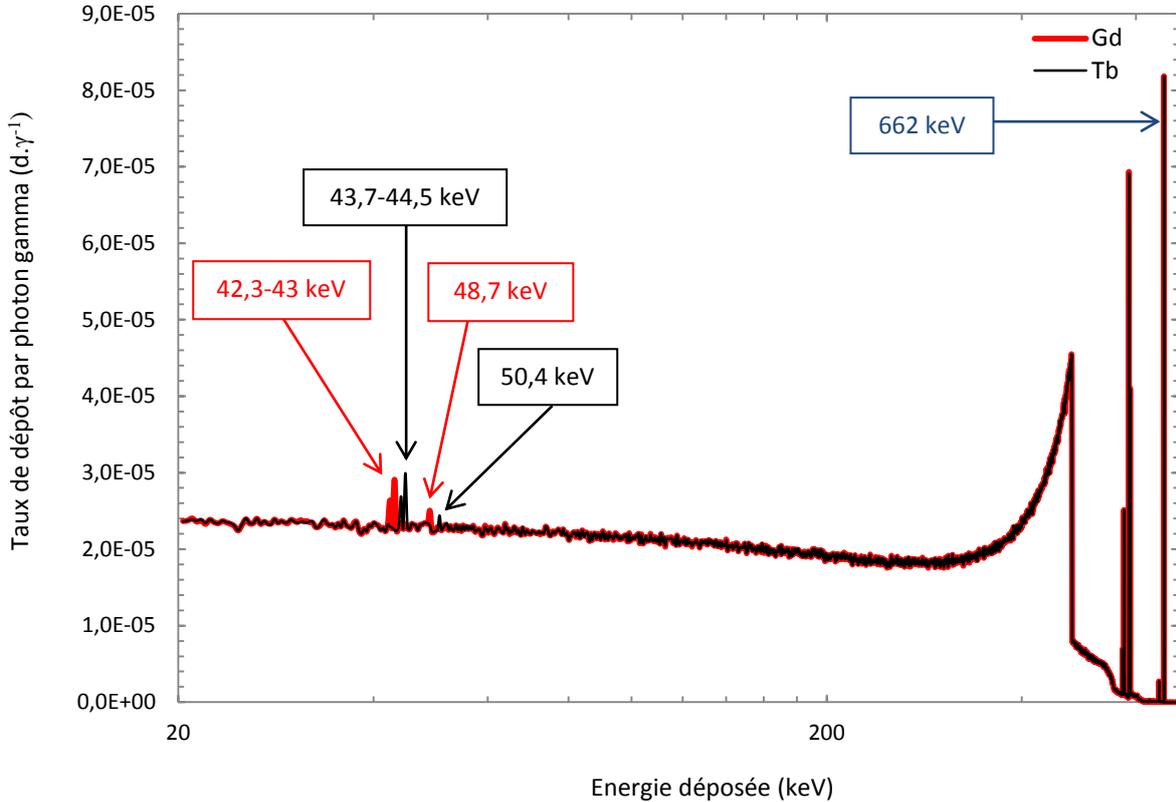


Figure V.9 : Réponse spectrale simulée du scintillateur plastique dopé au bismuth en présence d'une ambiance photonique à 662 keV, couvert d'une plaque de gadolinium ou de terbium (sans GEB).

Les spectres reproduits sur les Figures V.9 et V.10 font apparaître l'excellente compensation des réponses photoniques, notamment comparée aux écarts d'au moins un demi-ordre de grandeur obtenus pour les échantillons H3 et E2 du Chapitre III. La divergence majeure entre les deux ensembles formés du capteur et d'un convertisseur métallique, est limitée à la plage de dépôt $\mathcal{F} = [40 \text{ keV} ; 55 \text{ keV}]$. Sur cette plage, trois couples de pics intenses, associés au gadolinium et au terbium, apparaissent décalés. Ces pics correspondent aux raies X notées K_{α_1} , K_{α_2} et K_{β_1} du gadolinium et du terbium, qui, bien que très voisines, sont toutefois distinguables à l'échelle du keV. Ainsi les énergies associées à ces transitions et tabulées dans la littérature [V.11] ont pour valeurs (à 0,1 keV près) :

- $E_{K_{\alpha_1}} = 43,0 \text{ keV}$, $E_{K_{\alpha_2}} = 42,3 \text{ keV}$ et $E_{K_{\beta_1}} = 48,7 \text{ keV}$ pour le gadolinium ;
- $E_{K_{\alpha_1}} = 44,5 \text{ keV}$, $E_{K_{\alpha_2}} = 43,7 \text{ keV}$ et $E_{K_{\beta_1}} = 50,4 \text{ keV}$ pour le terbium, ainsi qu'on peut le vérifier sur les spectres des Figures V.9 et V.10.

De façon à affranchir la mesure par compensation de cette divergence, les comptages en vue de l'étude expérimentale du principe se limiteront à une plage supérieure à la zone de signature des raies X. Le seuil bas en énergie est, par exemple, marqué par le pic d'absorption totale de l'américium 241 à l'énergie $E_{PP,^{241}\text{Am}} = 59,5 \text{ keV}$.

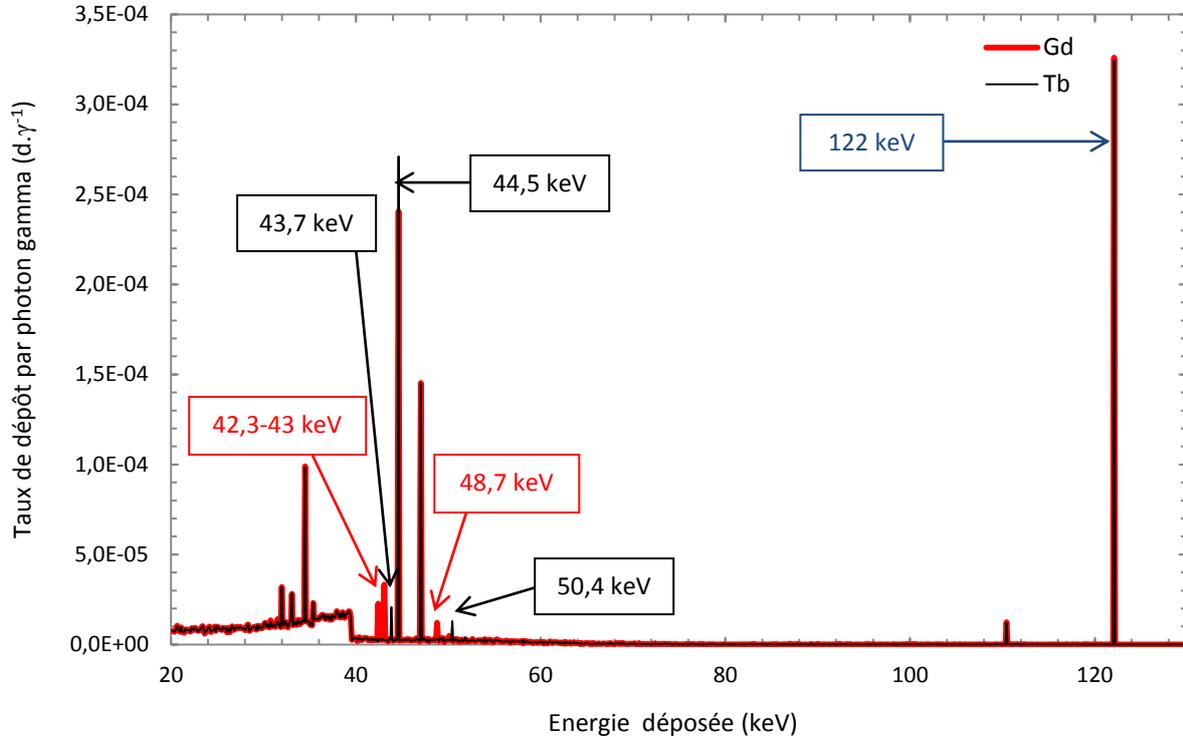


Figure V.10 : Réponse spectrale simulée du scintillateur plastique dopé au bismuth en présence d'une ambiance photonique à 122 keV, couvert d'une plaque de gadolinium ou de terbium (sans GEB).

L'analyse des distributions spectrales des Figures V.9 et V.10 révèle également de fines divergences dans l'amplitude des pics dominant la signature des ambiances gamma au sein du scintillateur dopé. Nous définissons $Q_{\text{Gd/Tb}}$ comme le rapport des taux de dépôt, entre le capteur couvert de gadolinium et le capteur couvert de terbium. Sur la Figure V.9, des valeurs de l'ordre de $Q_{\text{Gd/Tb}} = 0,998 \pm 0,002$ sont calculées, en sommant les dépôts par groupes de 50 pas d'énergie, à gauche du pic d'absorption totale à 662 keV. Sur cette même figure, nous obtenons un rapport $Q_{\text{Gd/Tb}} = 1,002 \pm 0,001$ au niveau du pic d'absorption totale. En sommant la totalité des dépôts sur la plage $\mathcal{F} = [60 \text{ keV} ; 200 \text{ keV}]$, la valeur de $Q_{\text{Gd/Tb}} = 0,998 \pm 0,0005$ est également calculée. Ce résultat signifie que, hors intégration au voisinage très proche du pic d'absorption totale, la couverture de terbium surcompense très légèrement celle de gadolinium. Cette surcompensation peut toutefois, d'après l'Equation (III.27), devenir significative pour des comptages élevés sur les deux voies. Des observations du même type peuvent être tirées de la distribution spectrale de la Figure V.10, avec dans ce cas une sous-compensation du terbium de l'ordre de $Q_{\text{Gd/Tb}} = 1,005 \pm 0,001$ sur la plage $\mathcal{F} = [60 \text{ keV} ; 122 \text{ keV}]$.

Le schéma de détection à base de couvertures de gadolinium et de terbium permet donc, théoriquement, une correction de la divergence du coefficient de compensation $Q(E_\gamma)$ de près de trois ordres de grandeur par rapport aux résultats de l'étude conduite dans la Partie VI du

Chapitre III. Cette correction est, toutefois, minorée par la dégradation attendue de la sensibilité neutronique de un à deux ordres de grandeur, d'après la discussion de la partie précédente. Elle autorise toutefois, dans un premier temps, une mise en œuvre de l'opération de compensation sous la forme d'un test d'hypothèse. Le test est identique à celui présenté dans l'Equation (III.27), où le coefficient Q est supposé indépendant de l'énergie ($\sigma(Q(E_\gamma)) = 0$) et égal à 1.

En pratique, une sous-compensation de la réponse à un émetteur gamma de basse énergie (moins de 200 keV) sur des plages de comptage à moins de 200 keV, dont l'intérêt a été justifié dans la Partie IV, n'a jamais été observée avec les sources émettrices gamma à basse énergie disponibles au sein du laboratoire (américium 241, cobalt 57). En vue de l'étude expérimentale du schéma de détection, notre choix s'est donc porté sur la source de césium 137 utilisée pour l'étalonnage du scintillateur décrit dans la Partie VI. Cette source présente une activité très supérieure ($A_{137\text{Cs}} = 34 \text{ MBq}$) à celle des autres émetteurs gamma employés dans la même partie. Elle autorisera, par conséquent, la validation de la compensation en présence d'un débit de dose gamma plus important.

Les scintillateurs plastiques du schéma de principe de la Figure V.4 ont la même composition et les mêmes dimensions. Les ensembles {scintillateur plastique + couverture de gadolinium} et {scintillateur plastique + couverture de terbium} présenteront donc le même nombre d'atomes légers susceptibles d'interagir avec la composante rapide du rayonnement neutronique incident. Ce point justifie immédiatement l'égalité à 1 du coefficient de compensation Q de la réponse neutronique rapide. Une étude identique à celle de la Partie VIII du Chapitre III a enfin été conduite. Des conclusions similaires en ont été tirées, à savoir que :

- moyennant une épaisseur modérée de plomb, de l'ordre de 5 cm, entre les deux ensembles, aucune contribution significative de la signature d'une capture radiative dans le convertisseur de gadolinium n'est sensible au niveau des dépôts énergétiques dans le scintillateur 2 ;
- la divergence entre les coefficients de compensation de l'activité photonique et neutronique rapide après assemblage des deux capteurs et de l'atténuateur est négligeable, le coefficient Q demeurant égal à 1 à moins de 0,5 % près.

Ces conclusions justifient, comme dans le Chapitre III, une étude expérimentale séparée des deux ensembles, formés du même scintillateur plastique dopé au bismuth. Nous nous affranchirons ainsi des incertitudes portant sur la répétabilité de la préparation du milieu plastique scintillant.

PARTIE VI : Etalonnage en énergie du scintillateur plastique dopé au bismuth

Afin de mettre en œuvre la compensation sur une fenêtre d'intérêt en dessous de 200 keV, il est nécessaire, pour le scintillateur plastique dopé au bismuth, d'établir une correspondance entre le numéro de chaque canal sur lequel sont enregistrés des coups et une valeur d'énergie. L'étalonnage est réalisé en utilisant plusieurs sources radioactives émettrices de rayonnements gamma disponibles au sein du laboratoire. Chacune des sources est placée à une distance $d = 1,5 \text{ cm}$ de la surface d'entrée du scintillateur le long de son axe de symétrie :

- une source d'américium 241, dont le pic d'absorption totale est observé à $E_{PP,^{241}\text{Am}} = 59,5 \text{ keV}$;
- une source de cobalt 57, dont le pic d'absorption totale est observé à $E_{PP,^{57}\text{Co}} = 122 \text{ keV}$;
- une source d'euporium 152, dont le pic d'absorption totale à $E_{PP,^{152}\text{Eu}} = 122 \text{ keV}$, ainsi que les fronts Compton à $E_{CE_1,^{152}\text{Eu}} = 198 \text{ keV}$ et $E_{CE_2,^{152}\text{Eu}} = 245 \text{ keV}$, respectivement associés aux deux raies $E_{\gamma_1,^{152}\text{Eu}} = 245 \text{ keV}$ et $E_{\gamma_2,^{152}\text{Eu}} = 344 \text{ keV}$, sont relevés.

Le scintillateur étalonné possède un volume moyen, voisin de 25 cm^3 , et son chargement en bismuth est modéré, égal $0,8 \text{ \%m}$. Par conséquent, les pics d'absorption totale associées à la seconde et troisième raies dominantes de l'émission gamma de l'euporium 152 n'ont pu être observés. C'est la raison pour laquelle les fronts Compton associés à ces raies ont été utilisés pour l'étalonnage.

Les spectres en amplitudes exprimés en comptages normalisés acquis pour le scintillateur soumis aux trois sources radioactives listées *supra*, sont portés sur la Figure V.11. La haute tension a été fixée à 2000 V pour l'acquisition des spectres. La position du pic photoélectrique ou du front Compton, ainsi que l'incertitude associée sur le numéro du canal, sont déterminées selon la procédure décrite au Chapitre II, Partie II, paragraphe 4. Ces valeurs sont portées sur la courbe d'étalonnage présentée en Figure V.12. En l'absence d'hypothèse de loi sur la dépendance du coefficient de conversion d'une énergie déposée à un numéro de canal donné, les points sont joints par des segments de droite. Nous constatons que sur la plage choisie, un modèle linéaire décrit la dépendance du numéro de canal en fonction de l'énergie déposée par le rayonnement gamma.

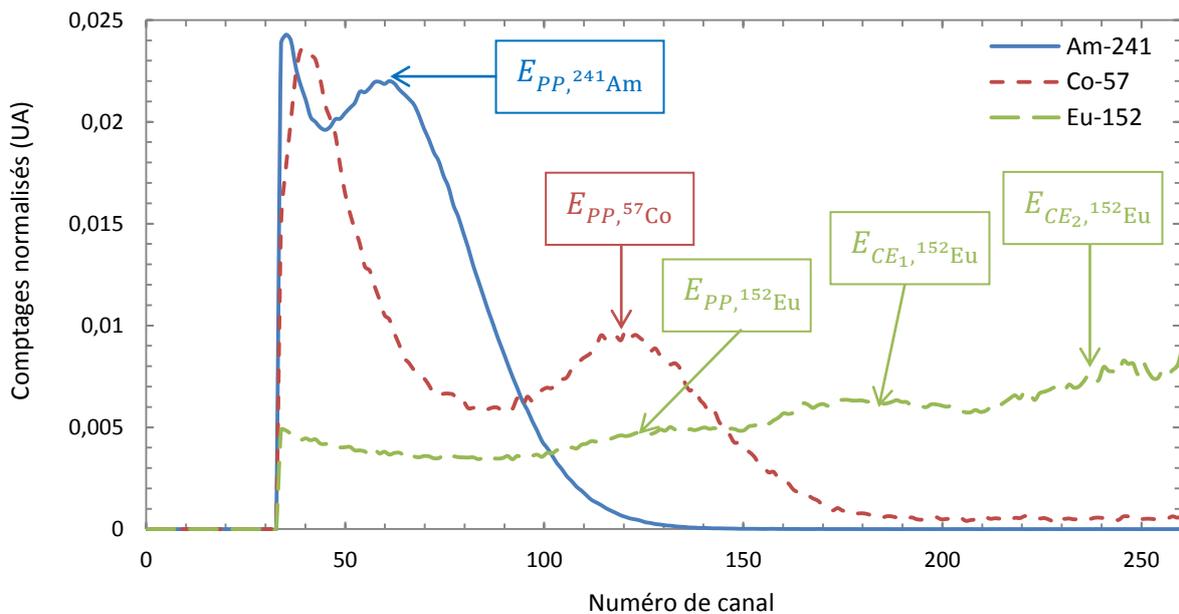


Figure V.11 : Spectres en énergie du scintillateur plastique dopé au bismuth en réponse à des sources d'américium 241, de cobalt 57 et d'euporium 152.

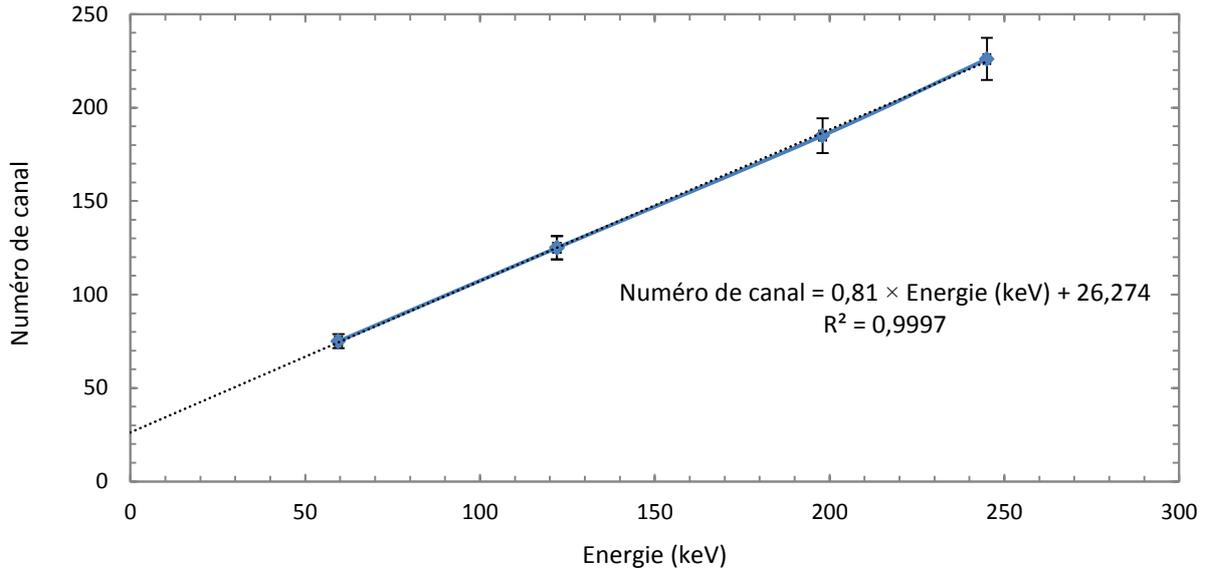


Figure V.12 : Courbe d'étalonnage en énergie du scintillateur plastique dopé au bismuth.

PARTIE VII : Test d'hypothèse pour la détection et le comptage neutroniques

Les valeurs de comptage N_1 et N_2 sont intégrées sur une plage temporelle T , fixée de telle sorte que l'estimation soit stable et précise. Les estimées des taux de comptage sur la voie 1 (scintillateur couvert d'une plaque de gadolinium) et la voie 2 (scintillateur couvert d'une plaque de terbium) sont respectivement notées $\widehat{\lambda}_1$ et $\widehat{\lambda}_2$. Les écarts-types associés à ces estimées sont notés $\sigma(\widehat{\lambda}_1)$ et $\sigma(\widehat{\lambda}_2)$. Ces grandeurs sont calculées selon les formules :

$$\widehat{\lambda}_1 = \frac{N_1}{T} \quad (\text{V. 2})$$

$$\widehat{\lambda}_2 = \frac{N_2}{T} \quad (\text{V. 3})$$

$$\sigma(\widehat{\lambda}_1) = \sqrt{\frac{\widehat{\lambda}_1}{T}} \quad (\text{V. 4})$$

$$\sigma(\widehat{\lambda}_2) = \sqrt{\frac{\widehat{\lambda}_2}{T}} \quad (\text{V. 5})$$

La sensibilité neutronique attendue pour le convertisseur de gadolinium de surface limitée, utilisé dans l'étude expérimentale de principe décrite dans la Partie VIII, est faible, de l'ordre du centimètre carré. La détection et le comptage s'appuieront sur les seules données moyennes présentées dans ces équations, avec T suffisamment grand. Elles ne reflètent donc pas, à ce stade, un temps d'intégration compatible avec une mesure en ligne. Une mesure de comptage en continu, identique à celle décrite dans les Parties IX et X du Chapitre III, n'a donc pas été reconstituée dans le cadre de cette étude. La durée d'acquisition T sera toutefois

limitée à des valeurs permettant, par la suite, de ramener le fonctionnement du schéma de détection à une réponse temporelle de l'ordre de la minute :

- par le gain en efficacité qu'il est possible d'espérer de l'optimisation du capteur, d'une part ;
- par la multiplication des cellules élémentaires à un coût raisonnable, d'autre part.

Cette durée a donc été bornée, dans un premier temps, à deux ordres de grandeur de plus que la minute, comme il sera illustré dans la Partie VIII.

L'opération de détection et de comptage neutroniques est le résultat d'un test d'hypothèse. L'hypothèse nulle, notée \mathbf{H}_0 , correspond à l'absence d'activité neutronique. L'hypothèse alternative, notée \mathbf{H}_1 , à la présence d'une activité neutronique détectable. Le test de décision, explicité dans l'Equation (V.6) et paramétré par un facteur d'élargissement noté t_K . Ce test est fondé sur la comparaison des taux de comptage estimés sur les deux voies à un seuil de significativité, multiple de l'écart-type associé à la différence :

$$\text{Si : } \widehat{\lambda}_1 - \widehat{\lambda}_2 > t_K \cdot \sqrt{\sigma^2(\widehat{\lambda}_1) + \sigma^2(\widehat{\lambda}_2)} \quad (\text{V.6})$$

Alors l'hypothèse \mathbf{H}_1 est acceptée avec un niveau de confiance $1 - K$.
Sinon l'hypothèse \mathbf{H}_0 est acceptée.

Le facteur d'élargissement t_K gouverne le compromis entre la sensibilité S_n du schéma de détection aux neutrons thermiques et la probabilité de fausse détection K . La distribution $K = f(t_K)$ associée au test de l'Equation (V.6) est celle d'une loi de Skellam centrée. Elle admet la caractéristique reproduite sur la Figure V.13 : pour assurer un niveau de confiance $1 - K = 95 \%$, le facteur d'élargissement est fixé à $t_K = 1,96$.

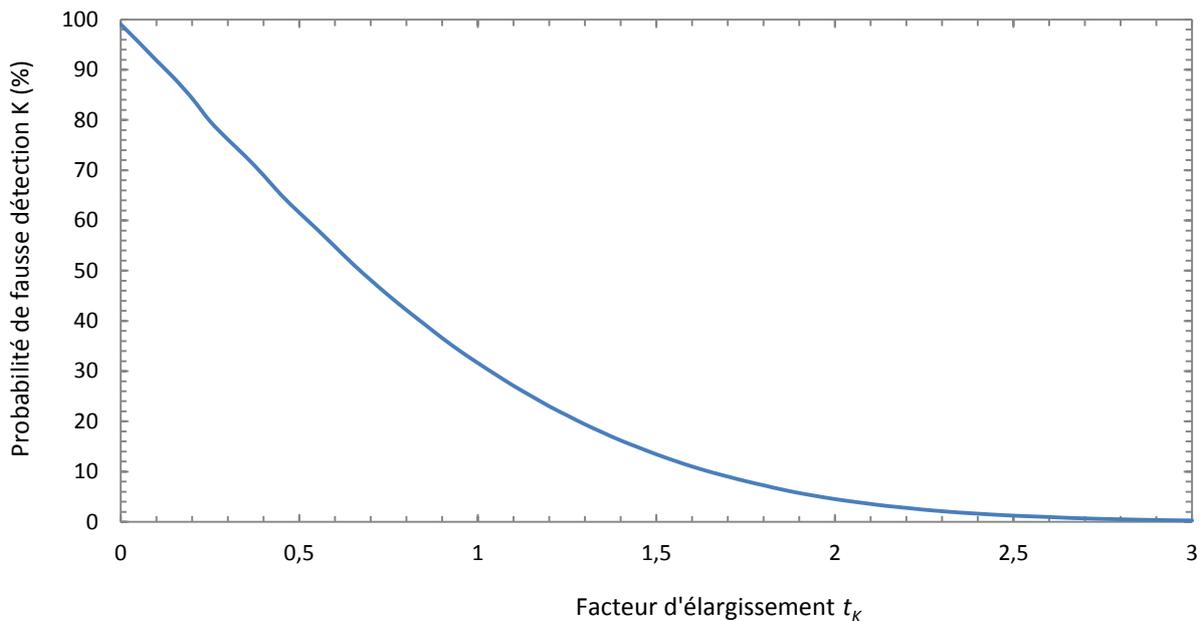


Figure V.13 : Distribution de la probabilité K en fonction du facteur d'élargissement t_K .

Dans le cas, et seulement dans le cas, où l'hypothèse H_1 est acceptée, un taux de comptage $\widehat{\lambda}_n$, attribué à la capture de neutrons thermiques dans la couverture de gadolinium, est estimé sur la durée d'intégration T par :

$$\widehat{\lambda}_n = (\widehat{\lambda}_1 - \widehat{\lambda}_2) \pm \sqrt{\sigma^2(\widehat{\lambda}_1) + \sigma^2(\widehat{\lambda}_2)} \quad (V. 7)$$

PARTIE VIII : Résultats expérimentaux obtenus avec le scintillateur plastique dopé au bismuth et les couvertures de gadolinium et de terbium

Afin d'évaluer la réjection du rayonnement gamma et la sensibilité neutronique du schéma de détection présenté dans ce chapitre, trois mesures de comptage sont réalisées :

- sur la voie 1 : scintillateur plastique dopé au bismuth et couvert d'une plaque de gadolinium ;
- sur la voie 2 : même scintillateur plastique dopé au bismuth et couvert d'une plaque de terbium.

Les plaques de gadolinium et de terbium naturels sont des produits commerciaux acquis auprès de Strem Chemicals, de pureté égale à 99,9 %, de surface $2,5 \times 2,5$ cm, d'épaisseur égale à 250 μm . Cette épaisseur a été confirmée à ± 10 μm au moyen d'un micromètre Palmer. La haute tension pour les mesures de comptage est fixée à 2000 V. Les mesures sont conduites en présence d'une brique de plomb d'une épaisseur de 5 cm. Cette brique est représentative de l'atténuateur de rayonnement, également sensible aux rayonnements incidents, qui serait mis en œuvre dans une réalisation à deux voies du schéma de détection. Les mesures de comptage sont décrites comme suit :

- mesure en présence d'une source de *césium 137*, d'activité $A_{137\text{Cs}} = 34$ MBq, placée à une distance $d = 16$ cm de la surface du scintillateur, orthogonalement à l'axe de symétrie de ce dernier. La durée d'acquisition $T = 1800$ s ;
- mesure en présence d'une source de *californium 252*, d'activité $A_{252\text{Cf}} = 784$ kBq, placée à une distance $d = 16$ cm de la surface du scintillateur, orthogonalement à l'axe de symétrie de ce dernier, avec une épaisseur $e = 5$ cm de matériau modérateur des neutrons (Polyéthylène Haute Densité, abrégé PEHD) au contact de la source. La durée d'acquisition $T = 10800$ s ;
- mesure en présence d'une source de *californium 252*, d'activité $A_{252\text{Cf}} = 784$ kBq, placée à une distance $d = 16$ cm de la surface du scintillateur, orthogonalement à l'axe de symétrie de ce dernier, avec une épaisseur $e = 5$ cm de matériau modérateur et absorbeur des neutrons, placée au contact de la source. L'absorbeur neutronique est une plaque de bois boré Permali HB 780. La durée d'acquisition $T = 10800$ s.

Le montage expérimental pour l'acquisition des spectres est illustré par la Figure V.14 dans le cas de la troisième mesure de comptage appliquée au scintillateur couvert de gadolinium (voie 1 pour la détection neutronique). Les notations de la Partie VI sont conservées. En vue de l'opération de détection et de comptage neutroniques, et sur la base des simulations présentées dans la Partie IV, le choix des fenêtres d'intérêt sur les spectres acquis est le suivant :

- entre le pic d'absorption totale $E_{PP,^{241}\text{Am}} = 59,5 \pm 2$ keV et le maximum du spectre ;
- entre le pic d'absorption totale $E_{PP,^{57}\text{Co}} = 122 \pm 5$ keV et le maximum du spectre ;
- entre le front Compton $E_{CE_2,^{152}\text{Eu}} = 198 \pm 10$ keV et le maximum du spectre.

Les taux de comptage bruts moyens sur chacune des voies $\widehat{\lambda}_1$ et $\widehat{\lambda}_2$, estimés sur ces trois plages d'énergie, ainsi que les résultats des tests de détection neutronique conduits sur ces taux, sont portés dans le Tableau V.2.

1. Etude du principe : réjection des rayonnements gamma et détection neutronique

Le test d'hypothèse pour la détection neutronique a pour résultat l'acceptation de \mathbf{H}_0 , soit une non-détection, en présence de la source de la source de césium 137 sur chacune des trois plages de comptage considérées. Ce résultat atteste la réjection, avec un niveau de confiance de 95 %, d'une radioactivité photonique d'énergie représentative des produits de fission de vie longue présents dans le cycle du combustible. Le débit de dose gamma induit au niveau du capteur par la source de césium 137 a été mesuré, au moyen d'un radiamètre commercial de type Thermo Electron ESM FH 40G-L 10, égal à $17 \mu\text{Sv.h}^{-1}$. Il s'agit donc d'un débit de dose plus de cinq fois supérieur à celui sous lequel la robustesse de la compensation photonique de H3 par E2 avait été étudiée et validée dans le paragraphe X.2.2 du Chapitre III. Comme indiqué dans le paragraphe VII.2 du Chapitre IV, ce débit de dose correspond au critère de définition d'une zone « contrôlée » en radioprotection, légalement comprise entre $7,5$ et $25 \mu\text{Sv.h}^{-1}$.

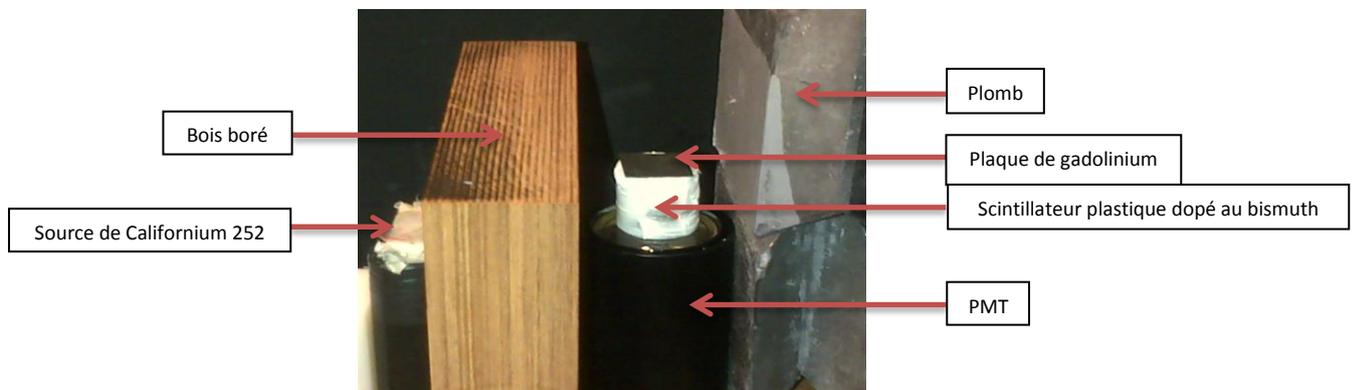


Figure V.14 : Montage expérimental pour l'acquisition de spectres (voie 1).

Notons également que, sur les deux premières plages de comptage, une surcompensation de la réponse gamma par la couverture de terbium, significative à deux écarts-types (soit un niveau de confiance d'environ 95 %), est observée. Cette surcompensation peut être expliquée

théoriquement par la discussion de la Partie V. Elle peut également être attribuable aux incertitudes portant sur la pureté et l'épaisseur des plaques utilisées dans cette étude expérimentale. Cette surcompensation équivaut, sur le plan de l'étude de concept, à une dégradation attendue de la réponse aux neutrons thermiques que la compensation des deux voies de mesure vise à isoler. En effet, l'émission gamma du césium 137 est, en espérance, représentative de celle du californium 252. L'ajustement fin du test de détection en fonction de l'écart-type du coefficient de compensation $\sigma(Q_{E_\gamma})$ a été laissé en perspective de ces travaux, la suite de la discussion s'appuiera sur ce premier résultat. Une surcompensation gamma sert, en outre, l'objectif d'une preuve de principe *a minima*, puisque le signal neutronique devra

Plage de comptage \ Source radioactive	Césium 137	Californium 252 + PEHD	Californium 252 + bois boré
[59,5 keV - max]	$\widehat{\lambda}_1 = 979,13 \pm 0,74$ cps $\widehat{\lambda}_2 = 980,62 \pm 0,74$ cps $\widehat{\lambda}_1 - \widehat{\lambda}_2 = -1,49$ cps $t_K \cdot \sqrt{\sigma^2(\widehat{\lambda}_1) + \sigma^2(\widehat{\lambda}_2)}$ = 1,45 cps H₀ acceptée	$\widehat{\lambda}_1 = 130,22 \pm 0,11$ cps $\widehat{\lambda}_2 = 129,83 \pm 0,11$ cps $\widehat{\lambda}_1 - \widehat{\lambda}_2 = 0,39$ cps $t_K \cdot \sqrt{\sigma^2(\widehat{\lambda}_1) + \sigma^2(\widehat{\lambda}_2)}$ = 0,30 cps H₁ acceptée $\widehat{\lambda}_n = 0,39 \pm 0,16$ cps	$\widehat{\lambda}_1 = 98,61 \pm 0,10$ cps $\widehat{\lambda}_2 = 99,04 \pm 0,10$ cps $\widehat{\lambda}_1 - \widehat{\lambda}_2 = -0,43$ cps $t_K \cdot \sqrt{\sigma^2(\widehat{\lambda}_1) + \sigma^2(\widehat{\lambda}_2)}$ = 0,27cps H₀ acceptée
[122 keV - max]	$\widehat{\lambda}_1 = 798,34 \pm 0,67$ cps $\widehat{\lambda}_2 = 800,39 \pm 0,67$ cps $\widehat{\lambda}_1 - \widehat{\lambda}_2 = -2,05$ cps $t_K \cdot \sqrt{\sigma^2(\widehat{\lambda}_1) + \sigma^2(\widehat{\lambda}_2)}$ = 1,85 cps H₀ acceptée	$\widehat{\lambda}_1 = 88,00 \pm 0,09$ cps $\widehat{\lambda}_2 = 87,71 \pm 0,09$ cps $\widehat{\lambda}_1 - \widehat{\lambda}_2 = 0,29$ cps $t_K \cdot \sqrt{\sigma^2(\widehat{\lambda}_1) + \sigma^2(\widehat{\lambda}_2)}$ = 0,25 cps H₁ acceptée $\widehat{\lambda}_n = 0,29 \pm 0,13$ cps	$\widehat{\lambda}_1 = 64,78 \pm 0,08$ cps $\widehat{\lambda}_2 = 65,05 \pm 0,08$ cps $\widehat{\lambda}_1 - \widehat{\lambda}_2 = -0,27$ cps $t_K \cdot \sqrt{\sigma^2(\widehat{\lambda}_1) + \sigma^2(\widehat{\lambda}_2)}$ = 0,21cps H₀ acceptée
[198 keV - max]	$\widehat{\lambda}_1 = 468,31 \pm 0,51$ cps $\widehat{\lambda}_2 = 468,25 \pm 0,51$ cps $\widehat{\lambda}_1 - \widehat{\lambda}_2 = 0,06$ cps $t_K \cdot \sqrt{\sigma^2(\widehat{\lambda}_1) + \sigma^2(\widehat{\lambda}_2)}$ = 1,41 cps H₀ acceptée	$\widehat{\lambda}_1 = 36,46 \pm 0,05$ cps $\widehat{\lambda}_2 = 36,48 \pm 0,06$ cps $\widehat{\lambda}_1 - \widehat{\lambda}_2 = -0,02$ cps $t_K \cdot \sqrt{\sigma^2(\widehat{\lambda}_1) + \sigma^2(\widehat{\lambda}_2)}$ = 0,16 cps H₀ acceptée	$\widehat{\lambda}_1 = 26,06 \pm 0,05$ cps $\widehat{\lambda}_2 = 26,06 \pm 0,05$ cps $\widehat{\lambda}_1 - \widehat{\lambda}_2 = 0,00$ cps $t_K \cdot \sqrt{\sigma^2(\widehat{\lambda}_1) + \sigma^2(\widehat{\lambda}_2)}$ = 0,14 cps H₀ acceptée

Tableau V.2 : Taux de comptage estimés sur les plages de comptage d'intérêt et résultats des tests de détection neutronique (**H₀** : absence de neutrons ; **H₁** : présence de neutrons, $t_K = 1,96$).

Il a été montré dans le paragraphe X.1 du Chapitre III que la compensation du fond photonique de la source de californium 252 est équivalente à celle d'une émission d'énergie espérée à $\overline{E_\gamma} = 875$ keV pour un débit de dose égal, au niveau du capteur, à $1,2 \mu\text{Sv}\cdot\text{h}^{-1}$. La robustesse de la compensation de ce fond sera conséquent être assurée, avec les paramètres fixés pour le test de détection, si celle de la source de césium 137 est garantie. Le Tableau V.2 montre qu'en présence de la source de californium 252 modérée par le PEHD, le test de détection admet pour résultat l'acceptation de **H₁**, soit une détection neutronique, pour des comptages intégrés sur les plages [59,5 keV ; max] et [122 keV ; max]. L'hypothèse nulle est, en revanche, acceptée pour un seuil bas de comptage fixé à 198 keV. Ce point confirme que la borne de 200 keV définie par simulation dans la Partie IV représente bien un maximum pour l'exploitabilité de la signature des captures Gd(n, γ).

Afin de confirmer que l'acceptation de l'hypothèse **H₁** sur les plages [59,5 keV ; max] et [122 keV ; max], discutée ci-dessus, est attribuable aux neutrons de fission émis par la source de californium 252 et thermalisés dans le bloc de PEHD, ce dernier est remplacé par une

plaque d'épaisseur identique de bois boré, atténuant le rayonnement neutronique total de 50 % pour un spectre de fission, d'après la fiche technique associée au Permal HB 780.

La substitution a pour première conséquence une réduction significative sur chacune des trois plages de comptage considérées. Cet effet est observé lorsque nous comparons les taux de comptages indépendants $\widehat{\lambda}_1$ et $\widehat{\lambda}_2$, portés dans la troisième colonne du Tableau V.2, avec ceux affichés dans la deuxième colonne. Ainsi, par exemple, le rapport des taux de comptage moyens calculés sur la plage [198 keV ; max], sur chacune des voies $i = 1,2$ notés respectivement $\widehat{\lambda}_{i,PEHD}$ pour les mesures avec PEHD et $\widehat{\lambda}_{i,BB}$ pour les mesures avec bois boré, valent :

$$\frac{\widehat{\lambda}_{1,PEHD}}{\widehat{\lambda}_{1,BB}} = \frac{36,46 \pm 0,05}{26,06 \pm 0,05} = 1,40 \pm 0,01 \quad (\text{V. 8})$$

$$\frac{\widehat{\lambda}_{2,PEHD}}{\widehat{\lambda}_{2,BB}} = \frac{36,48 \pm 0,05}{26,06 \pm 0,05} = 1,40 \pm 0,01 \quad (\text{V. 9})$$

Cette réduction s'explique simplement par l'écart entre la densité des deux épaisseurs, respectivement $\rho_{PEHD} = 0,95 \text{ g. cm}^{-3}$ pour le PEHD et $\rho_{BB} = 1,35 \text{ g. cm}^{-3}$ pour le bois boré. Or l'atténuation par effet Compton, qui domine les interactions entre une émission photonique d'espérance $\overline{E}_\gamma = 875 \text{ keV}$ et le milieu de propagation, est, au premier ordre, proportionnelle à la densité du milieu. Le quotient des densités $\frac{\rho_{BB}}{\rho_{PEHD}} = 1,42$ conduit donc à une réduction attendue de l'ordre de 42 % du signal induit par le fond photonique après substitution du PEHD par le bois boré. Cet ordre de grandeur est compatible avec les rapports calculés ci-dessus, entre les taux de comptage moyens des voies 1 et 2 sur la plage [198 keV ; max], où aucun signal neutronique n'est détecté.

La substitution du PEHD par le bois boré a pour résultat le rejet de l'hypothèse de détection \mathbf{H}_1 sur les plages [59,5 keV ; max] et [122 keV ; max]. Elle supprime donc la contribution significative au signal attribué aux neutrons thermiques, tel qu'il a été défini dans la Partie VII. Ce résultat confirme l'attribution au rayonnement neutronique, thermalisé dans le PEHD, de l'acceptation de l'hypothèse \mathbf{H}_1 au sein de la configuration précédente.

Détection du californium 252 et réjection du césium 137 forment la base d'une première validation de principe du schéma étudié dans ce chapitre. Notons également que l'opération de compensation, en présence du bois boré, fait apparaître une surcompensation (différence négative) sur les deux premières plages de comptage, significative de deux à trois fois l'écart-type, soit de 95 % à 99,7 %. Ce dernier résultat est en accord avec l'hypothèse d'une surcompensation photonique, formulée à partir des taux de comptage calculés pour une ambiance de césium 137.

2. Estimation de la sensibilité aux neutrons thermiques

La sensibilité \widehat{S}_n aux neutrons thermiques du schéma de détection mis en œuvre dans ce chapitre est estimée selon la même méthode que dans le paragraphe X.1 du Chapitre III. Le taux de comptage identifié aux captures de neutrons thermiques dans la plaque de gadolinium avec un taux de confiance théorique de 95 %, corroboré par la substitution du bois boré au PEHD, est égal à :

- $\widehat{\lambda}_n = 0,39 \pm 0,16$ cps pour des comptages intégrés sur [59,5 keV ; max] ;
- $\widehat{\lambda}_n = 0,29 \pm 0,13$ cps sur [122 keV ; max].

Le taux de fission spontanée $A_{252\text{Cf},f}$ de la source de californium 252 est égal à :

$$A_{252\text{Cf},f} = 2,4 \cdot 10^4 \text{ f.s}^{-1} \quad (\text{V.10})$$

dont nous déduisons le taux d'émission neutronique, exprimé en neutron par seconde :

$$A_{252\text{Cf},n} = 3,77 \cdot A_{252\text{Cf},f} = 9,0 \cdot 10^4 \text{ n.s}^{-1} \quad (\text{V.11})$$

La fluence neutronique intégrée entre 1 meV et 25 meV, incidente sur le scintillateur plastique dopé au bismuth à la sortie du bloc de PEHD, est estimée par simulation en utilisant le tally 2 de MCNPX2.6.0. L'estimée obtenue vaut :

$$\Psi_{n_{th}} = 3,7 \cdot 10^{-5} n_{th} \cdot \text{n}^{-1} \cdot \text{cm}^{-2} \quad (\text{V.12})$$

Cette estimée nous permet de calculer une estimée $\Phi_{n_{th}}$ du flux de neutrons thermiques incident sur le scintillateur sous la forme :

$$\Phi_{n_{th}} = \Psi_{n_{th}} \cdot A_{252\text{Cf},n} = 3,3 n_{th} \cdot \text{cm}^{-2} \cdot \text{s}^{-1} \quad (\text{V.13})$$

L'Equation (III.36) fournit enfin les estimées de la sensibilité aux neutrons thermiques, respectivement :

- $\widehat{\mathcal{S}}_n = 0,067 \pm 0,028$ cps/nv sur [59,5 keV ; max] ;
- $\widehat{\mathcal{S}}_n = 0,050 \pm 0,022$ cps/nv et [122 keV ; max].

Une fois encore, seuls les ordres de grandeur de ces estimées sont directement exploitables. Or les estimées calculées dans le paragraphe X.1 du Chapitre III sont supérieures d'un ordre de grandeur à un ordre de grandeur et demi en moyenne à celles obtenues ici. Ainsi, par exemple, la compensation du scintillateur H3 par E2 en comptage total aboutissait à une sensibilité estimée $\widehat{\mathcal{S}}_n = 3,3 \pm 0,1$ cps/nv, soit un rapport de sensibilités :

$$\eta = \frac{3,3}{0,067} \sim 50 \quad (\text{V.14})$$

par comparaison au comptage sur [59,5 keV ; max] avec le capteur décrit dans ce chapitre. Ce résultat est conforme aux prédictions obtenues par simulation et énoncées dans la Partie IV. Les sensibilités estimées dans ce paragraphe sont, par ailleurs, inférieures de deux ordres de grandeur à deux ordres de grandeur et demi à celles affichées par les compteurs proportionnels à hélium 3 de référence VacuTec 70061, de volume actif similaire ($24,8 \text{ cm}^3$). Les sensibilités de cette référence varient, en effet, entre 5,9 cps/nv et 18 cps/nv pour une pression du gaz comprise entre 2 et 10 bars [V.13].

CONCLUSION DU CHAPITRE ET PERSPECTIVES

Ce chapitre décrit un schéma de détection et de comptage neutronique par compensation, exploitant la même signature à basse énergie (moins de 200 keV) des captures radiatives $^{157}\text{Gd}(n, \gamma)$ et $^{155}\text{Gd}(n, \gamma)$ que celui présenté dans le Chapitre III. Le capteur sensible au rayonnement neutronique et le capteur dédié à la compensation de la radioactivité de fond sont constitués d'un scintillateur plastique, ici dopé à 0,8 %m au bismuth, et de deux couvertures métalliques, de gadolinium pour le premier et de terbium pour le second. La divergence entre les sensibilités à la radioactivité gamma d'énergie inférieure à 200 keV a rendu la compensation caduque dans le schéma du Chapitre III, en présence d'une source d'américium 241. Une étude par simulation a montré que cette divergence était corrigée par l'introduction du terbium, du numéro atomique et de densité aussi voisins que possible de ceux du gadolinium pour un élément naturel distinct.

Les mesures réalisées sur les capteurs ont confirmé, pour un test d'hypothèse réglé avec un niveau de confiance à 95 %, la réjection d'une ambiance de césium 137 de débit de dose compatible avec la définition d'une zone contrôlée. La différence des comptages enregistrés sur les deux voies de mesure a, en outre, permis la détection, avec le même niveau de confiance, d'une activité neutronique associée à une source de californium 252 modérée. La sensibilité aux neutrons thermiques, calculée au moyen des taux de comptage expérimentaux et de résultats de simulation, suivant la même méthodologie qu'au Chapitre III, souligne une dégradation d'un ordre de grandeur et demi de grandeur, de l'efficacité du schéma par couverture par rapport à celui fondé sur le dopage. Cette minoration est contrebalancée par l'extension du domaine de réjection photonique, aussi bien quant à la plage d'énergie de la source qu'au regard du débit de dose gamma compensé.

Contrairement au cas du dopage homogène, le volume sensible au rayonnement neutronique dans la configuration de ce chapitre se limite à la couverture externe du capteur. L'épaisseur de cette couverture, à surface donnée, admet un optimum pour le dépôt de la signature d'intérêt. La montée en volume du scintillateur plastique, justifiée pour le dopage, n'est donc pas nécessairement pertinente ici. La fiabilité de la détection neutronique, en revanche, gagnerait en robustesse par l'identification des raies caractéristiques des désexcitations $^{157}\text{Gd}(n, \gamma)$ et $^{155}\text{Gd}(n, \gamma)$ à moins de 200 keV. Une telle identification requiert un capteur de rayonnements aux propriétés spectroscopiques supérieures, classiquement un détecteur à base de semi-conducteur. En vue de tendre vers de telles propriétés, tout en maximisant la réjection du fond photonique, les travaux futurs se concentreront sur la montée en chargement massique de bismuth dans des scintillateurs plastiques fins. Une étude précédente a permis d'établir la possibilité d'un ordre de grandeur de gain (17 %m de bismuth) dans ce chargement pour une préparation à base d'une matrice de polystyrène et d'un complexe de triphénylbismuth.

Le schéma illustré dans ce chapitre, inséré, dans une sphère de Bonner en polyéthylène dédiée à la modération du rayonnement neutronique incident, formerait un détecteur neutronique portable. Le passage à un détecteur *portatif*, qui trouve son application en dosimétrie personnelle, nécessite la réduction des scintillateurs et de l'isolation des deux voies. Il impose, de surcroît, une miniaturisation du système de conversion des photons de scintillation en un signal électronique. Une telle miniaturisation est assurée, par exemple, par des modules photomultiplicateurs à silicium (abrégiés SiPM) de surface active de l'ordre de la dizaine de mm^2 , munis d'un boîtier hermétique et refroidis thermo-électriquement [V.14]. Les scintillateurs plastiques présentent un numéro atomique effectif et une densité faibles, voisins

de ceux du corps humain. Le critère de mérite d'*équivalence tissulaire* pour les rayonnements gamma et les neutrons rapides, avancé en faveur des dosimètres à base de diamant [V.15], peut donc leur être appliqué. Ajoutons que dans le cas du diamant, ce critère est justifié au regard de la composition carbonée, proche des atomes légers d'oxygène et d'hydrogène du corps, mais contestable du point de vue de la densité très supérieure à l'unité, proche de $3,5 \text{ g.cm}^{-3}$. Le dimensionnement et la réalisation de cellules élémentaires à base de scintillateurs plastiques d'épaisseur millimétrique, au dopage en métaux lourds élevé, et de couvertures de gadolinium et de terbium, pouvant être multipliées de façon à accroître l'efficacité de détection, sont laissés en perspective dans le cadre de cette thèse.

Au titre des critères de mérite portant sur la compacité des détecteurs et la tenue du capteur physique à des débits de dose élevés, les systèmes à base de semi-conducteurs demeurent toutefois la solution privilégiée en vue du déploiement de dosimètres portatifs. C'est pourquoi la section suivante de ces travaux de thèse décrit une déclinaison du schéma de détection et de comptage neutroniques à base de couvertures de gadolinium et de terbium appliquées à des capteurs semi-conducteurs. Ce mode de réalisation a fait l'objet de la même demande de dépôt de brevet que celui détaillé dans ce chapitre [V.9]. Cette mise en œuvre alternative, donne potentiellement accès, grâce aux propriétés spectroscopiques supérieures de capteurs plus denses et de numéros atomiques plus élevés, à une identification de pics caractéristiques des captures radiatives $\text{Gd}(n, \gamma)$. Elle doit, en outre, nous permettre de confirmer l'attribution aux neutrons thermalisés des taux de comptage significatifs à 95 %, sur la base desquels le principe de la méthode a été préliminairement validé dans ce chapitre.

Références du Chapitre V :

[V.1] D. A. Abdushukurov, D. V. Bondarenko, K. K. Muminov, D. Y. Chistyakov, "Calculations of the efficiency of registration of thermal neutrons by complex converters constructed on the basis of gadolinium foils", *Instrumentation and Detectors*, PhTI-TAS-021P_1007, (2007).

[V.2] S. Masaoka, T. Nakamura, H. Yamagashi, K. Soyama, "Optimization of micro-strip gas chamber as a two-dimensional neutron detector using gadolinium converter", *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section A*, Vol. 513, pp. 538-549 (2003).

[V.3] S. A. Vitale, P. Gouker, "Solid-state neutron detector detector with gadolinium converter", Patent US 20130056641 A1 (2013).

[V.4] N. H. Lee, H. J. Lee, Y. G. Hwang, S. C. Oh, G. U. Youk, "Development of Gd-pMOSFET Dosimeter for Thermal Neutron Dosimetry", *IEEE Transaction on Nuclear Science*, Vol. 57, Iss. 6, pp. 3489-3492 (2010).

[V.5] A. Miyake, T. Nishioka, S. Singh, H. Morii, H. Mimura, T. Aoki, "A CdTe detector with a Gd converter for thermal neutron detection", *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section A*, Vol. 654, pp. 390-393 (2011).

[V.6] P. Kandlakunta, L. Cao, "Gamma-ray rejection, or detection, with gadolinium as a converter", *Radiation Protection Dosimetry*, Vol. 151, N° 3, pp. 586-590 (2012).

[V.7] T. Aoyama, Y. Oka, K. Honda, C. Mori, "A neutron detector using silicon PIN photodiodes for personal neutron dosimetry", *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section A*, Vol. 314, pp. 590-594 (1992).

- [V.8] G. H. V. Bertrand, F. Sguerra, C. Dehé-Pittance, F. Carrel, R. Coulon, S. Normand, M. Hamel, “Influence of bismuth loading in polystyrene-based plastic scintillators for low energy gamma spectroscopy”, *Journal of Materials Chemistry C*, Vol. 2, Iss. 35, pp. 7304-7312 (2014).
- [V.9] R. Coulon, J. Dumazert, V. Kondrasovs, “Système de détection de neutrons et procédé de détection associé”, Commissariat à l’Energie Atomique et aux Energies Alternatives, demande déposée le 20/10/2015 sous le n° FR1560002.
- [V.10] A. D. Carlson, V. G. Pronyaev, D. L. Smith, N. M. Larson, Z. Chen, G. M. Hale, F.-J. Hamsch, E. V. Gai, S.-Y. Oh, S. A. Badikov, T. Kawano, H. M. Hofmann, H. Vonach, S. Tagesen, “International Evaluation of Neutron Cross Section Standards”, *Nuclear Data Sheets*, Vol. 110, Iss. 12, pp. 3215-3324 (2009).
- [V.11] W. T. Elam, B. D. Ravel, J. R. Sieber, “A new atomic database for X-ray spectroscopic calculations”, *Radiation Physics and Chemistry*, Vol. 63, Iss. 2, pp. 121-128 (2002).
- [V.12] D. A. Abdushukurov, *Gadolinium Foils as Converters of Thermal Neutrons*, Nova Science Publishers, Inc., New York, p. 15 (2010).
- [V.13] www.vacutec-gmbh.de/fileadmin/user/Prospekt_He-3_Neutron_Detectors.pdf
- [V.14] P. W. Cattaneo, M. De Gerone, F. Gatti, M. Nishimura, W. Ootani, M. Rossella, Y. Uchiyama, “Development of high precision timing counter based on plastic scintillator with SiPM readout”, *IEEE Transactions on Nuclear Science*, Vol. 61, pp. 2657-2666 (2014).
- [V.15] B. Górká, B. Nilsson, R. Svensson, A. Brahme, P. Ascarelli, D. M. Trucchi, G. Comte, R. Kalish, “Design and characterization of a tissue-equivalent CVD-diamond detector for clinical dosimetry in high-energy photon beams”, *Physica Medica*, Vol. 24, Iss. 3, pp. 159-168 (2008).

SECTION B :

LE GADOLINIUM POUR LA DETECTION ET LE COMPTAGE NEUTRONIQUES A BASE DE SEMI-CONDUCTEURS

Cette section présente une étude de mise en œuvre par compensation du gadolinium, en couverture sur des détecteurs à base de semi-conducteurs denses de CdZnTe. Cette approche est analogue à celle décrite dans le Chapitre V en scintillation plastique. A l'image du Chapitre II introduisant la Section A, le Chapitre VI rappelle les notions-clés de la détection à base de semi-conducteurs.

CHAPITRE VI : INTRODUCTION A LA DETECTION DE RAYONNEMENTS A BASE DE SEMI-CONDUCTEURS, PRINCIPE ET NOTIONS-CLES

PARTIE I : Introduction à la détection à base de semi-conducteurs

1. Principe de la détection à base de semi-conducteurs

Un *détecteur à semi-conducteur* est un détecteur de rayonnements dont le capteur physique est un matériau dit semi-conducteur. Un semi-conducteur se comporte idéalement comme un isolant en l'absence de rayonnement et comme un conducteur en présence de charges libres. Ces charges sont induites par un rayonnement ionisant, selon les mécanismes décrits dans le paragraphe 5 du Chapitre I [VI.1]. Le champ électrique autorise la migration des porteurs de charge libres vers les électrodes au niveau desquelles ils sont collectés, avant qu'un circuit électrique adapté ne transforme le signal en un courant mesurable. Les mécanismes physiques impliqués dans la génération d'un signal exploitable pour le comptage et la spectrométrie, ainsi que les caractéristiques essentielles des détecteurs à semi-conducteur, sont décrits dans les paragraphes suivants.

2. Mécanismes de génération du signal dans un matériau semi-conducteur

2.1. Structure en bandes des solides

En physique des solides, l'ensemble des valeurs d'énergie que peut posséder un électron est décrit dans le cadre d'un modèle dit de *structure en bandes*. Dans un atome libre et isolé, l'énergie d'un électron prend ses valeurs à l'intérieur d'un ensemble discret et défini. L'énergie d'un électron libre, *a contrario*, prend ses valeurs dans l'intervalle continu : $]0 ; +\infty[$. Dans un solide, l'énergie d'un électron prend ses valeurs à l'intérieur d'intervalles continus, dits *bandes autorisées*, séparés par des intervalles de valeurs inaccessibles, dénommés *bandes interdites*. La répartition des électrons au sein des intervalles d'énergie autorisés est gouvernée par une statistique dite *statistique de Fermi-Dirac* et dépend notamment de la température du solide. En faisant tendre cette température vers le zéro absolu ($T = 0$ K), on distingue deux bandes autorisées d'importance, dites *bande de valence* et *bande de conduction* [VI.2]. La bande de valence est définie comme la dernière bande autorisée entièrement occupée, c'est-à-dire l'intervalle d'énergie dans lequel nul électron supplémentaire ne peut prendre de valeur. La bande de conduction est la bande autorisée d'énergie immédiatement supérieure, vide ou partiellement occupée, dans laquelle un électron supplémentaire peut donc prendre sa valeur. Les électrons de la bande de valence sont localisés et assurent la cohésion entre atomes voisins du solide. Les électrons de la bande de conduction sont délocalisés et peuvent par conséquent, en présence d'un champ électrique appliqué au solide, prendre part à la formation d'un courant total.

L'intervalle d'énergie qui sépare les bandes de valence et de conduction, et forme par définition une bande interdite, est appelé *band-gap* du solide et noté E_g . Les propriétés électroniques du solide sont gouvernées par la valeur de E_g et la population électronique des bandes de valence et de conduction. En fonction de ces caractéristiques, les solides sont répartis en trois catégories : *isolants*, *conducteurs* et *semi-conducteurs*. Dans les matériaux isolants, la bande de conduction est vide lorsque $T \rightarrow 0$ et E_g , de l'ordre de 10 eV, trop élevée pour que l'excitation thermique suffise à la promotion d'un nombre non négligeable d'électrons de valence à la bande de conduction. Dans les matériaux conducteurs, $E_g \sim 0$ et les bandes de valence et de conduction sont superposées. Ainsi, l'excitation thermique assure le peuplement de la bande de conduction, si bien que l'application d'un champ électrique non nul au solide suffit à induire un courant quelle que soit la valeur de $T \neq 0$. Dans les matériaux semi-conducteurs, enfin, la bande de conduction est vide lorsque $T \rightarrow 0$, mais la valeur de E_g est plus faible que dans un matériau isolant, de l'ordre de 1 eV. Il vient que l'excitation thermique, lorsque T s'élève, suffit à promouvoir un nombre non négligeable d'électrons de valence à la bande de conduction. Un matériau semi-conducteur, isolant lorsque $T \rightarrow 0$, voit donc sa conductivité électronique augmenter avec la température. La probabilité P de promotion d'un électron de la bande de valence à la bande de conduction dans un matériau semi-conducteur est décrite par :

$$P(T) \propto T^{\frac{3}{2}} e^{-\frac{E_g}{2k_B T}} \quad (\text{VI.1})$$

où $k_B = 1,3806488 \cdot 10^{-23} \text{ J} \cdot \text{K}^{-1}$ est la constante de Boltzmann. Le refroidissement d'un matériau semi-conducteur entraîne, d'après l'Equation (VI.1), la diminution du *courant de fuite* attribuable à la seule excitation thermique. Cette diminution facilite la quantification du courant généré suite à une interaction-rayonnement matière à l'intérieur du capteur. Les structures en bandes typiques d'un solide isolant (a), conducteur (b) et semi-conducteur (c) sont schématisées sur la Figure VI.1.

2.2. Electrons et trous

Quand un électron est promu d'une bande entièrement occupée à la bande de conduction, une vacance électronique apparaît dans la bande d'origine, équivalente à un porteur de charge positive et appelée *trou* (*hole* en anglais, noté h). En présence d'un champ électrique, induit entre deux électrodes, les électrons de conduction migrent en direction de l'électrode positive ou cathode. La vacance est, quant à elle, susceptible d'être comblée par un autre électron de valence, lequel laisse apparaître une nouvelle vacance. En présence d'un champ électrique, les électrons migrant vers la cathode, le trou, effectivement chargé positivement, apparaît comme se déplaçant vers l'anode. Dans cette représentation schématique, les électrons et les trous au sein d'un matériau semi-conducteur sont les uns et les autres des porteurs de charge, qui participent, en présence d'un champ électrique et à température non nulle, à la formation du courant total.

2.3. Création des porteurs de charge par un rayonnement ionisant

Soit une particule ionisante, qu'elle soit primaire (irradiation alpha, protonique, électron de désintégration bêta ou de conversion interne...) ou secondaire (proton de recul dans la diffusion neutronique, électron de recul dans l'atténuation photonique...), se propageant dans un solide semi-conducteur. Si l'énergie déposée par la particule dans le matériau semi-

conducteur est notée E_d , le nombre espéré de paires électrons-trous générées le long de la trajectoire de la particule, désigné par $\overline{n_{eh}}$, est exprimé selon :

$$\overline{n_{eh}} = \frac{E_d}{W} \quad (\text{VI.3})$$

où W est l'énergie moyenne nécessaire à la création d'une paire électron-trou dans le matériau. Ainsi qu'il sera énoncé dans la Partie II, l'énergie moyenne W est un critère de mérite essentiel d'un capteur à base de semi-conducteur pour la détection de rayonnements, lequel capteur sera d'autant plus résolu que la valeur de W sera faible.

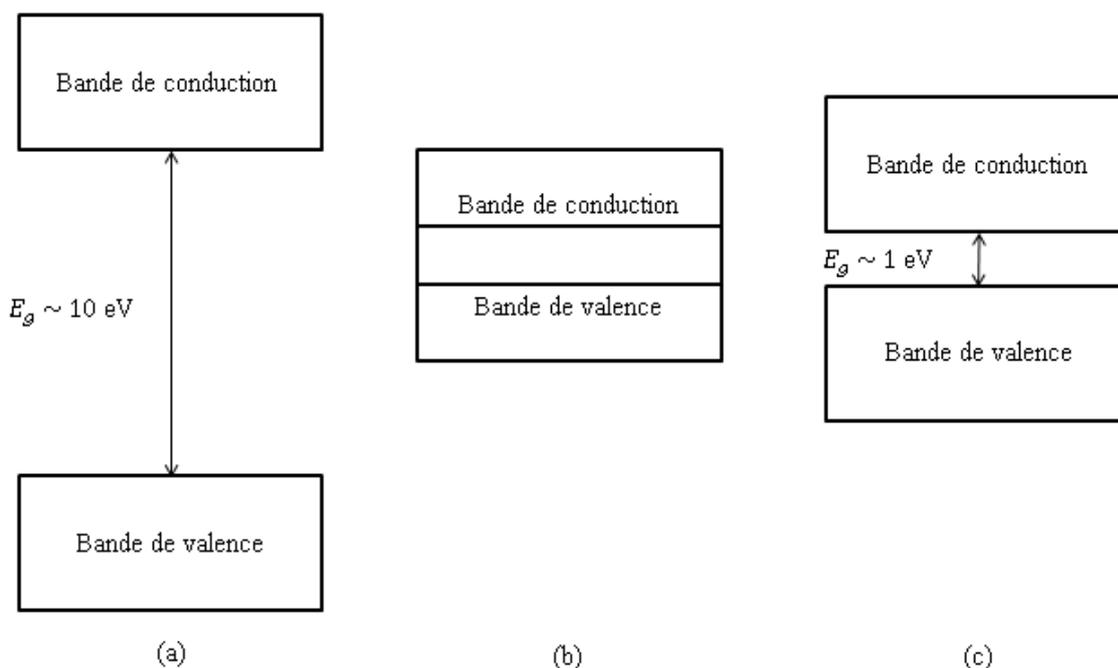


Figure VI.1 : Structure en bandes d'un matériau isolant (a), conducteur (b) et semi-conducteur (c).

PARTIE II : Mise en œuvre des matériaux semi-conducteurs pour la détection de rayonnements

1. Les critères de mérite pour la détection à base de matériaux semi-conducteurs

L'intérêt d'un matériau semi-conducteur pour la détection de rayonnements doit être évalué, de même qu'il a été fait dans la Partie II, paragraphe 1 du Chapitre II pour les scintillateurs plastiques, au regard d'une liste de critères de mérite physiques et économique-industriels [VI.3]. Les principaux critères de mérite, ainsi que les facteurs de mérite quantifiables associés, lorsque ces derniers sont définis, sont les suivants :

- le *pouvoir d'arrêt* des rayonnements directement ionisants (ions, électrons) et la *probabilité d'interaction* avec les rayonnements indirectement ionisants (photons) les plus élevés possible pour le rayonnement à détecter, et les plus faibles possible pour la radioactivité de fond à rejeter. Ce critère de mérite peut être quantifié par les différents paramètres physiques gouvernant les interactions : numéro atomique effectif du matériau semi-conducteur (pouvoir d'arrêt, atténuation des rayonnements photoniques

par effet photoélectrique), densité (atténuation par effet Compton des rayonnements photoniques), taux massique d'isotopes absorbeurs neutroniques ;

- la *plage d'énergie* du rayonnement incident, pour une nature donnée de rayonnement, dans laquelle l'utilisation du capteur physique est optimale. Elle est une fonction des critères précédents ainsi que de la montée en volume autorisée sans coût prohibitif ;
- la *production de paires électrons-trous* la plus élevée possible par unité d'énergie déposée dans le capteur. Elle est quantifiée par l'énergie moyenne de création d'une paire électron-trou W introduite dans la Partie I, paragraphe 2.3, qui doit donc être la plus faible possible ;
- la *résolution en énergie* des spectres obtenus avec le capteur physique, directement fonction de l'énergie moyenne W ;
- la *mobilité des porteurs de charge* dans le matériau semi-conducteur, subdivisée en mobilité des électrons et mobilité des trous, que l'on cherche toutes deux à maximiser ;
- la *plage de température* sur laquelle le capteur physique peut être utilisé, notamment au regard du courant de fuite ;
- la *dégradation* du matériau semi-conducteur par les rayonnements ;
- la *stabilité en température* et la *résistance mécanique* du capteur physique ;
- la *disponibilité* du solide semi-conducteur en monocristaux de pureté la plus grande possible ;
- la *montée en volume* autorisée par le matériau semi-conducteur ;
- corollaire des deux critères de mérite précédents, le *coût* de fabrication et / ou d'acquisition du matériau semi-conducteur.

2. Résolution en énergie idéale des capteurs à base de semi-conducteurs

Dans un détecteur réel à base de semi-conducteur, la résolution en énergie des pics d'absorption totale est proportionnelle à une somme quadratique d'écart-types. Ces écart-types quantifient principalement les incertitudes attachées : au nombre de porteurs de charge générés dans le capteur, à la collecte des porteurs au niveau des électrodes, au bruit thermique et au bruit électronique introduit par l'unité d'acquisition et de traitement des impulsions [VI.4]. La résolution minimale en énergie, notée ε et associée au cas d'une chaîne idéale, peut être réduite à la première de ces incertitudes, dite bruit de quantification. La résolution ε , au sens de la largeur du pic à mi-hauteur (*Full Width at Half Maximum* en anglais, abrégée *FWHM*), est calculée en postulant le pic gaussien, en fonction de l'écart-type $\sigma(E_d)$ attaché à l'énergie déposée dans le matériau semi-conducteur E_d :

$$\varepsilon = FWHM(E_d) = 2,35 \sigma(E_d) \quad (\text{VI. 3})$$

En reprenant les notations de l'Equation (VI.2), en supposant poissonien le processus sous-jacent à la génération des paires électrons-trous, l'écart-type du nombre de paires générées $\sigma(n_{eh}) = \sqrt{\overline{n_{eh}}}$. Par l'égalité $E_d = W \cdot \overline{n_{eh}}$, la résolution théorique intrinsèque est obtenue :

$$\varepsilon = 2,35 W \cdot \sigma(n_{eh}) = 2,35 W \cdot \sqrt{\overline{n_{eh}}} = 2,35 W \cdot \sqrt{\frac{E_d}{W}}$$

$$\varepsilon = 2,35 \sqrt{E_d W} \quad (\text{VI. 4})$$

Une réduction systématique de cette variance a été observée dans les détecteurs à semi-conducteurs, de même que dans les détecteurs gazeux. Cette observation a conduit à une correction de l'Equation (VI.4) par l'introduction d'une constante multiplicative comprise entre 0 et 1, dite *facteur de Fano* et notée F , selon :

$$\varepsilon = 2,35 \sqrt{F E_d W} \quad (\text{VI. 5})$$

Le facteur de Fano quantifie, à l'échelle macroscopique, une corrélation non nulle des événements de création de paires électrons-trous dans le solide. Cette corrélation s'explique par la modification des distributions électroniques locales dans le réseau cristallin suite à la promotion d'un électron à la bande de conduction [VI.5]. Le facteur F , égal à 1 dans les scintillateurs plastiques [VI.6], est une propriété du solide semi-conducteur, dont la résolution idéale est par conséquent d'autant meilleure que les constantes W et F sont faibles. A titre d'exemples, les facteurs de Fano associés au silicium [VI.7], au germanium [VI.7] et au tellure de cadmium et zinc [VI.8] admettent respectivement pour valeurs $F = 0,115$, $F = 0,13$ et $F = 0,089$.

3. Mobilité des porteurs de charge et piégeage

Le champ électrique vectoriel appliqué au matériau semi-conducteur est noté V_{ext} et exprimé en volt par centimètre ($V \cdot \text{cm}^{-1}$). En présence de ce champ, les électrons et les trous migrent respectivement en direction de la cathode et de l'anode, entre lesquelles est induite la différence de potentiel électrique. Soient v_e et v_h les vitesses moyennes des électrons et des trous, respectivement, au sein du solide cristallin. Elles sont exprimées au premier ordre en fonction de la norme du champ V_{ext} selon [VI.9] :

$$v_e = \mu_e \cdot V_{ext} \quad (\text{VI. 6})$$

$$v_h = \mu_h \cdot V_{ext} \quad (\text{VI. 7})$$

où les coefficients de proportionnalité μ_e et μ_h , exprimés en centimètre carré par volt et par seconde ($\text{cm}^2 \cdot \text{V}^{-1} \cdot \text{s}^{-1}$), sont nommés respectivement *mobilité des électrons* et *mobilité des trous*. Ils quantifient la capacité des porteurs de charge à migrer dans le matériau sous l'effet du champ. La mobilité des porteurs de charge, ainsi qu'il a été énoncé dans le paragraphe 1, est un facteur de mérite essentiel du capteur à semi-conducteur. Cette mobilité assure la collecte des porteurs dans un temps suffisamment court. Elle augmente avec la température T et croît jusqu'à atteindre une saturation en fonction de V_{ext} .

Dans un cristal semi-conducteur non idéal, la mobilité moyenne des électrons et des trous est dégradée par l'existence de probabilités non nulles d'occupation de niveaux d'énergie situés à l'intérieur des bandes interdites, au niveau desquels les porteurs libres peuvent être capturés. L'influence macroscopique de l'occupation de ces niveaux d'énergie est factorisée dans la notion de *centres de piégeage* des porteurs de charge. La formation de tels centres est principalement attribuée à [VI.10] :

- la présence d'impuretés, c'est-à-dire d'atomes allogènes au réseau cristallin, dans le solide semi-conducteur ;
- la présence d'atomes surnuméraires, dits interstitiels, ou de défauts atomiques du réseau cristallin lui-même ;
- l'apparition de tels atomes interstitiels ou vacances atomiques suite à l'irradiation du matériau semi-conducteur.

4. Principaux matériaux semi-conducteurs pour la détection de rayonnements

Sur la base des critères de mérite énoncés dans le paragraphe 1, les matériaux semi-conducteurs constituant de bons candidats pour la détection de rayonnements sont en nombre limité.

Le silicium, abrégé Si, est disponible à haute pureté à un coût modéré, en raison notamment de son utilisation massive dans l'industrie électronique [VI.11], et opérable à température ambiante (*Room Temperature* en anglais, abrégé RT). Il apparaît ainsi comme le candidat le plus évident au regard des critères économique-industriels. Les numéro atomique et densité peu élevés du silicium ($Z_{\text{Si}} = 14$, $\rho_{\text{Si}} = 2,33$) en font, toutefois, un matériau au faible pouvoir d'atténuation photonique, essentiellement employé en spectrométrie alpha, bêta et des rayonnements X de basse énergie [VI.12].

Le germanium, abrégé Ge, est considéré comme le détecteur de référence en matière de spectrométrie des rayonnements, en raison de sa résolution énergétique exceptionnelle. A titre d'exemple, une résolution de 0,5 keV à 122 keV est notée, pour un détecteur de surface d'entrée plane et de volume $50 \text{ mm}^2 \times 5 \text{ mm}$ [VI.13]. Sa masse volumique supérieure à celle du silicium ($\rho_{\text{Ge}} = 5,32 \text{ g.cm}^{-3}$) donne, en outre, accès à une plage énergétique plus vaste d'atténuation des rayonnements gamma. Néanmoins, le germanium, en raison de son band-gap extrêmement faible ($E_g = 0,67 \text{ eV}$) présente, d'après l'Equation (VI.1), un courant de fuite très élevé. Ce courant de fuite proscrit l'utilisation du capteur à température ambiante. Les détecteurs à base de germanium doivent donc être refroidis à 77 K au moyen d'azote liquide (N_2), ce qui limite fortement leur champ d'applications [VI.14].

Les limites attachées aux détecteurs à silicium et à germanium ont justifié la mise en œuvre de matériaux semi-conducteurs présentant :

- d'une part, des numéro atomique et densité plus élevés, donnant accès aux signatures de rayonnements gamma de l'ordre de grandeur de 1 MeV ;
- un band-gap supérieur, de façon à être utilisables à température ambiante.

Dans les détecteurs commerciaux à base de semi-conducteurs, les plus courants de ces capteurs alternatifs sont le tellurure de cadmium (abrégé CdTe) et le tellurure de cadmium et zinc (abrégé CdZnTe). Tous deux sont très résistifs et possèdent un pouvoir d'arrêt et une atténuation photonique élevés, justifiant notamment leur utilisation dans le domaine de l'imagerie des rayonnements gamma et X [VI.15]. Mentionnons également l'iodure de mercure (abrégé HgI₂), de numéro atomique très élevé ($Z_{\text{Hg}} = 80, Z_{\text{I}} = 53$), employé en spectrométrie des rayonnements X à basse énergie [VI.16]. Les détecteurs à CdTe et CdZnTe feront l'objet d'une discussion plus approfondie dans le Chapitre VII. Plus marginalement, des capteurs d'arséniure de gallium (abrégé GaAs) [VI.17] et de bromure de titane (abrégé TiBr) [VI.18] ont été décrits.

Le Tableau VI.1 résume, pour les principaux matériaux semi-conducteurs employés dans l'industrie nucléaire [VI.13], quelques facteurs de mérite associés à la détection de rayonnements :

- numéros atomiques des constituants (Z) ;
- densité (ρ) ;
- band-gap (E_g) ;
- énergie moyenne de création d'une paire électron-trou (W) ;
- mobilité des électrons (μ_e) et des trous (μ_h) ;
- température d'utilisation (T) ;
- résolution en énergie (ε) ;
- plage énergétique de mesure optimale pour les rayonnements photoniques (\mathcal{F}_γ).

Les facteurs de mérite sont énoncés pour la température d'utilisation du matériau.

Matériau	Z	ρ (g.cm ⁻³)	E_g (eV)	W (eV)	μ_e (cm ² .V ⁻¹ .s ⁻¹)	μ_h (cm ² .V ⁻¹ .s ⁻¹)	T (K)	ε (keV)	\mathcal{F}_γ (keV)
Si	14	2,33	1,106	3,62	1350	480	300	0,6 keV (à 30 keV) ^a	< 60 keV ^a
Ge	32	5,32	0,67	2,96	36000	42000	77 (N ₂)	0,15 keV (à 5,9 keV) 0,5 keV (à 122 keV) ^b	< 100 keV ^b
CdTe	48, 52	6,06	1,47	4,43	1000	80	300	10 keV (à 122 keV) ^c	< 350 keV ^c
CdZnTe	48, 30, 52	5,78	1,57	4,64	1000	50-80	300	8,5 keV (à 122 keV) 12 keV (à 662 keV) ^d	10-1400 keV ^d
HgI ₂	80, 53	6,30	2,13	4,22	100	4	253	1,5 keV (à 5,9 keV) ^e	< 60 keV ^e

^a 80 mm² × 0,5 mm

^b 50 mm² × 5 mm

^c 25 mm² × 2 mm

^d 15 mm × 15 mm × 10 mm

^e 100 mm² × 1 mm

Tableau VI.1 : Facteurs de mérite associés aux principaux matériaux semi-conducteurs pour la détection de rayonnements.

5. Courant induit et collecte des porteurs de charge dans un détecteur à base de semi-conducteur

Soit un matériau semi-conducteur quelconque, de géométrie arbitraire, et deux électrodes collectrices des porteurs de charge disposées également selon une configuration quelconque. On considère une paire électron-trou $e - h$ créée à l'instant $t = 0$ en un point donné du solide sur la trace d'une particule ionisante. Les deux porteurs de charge migrent à l'intérieur du matériau sous l'effet du champ électrique \mathbf{V}_{ext} , l'électron en direction de la cathode, le trou en direction de l'anode. Si l'on note $\mathbf{r}(x, y, z)$ le vecteur de position en tout point de l'espace, le potentiel électrique φ_W à l'intérieur du solide est défini comme la solution d'une équation de Poisson, en fonction de laquelle le champ électrique \mathbf{V}_W associé peut être calculé :

$$\nabla^2 \varphi_W(\mathbf{r}, t) = -\frac{\mathfrak{N}(\mathbf{r}, t)}{\varepsilon_0 \varepsilon_r} \quad (\text{VI. 8})$$

$$\mathbf{V}_W(\mathbf{r}, t) = -\nabla \varphi_W(\mathbf{r}, t) \quad (\text{VI. 9})$$

où \mathfrak{N} est la densité de porteurs de charge libres et le produit $\varepsilon_0 \varepsilon_r$ la permittivité diélectrique du matériau. Les conditions aux limites permettant de résoudre l'Equation (VI.8) incluent l'égalité en module de la différence de potentiel entre les électrodes au module du champ V_{ext} .

Le déplacement d'un porteur de charge induit sur les électrodes un courant, dit *courant d'électron* et noté $i_e(t)$ pour l'électron, et dit *courant de trou* et noté $i_h(t)$ pour le trou associé. En prenant, par exemple, l'anode comme électrode de référence, le théorème de Shockley-Ramo [VI.19, VI.20] permet d'explicitier $i_e(t)$ et $i_h(t)$ en fonction d'un champ dit *de pondération* (*weighting field* en anglais), noté \mathbf{V}_0 :

$$i_e(t) = q \mathbf{v}_e \cdot \mathbf{V}_0(t) \quad (\text{VI. 10})$$

$$i_h(t) = q \mathbf{v}_h \cdot \mathbf{V}_0(t) \quad (\text{VI. 11})$$

où q est la charge élémentaire, et \mathbf{v}_e et \mathbf{v}_h respectivement le vecteur vitesse de l'électron et le vecteur vitesse de trou. Le champ \mathbf{V}_0 et le potentiel φ_0 dont il dérive sont définis comme les solutions d'équations analogues aux Equations (VI.8) et (VI.9) :

$$\nabla^2 \varphi_0(t) = 0 \quad (\text{VI. 12})$$

$$\mathbf{V}_0(t) = -\nabla \varphi_0(t) \quad (\text{VI. 13})$$

avec, pour conditions initiales, un potentiel $\varphi_0 = 0$ à l'anode et un potentiel $\varphi_0 = 1$ à la cathode. En fonction de la géométrie du capteur et de la disposition des électrodes, \mathbf{V}_0 et φ_0 sont décrits sous une forme explicite ou évalués au moyen de méthodes numériques.

En l'absence de piégeage des porteurs de charge libres dans le matériau semi-conducteur, le temps de collecte de l'électron par la cathode, noté t_e , et le temps de collecte du trou par l'anode, noté t_h , sont distribués selon des distributions normales $\mathcal{N}(\bar{t}_e, \sigma^2(t_e))$ et $\mathcal{N}(\bar{t}_h, \sigma^2(t_h))$. Si l'on note d_{e-c} et d_{h-a} les distances euclidiennes respectives entre

l'électron à $t = 0$ et la cathode d'une part, et entre le trou à $t = 0$ et l'anode d'autre part, les espérances \bar{t}_e et \bar{t}_h correspondent au temps de vol des porteurs de charge :

$$\bar{t}_e = \frac{d_{e-c}}{v_e} \quad (\text{VI. 14})$$

$$\bar{t}_h = \frac{d_{h-a}}{v_h} \quad (\text{VI. 15})$$

L'écart-type apparaissant dans le temps de collecte résulte de la diffusion thermique des porteurs de charge le long des lignes de champ, et est explicité selon [VI.21] :

$$\sigma(t_e) = \frac{1}{v_e} \sqrt{\frac{2k_B T d_{e-c}}{qV_{ext}}} \quad (\text{VI. 16})$$

$$\sigma(t_h) = \frac{1}{v_h} \sqrt{\frac{2k_B T d_{h-a}}{qV_{ext}}} \quad (\text{VI. 17})$$

Les courants $i_e(t)$ et $i_h(t)$ sont alors décrits, en l'absence de piégeage, par :

$$\forall t \in [0 ; t_e], i_e(t) = qv_e V_0(t)$$

$$\forall t \in]t_e ; +\infty[, i_e(t) = 0 \quad (\text{VI. 18})$$

$$\forall t \in [0 ; t_h], i_h(t) = qv_h V_0(t)$$

$$\forall t \in]t_h ; +\infty[, i_h(t) = 0 \quad (\text{VI. 19})$$

Le courant total $i(t)$ induit par la création et la migration de la paire électron-trou est enfin donné par :

$$\forall t \in [0 ; +\infty[, i(t) = i_e(t) + i_h(t) \quad (\text{VI. 20})$$

6. Chaînes électroniques associées aux détecteurs à base de semi-conducteurs

Le schéma de principe d'une chaîne électronique associée à un détecteur à base de semi-conducteur est représenté par le diagramme de blocs fonctionnels de la Figure VI.2 ; il inclut un *préamplificateur*, une unité d'*amplification et de mise en forme du signal* et un *convertisseur analogique-numérique* [VI.22].

La tension de polarisation du détecteur à semi-conducteur, de l'ordre de grandeur du kV, est appliquée au capteur *via* le préamplificateur auquel ce dernier est couplé. Les porteurs de charge créés par l'interaction avec le rayonnement et migrant sous l'effet du champ de polarisation, sont collectés en entrée du préamplificateur. Le préamplificateur est alimenté par une basse tension continue et se décline, selon le type d'applications visé, en *préamplificateur de courant*, *préamplificateur de tension* ou *préamplificateur de charge*. Pour des applications spectrométriques, telles que celles décrites dans le Chapitre VII, seuls les préamplificateurs de

charge, délivrant une impulsion d'amplitude proportionnelle à la charge collectée, possèdent une bande passante suffisamment faible pour être mis en œuvre.

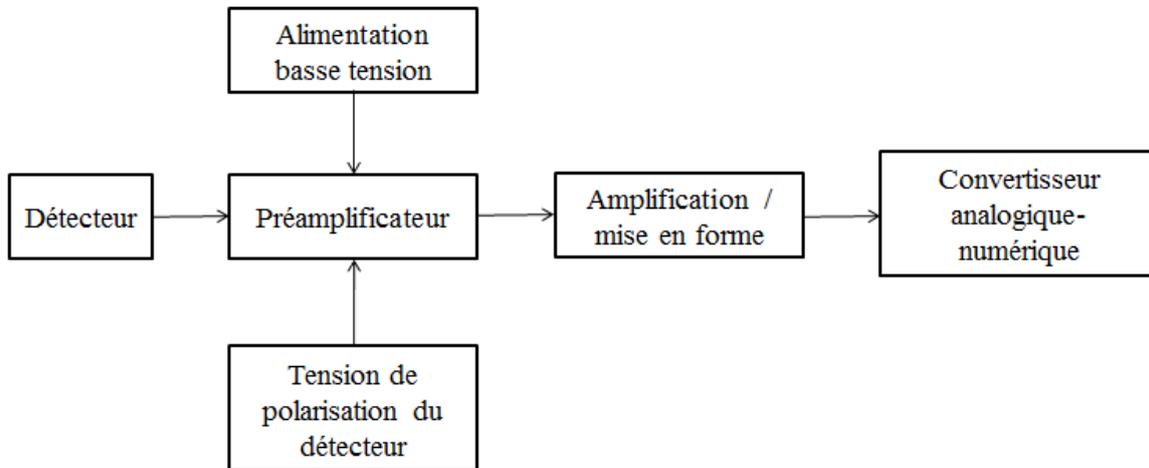


Figure VI.2 : Schéma-bloc fonctionnel d'une chaîne électronique associée à un détecteur à semi-conducteur.

Le traitement analogique des impulsions en sortie du préamplificateur est réalisé dans une unité d'amplification et de mise en forme du signal. Ce traitement permet d'identifier le maximum des impulsions et, par conséquent, de tracer un spectre en amplitude. Par intégration et différenciation du signal, les impulsions sont mises sous une forme approchant un cas idéal, le plus fréquemment quasi-triangulaire ou quasi-gaussienne. La constante de temps définissant le filtre est typiquement comprise entre 0,5 et 10 μs , et ajustée de façon à minimiser la largeur à mi-hauteur des pics spectraux. Cette mise en forme des impulsions peut être complétée par des opérations de correction de pôle (*pole-zero cancellation* en anglais, abrégé *PZC*), de restauration de la ligne de base (*baseline restoration* en anglais, abrégé *BLR*) et des algorithmes de rejet des empilements. Le convertisseur analogique-numérique recueille le train d'impulsions mises en forme. Le module identifie le maximum de chaque impulsion et classe, en fonction de la valeur de ce maximum, l'événement associé à l'impulsion dans un histogramme en amplitude.

Il convient ici de mentionner une alternative au schéma de traitement analogique des impulsions décrit ci-dessus, dans laquelle l'ensemble des opérations est réalisé sur des impulsions numérisées en amont de la chaîne [VI.23]. Ce traitement numérique du signal (*digital signal processing* en anglais, abrégé *DSP*) permet d'étendre la gamme des opérations mathématiques sur le signal à des fonctions qui ne peuvent être mises en œuvre par un montage analogique. En outre, il donne accès à une stabilité accrue en température, ainsi qu'en résolution à haut taux de comptage, par rapport à une chaîne classique (hors spécification analogique exceptionnelle, dédiée aux mesures à taux de comptage très élevés). La chaîne d'acquisition et de traitement des impulsions déployée dans le Chapitre VII suit toutefois le schéma analogique conventionnel détaillé dans ce paragraphe.

Références du Chapitre VI :

[VI.1] G. Knoll, *Radiation Detection and Measurement*, 3rd Ed., John Wiley & Sons, Inc., New York, p. 356 (1999).

- [VI.2] G. R. Gilmore, *Practical Gamma-ray spectrometry*, 2nd Edition, John Wiley & Sons Ltd, The Atrium, Southern Gate, Chichester, West Sussex, England, pp. 8-9 (2008).
- [VI.3] G. R. Gilmore, *Practical Gamma-ray spectrometry*, 2nd Edition, John Wiley & Sons Ltd, The Atrium, Southern Gate, Chichester, West Sussex, England, p. 41 (2008).
- [VI.4] G. R. Gilmore, *Practical Gamma-ray spectrometry*, 2nd Edition, John Wiley & Sons Ltd, The Atrium, Southern Gate, Chichester, West Sussex, England, p. 132 (2008).
- [VI.5] U. Fano, "Ionization Yield of Radiations. II. The Fluctuations of the Number of Ions", *Physical Review*, Vol. 72, Iss. 1, pp. 26-29 (1947).
- [VI.6] P. Moskal et al., "Test of a single module of the J-PET scanner based on plastic scintillators", *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research A*, Vol. 764, pp. 317-321 (2014).
- [VI.7] R. Alog, S. Bloom, C. Struck, "Scattering by ionization and phonon emission in semiconductors", *Physical Review B*, Vol. 22, Iss. 12-15, pp. 5565-5580 (1980).
- [VI.8] R. H. Redus, J. A. Pantazis, A. C. Huber, V. T. Jordanov, J. F. Butler, B. Apostovsky, "Fano Factor Determination For CZT", *MRS Proceedings*, Vol. 487 (1997).
- [VI.9] S. M. Sze, *Semiconductor Devices Physics and Technology*, 2nd Edition, John Wiley & Sons, Inc., pp. 48-51 (2002).
- [VI.10] G. R. Gilmore, *Practical Gamma-ray spectrometry*, 2nd Edition, John Wiley & Sons Ltd, The Atrium, Southern Gate, Chichester, West Sussex, England, p. 41 (2008).
- [VI.11] A. Rockett, *The Materials Science of Semiconductors*, Springer Science + Business Media, LLC, New York, pp. 1-15 (2008).
- [VI.12] P. Lechner, S. Eckauer, R. Hartmann, S. Krisch, D. Hauff, R. Richter, H. Soltau, L. Strüder, C. Fiorini, E. Gatti, A. Longino, M. Sampietro, "Silicon drift detectors for high resolution room temperature X-ray spectroscopy", *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research A*, Vol. 377, pp. 346-351 (1996).
- [VI.13] G. R. Gilmore, *Practical Gamma-ray spectrometry*, 2nd Edition, John Wiley & Sons Ltd, The Atrium, Southern Gate, Chichester, West Sussex, England, p. 42 (2008).
- [VI.14] T. E. Schlesinger, R. B. James, *Semiconductors for Room Temperature Nuclear detector Applications*, Vol. 43, Academic Press, San Diego, p. 24 (1995).
- [VI.15] Y. Eisen, A. Shor, I. Mardor, "CdTe and CdZnTe X-ray and gamma-ray detectors for imaging systems", *IEEE Transactions on Nuclear Science*, Vol. 51, Iss. 3, pp. 1191-1198 (2004).
- [VI.16] A. Owens, H. Andersson, M. Bavdav, L. van der Berg, A. Peacock, A. Puig, "The hard X-ray response of large area HgI₂ detector", *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research A*, Vol. 487, pp. 90-95 (2002).
- [VI.17] E. Bertolucci, M. G. Bisogni, U. Bottigli, A. Cola, M. E. Fantacci, V. Rosso, A. Stefanini, L. Vasanelli, "X-ray imaging using a pixel GaAs detector", *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research A*, Vol. 362, pp. 547-550 (1995).

[VI.18] M. Shorohov, M. Kouznetsov, I. Lisitskiy, V. Ivanov, V. Gostilo, A. Owens, “recent results in TiBr detector crystals performance”, *IEEE Nuclear Science Symposium Conference Record*, pp. 235-238 (2008).

[VI.19] W. Shockley, “Currents to Conductors Induced by a Moving Point Charge”, *Journal of Applied Physics*, Vol. 9, pp. 635-636 (1938).

[VI.20] S. Ramo, “Currents Induced by Electron Motion”, *Proceedings of the IRE*, Vol. 27, Iss. 9, pp. 584-585 (1939).

[VI.21] G. Knoll, *Radiation Detection and Measurement*, 4th Ed., John Wiley & Sons, Inc., New York, p. 369 (2010).

[VI.22] G. R. Gilmore, *Practical Gamma-ray spectrometry*, 2nd Edition, John Wiley & Sons Ltd, The Atrium, Southern Gate, Chichester, West Sussex, England, pp. 61-99 (2008).

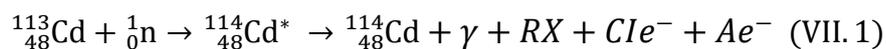
[VI.23] N. Kim, N. Kehtarnavaz, M. B. Yeary, S. Thornton, “DSP-based hierarchical network modulation signal classification”, *IEEE Transactions on Neural Networks*, Vol. 14, Iss. 5, pp. 1065-1071 (2003).

CHAPITRE VII : SCHEMA DE COMPTAGE NEUTRONIQUE PAR COMPENSATION A BASE DE DETECTEURS CdZnTe ET DE CONVERTISSEURS DE GADOLINIUM ET DE TERBIUM

Ce chapitre présente une application de la méthode de détection et comptage neutroniques exposée dans le Chapitre V à la détection à base de semi-conducteurs. L'enjeu de cette approche consiste à mettre en œuvre un capteur compact, fonctionnant à température ambiante. Ce capteur doit assurer la plus grande sensibilité à la signature photonique des désexcitations $^{158}\text{Gd}^*$ et $^{156}\text{Gd}^*$, tout en donnant accès à une identification de certaines raies caractéristiques. Le but est de maximiser la probabilité d'effets photoélectriques et Compton sur la composante photonique de la réponse d'une part, et de minimiser la diffusion neutronique d'autre part, selon les principes décrits dans les Chapitres I et III. Ces objectifs orientent le choix du solide semi-conducteur vers un matériau dense et de numéro atomique effectif élevé.

PARTIE I : Etude bibliographique sur la détection neutronique à base de détecteurs semi-conducteurs denses

Le tellure de cadmium, abrégé CdTe, est, parmi les cristaux semi-conducteurs denses et opérables à température ambiante mentionnés dans le paragraphe 4 du Chapitre VI, le candidat le plus évident pour la détection des neutrons thermiques [VII.1]. Le cadmium naturel se présente, en effet, sous la forme d'un mélange isotopique, composé à $12,22 \pm 0,12\%$ de l'isotope de cadmium 113, de section efficace $\sigma_{^{113}\text{Cd}} = 20600$ b pour la capture radiative des neutrons thermiques [VII.2]. En reprenant les notations du paragraphe 3.3 de l'Introduction, l'équation de réaction associée à une capture radiative $^{113}\text{Cd}(n, \gamma)$ s'écrit :



Le CdTe répond, en outre, aux critères de mérite essentiels pour la mise en œuvre de la signature des désexcitations associées aux captures $^{113}\text{Cd}(n, \gamma)$ en vue d'une détection des neutrons thermiques [VII.3], soit :

- une masse volumique ($\rho_{\text{CdTe}} = 6,06 \text{ g.cm}^{-3}$) et un numéro atomique effectif ($Z_{\text{Cd}} = 48, Z_{\text{Te}} = 52$) élevés, qui donne accès à un taux de dépôt d'énergie élevé du terme source ;
- la décroissance abrupte de $\sigma_{^{113}\text{Cd}}$ pour des énergies neutroniques moyennes supérieures à 50 meV (énergie dite de *coupure du cadmium*), qui assure la relative transparence du cristal semi-conducteur à la composante neutronique épithermique et rapide du fond radioactif. Cette dernière composante est, en effet, soustraite dans une méthode par compensation, lorsque nous cherchons à isoler la contribution des neutrons thermiques sur la voie 1 (couverture de gadolinium).

Fasasi *et al.* [VII.3] ont mis en évidence, dans un cristal de CdTe de dimensions $4 \times 4 \times 2$ mm irradié par un faisceau de neutrons thermalisés, de flux égal à $1,8 \cdot 10^5 n_{th} \cdot cm^{-2} \cdot s^{-1}$, des contributions significatives sur les plages [88 keV ; 99 keV] et [514 keV ; 570 keV]. Ces contributions sont attribuables, respectivement, aux raies gamma intenses à 95,88 keV et 558,32 keV dans le terme source de l'Equation (VII.1). Ces pics sont identifiables sur la Figure VII.1. La détection neutronique est, dans ce schéma, fondée sur la seule identification des raies indiquées. La réduction de l'épaisseur du capteur, notamment en imagerie, a dès lors pour résultat une dégradation très nette de la sensibilité. Cette dernière considération a conduit Miyake *et al.* [VII.4] à proposer un schéma de détection alternatif, en ajoutant au capteur de CdTe une couverture de gadolinium, dont l'épaisseur optimale est de 25 μm . Les mesures réalisées avec un pixel de CdTe, couvert de dimensions $4 \times 4 \times 0,5$ mm, en présence d'une source de californium 252, ont permis l'obtention du spectre reproduit sur la Figure VII.2. Sur une plage limitée [0 ; 200 keV], en raison de la faible épaisseur du capteur, les auteurs ont pu identifier le premier pic à 96 keV, attribuable aux captures $^{113}Cd(n, \gamma)$. Ils ont également relevé des pics à 80 keV et 182 keV, attribuables aux captures $^{157}Gd(n, \gamma)$, et à 88 keV aux captures $^{155}Gd(n, \gamma)$. Miyake *et al.* ont également noté la présence de deux pics très intenses à 43 keV et 49 keV, identifiés aux raies K_{α} et K_{β} du gadolinium.

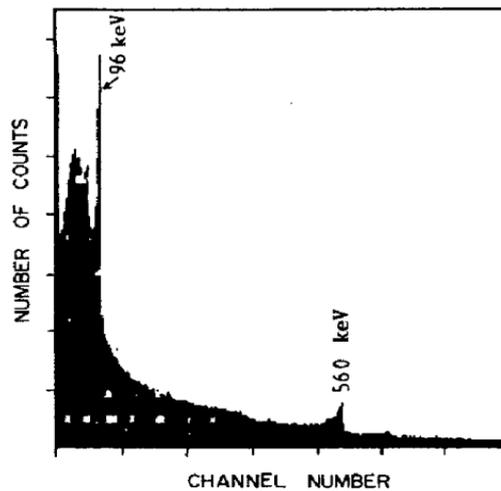


Figure VII.1 : Réponse du cristal de CdTe à un faisceau de neutrons thermalisés (Fasasi *et al.*, 1988).

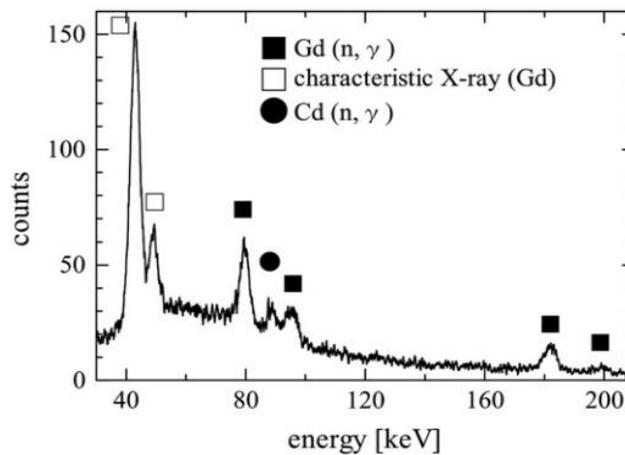


Figure VII.2 : Réponse du cristal de CdTe avec une couverture de gadolinium à un faisceau de neutrons thermalisés (Miyake *et al.*, 2011).

L'état de l'art décrit des cristaux de tellure de cadmium et zinc, sous forme longue $\text{Cd}_{1-x}\text{Zn}_x\text{Te}$ (CdZnTe en forme brève), où $x \in [0,1 ; 0,2]$ désigne la fraction de zinc présente dans la blende. Leur introduction s'est trouvée justifiée [VII.5] par l'accroissement de l'énergie de band-gap : $E_g = 1,57$ eV pour $x = 0,1$, contre $E_g = 1,47$ eV pour un cristal de CdTe . Cette élévation conduit à une réduction du courant de fuite thermique et donne ainsi accès à une opérabilité du détecteur à plus haute température. La mobilité des porteurs de charge est, comme observé dans le Tableau VI.1, très faible dans ces cristaux. L'optimisation de la collecte des porteurs de charge a, toutefois, permis d'atteindre des résolutions relatives de 1-2 % pour des volumes de l'ordre de la centaine de mm^3 au cm^3 . Ces performances sont compatibles avec des applications spectrométriques à basse et moyenne énergie [VII.6, VII.7].

En vue d'une détection des neutrons thermiques, fondée sur l'identification des pics caractéristiques des captures radiatives $^{113}\text{Cd}(n,\gamma)$, les critères de mérite cités pour les cristaux de CdTe demeurent valables pour les capteurs de CdZnTe . La densité ($\rho_{\text{CdZnTe}} = 5,78 \text{ g.cm}^{-3}$) et le numéro atomique effectif (10-20 % de zinc de numéro atomique $Z_{\text{Zn}} = 30$) ne sont, en effet, que légèrement abaissés. McGregor *et al.* [VII.8] ont ainsi mis en évidence, pour un capteur de $\text{Cd}_{0,8}\text{Zn}_{0,2}\text{Te}$ épais, de dimensions $10 \times 10 \times 3$ mm et irradié par un faisceau de neutrons thermiques, deux pics à moyenne énergie, respectivement à 558 keV et 651 keV, caractéristiques de la signature radiative décrite dans l'Equation (VII.1).

Les schémas de détection des neutrons thermiques, mettant en œuvre les semi-conducteurs denses de CdTe et de CdZnTe et détaillés dans cette partie, sont fondés sur l'identification de raies caractéristiques. Or le développement d'un compteur neutronique basé sur les dépôts à basse et moyenne énergie (moins de 700 keV pour les capteurs les plus volumineux) et fonctionnant en temps réel nécessite, une compensation de la radioactivité de fond. De premiers travaux, conduits au sein du laboratoire, ont ainsi décrit la compensation d'un détecteur de CdZnTe , d'un volume de 60 mm^3 et couvert par une plaque de gadolinium d'épaisseur égale à 1 mm, par un détecteur identique sans couverture. L'épaisseur élevée du convertisseur de gadolinium s'est révélée responsable d'une forte auto-absorption de la signature, ainsi que d'un écrantage élevé du détecteur. En présence d'une source de californium 252, seules les raies K_α et K_β du gadolinium, associées aux électrons de conversion interne absorbés par la couverture, ont pu être isolées par compensation. Ce chapitre présente, à la suite de ces premiers travaux, un schéma de détection par compensation similaire à celui décrit dans le Chapitre V. Ce schéma met en œuvre une compensation plus fine du capteur de détection, grâce à une couverture de terbium. Un facteur d'échelle a été appliqué au capteur de CdZnTe et l'épaisseur des convertisseurs a été optimisée, en vue de maximiser la signature isolée par soustraction des taux de comptages sur les deux voies. Cette étude a également pour vocation de confirmer l'attribution au terme source des captures radiatives $\text{Gd}(n,\gamma)$ d'un taux de comptage significatif à moins de 200 keV. L'identification de contributions caractéristiques de ces désexcitations, inaccessible au regard des taux de dépôt et de la résolution du scintillateur plastique utilisé dans le Chapitre V, servira cet objectif.

PARTIE II : Présentation de la méthode de détection et comptage

La méthode de détection neutronique est identique à celle exposée au Chapitre V, Partie II, à l'exception du remplacement des capteurs de plastique scintillant par des solides semi-conducteurs denses de CdZnTe . Le mode de réalisation est également semblable à celui représenté sur le schéma de principe de la Figure V.4, à quelques modifications près. Les

références (1) et (2) désignent désormais les capteurs de CdZnTe, identiques et dédiés, respectivement, à la détection des neutrons et à la soustraction du fond gamma. Une fine épaisseur non métallique (un vernis dans la mise en œuvre expérimentale décrite dans ce chapitre) est placée entre la couverture et le capteur sur les deux voies, respectivement entre (1) et (3), et (2) et (4). L'ensemble formé par les photomultiplicateurs (8) et (9), et la chaîne d'acquisition et de traitement des impulsions de scintillation (10) est remplacé par une chaîne de traitement analogique à deux voies d'entrée, conforme à la description du Chapitre VI, Partie II, paragraphe 6. L'acquisition et le traitement sont pilotés depuis un logiciel avec une interface homme-machine. Le test d'hypothèse qui gouverne la détection neutronique, ainsi que l'identification de zones du spectre compensé correspondant à certaines raies caractéristiques des désexcitations, sont décrits en Partie VII.

PARTIE III : Détecteur CdZnTe et chaîne d'acquisition et de mesure

1. Le capteur de tellure de cadmium et zinc (CdZnTe)

Le capteur de rayonnement utilisé pour l'étude de principe décrite dans la Partie VIII est un cristal de tellure de cadmium et zinc, de composition $\text{Cd}_{0,9}\text{Zn}_{0,1}\text{Te}$, de section $\Sigma = 10 \times 10 \text{ mm}$ et d'épaisseur $\epsilon = 5 \text{ mm}$, commercialisé par Ritec SIA sous l'appellation CZT/500(S) [VII.9]. En vue de maximiser la résolution du capteur semi-conducteur tout en limitant la complexité, et par conséquent le coût de fabrication, la disposition des électrodes suit une géométrie dite *quasi-hémisphérique*. Cette disposition est voisine de la disposition idéale en hémisphère, dans laquelle la cathode est un point de contact central et l'anode une couverture sphérique enveloppant le cristal. Dans le détecteur quasi-hémisphérique, le cristal est un parallélépipède rectangle de base carrée et de hauteur égale à la demi-largeur, ainsi que spécifié ci-dessus pour le CZT/500(S). Le point de contact cathodique se situe à la surface supérieure du semi-conducteur, tandis que le contact anodique forme un parallélépipède rectangle de dimensions $13 \times 13 \times 2 \text{ mm}$ adhérant à la base du capteur. Les électrodes dédiées à la collecte des porteurs de charge sont deux électrodes cylindriques distantes de 5 cm, de diamètre égal à 0,45 mm et de longueur égale à 12 mm. L'ensemble formé du cristal et de son embase est isolé optiquement par une couche de résine d'époxy d'épaisseur voisine de 100 μm .

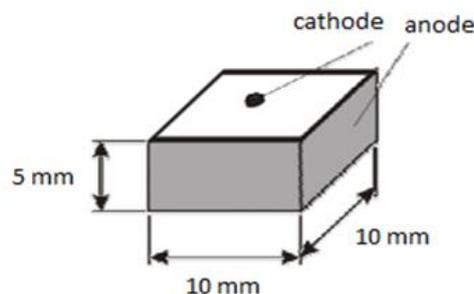


Figure VII.3 : Cristal CZT/500(S) (reproduit avec la permission de Ritec SIA).

2. Chaîne d'acquisition et de mesure

Le détecteur CdZnTe est intégré à une chaîne électronique compacte avec un module FPGA embarqué, illustrée sur la Figure VII.4. La chaîne inclut :

- une alimentation à haute tension, fixée à 950 V et polarisant positivement le détecteur ;
- un étage préamplificateur, alimenté par une tension continue de 5 V ;
- un module d'amplification et de traitement des impulsions, avec un temps de mise en forme égal à 1 μ s. Le module met en œuvre une restauration de la ligne de base, un discriminateur à fraction constante, dédié à l'extraction du signal, et un convertisseur analogique-numérique.

Les événements de comptage sont enregistrés dans un histogramme en amplitude codé sur 8 bits. L'ensemble forme une brique de détection portable, de surface 75×40 mm et pesant environ 20 g. La carte électronique communique par port USB avec un poste de mesure, depuis lequel les différents paramètres du détecteur peuvent être ajustés. L'interface logicielle permet l'affichage et l'enregistrement des spectres. Pour les besoins de l'étude expérimentale détaillée dans la Partie VIII, le détecteur et la chaîne sont placés à l'intérieur d'un boîtier en acier. Le boîtier a pour dimensions $11 \times 5 \times 2$ cm, qui isole l'ensemble des ondes à basse fréquence et atténue l'ambiance photonique au niveau du capteur de rayonnements.

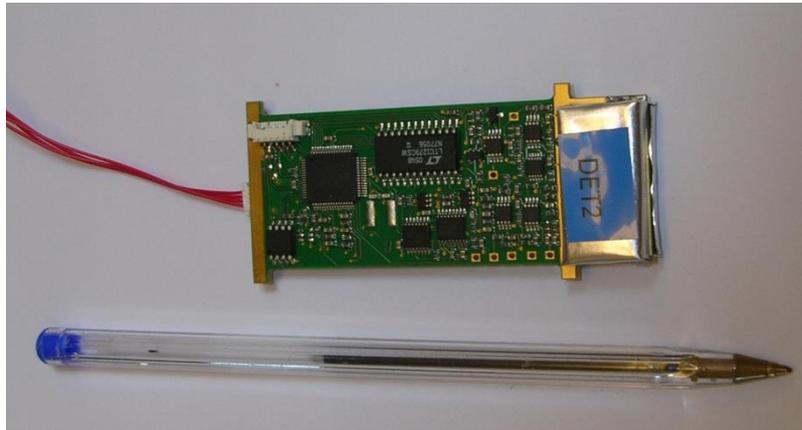


Figure VII.4 : Spectromètre CdZnTe (CEA, LIST).

La linéarité de la réponse en énergie d'un capteur CdZnTe de volume égal à 60 mm^3 , ainsi que l'obtention d'une résolution énergétique de l'ordre de la dizaine de keV à 661,7 keV (pic d'absorption totale du césium 137), ont été validées expérimentalement [VII.10]. Ces critères de mérite seront évalués, pour le capteur de volume égal à 500 mm^3 , dans la Partie VI de ce chapitre.

PARTIE IV : Optimisation de l'épaisseur de gadolinium et étude par simulation de la signature des captures neutroniques dans le détecteur CdZnTe

Nous cherchons à maximiser l'amplitude de la signature des produits de réactions $\text{Gd}(n, \gamma)$ dans le capteur de CdZnTe. Afin de déterminer l'épaisseur optimale du convertisseur de gadolinium, une étude par simulation a été conduite au moyen du code MCNPX2.6.0. Le capteur de détection est modélisé sous la forme d'un parallélépipède rectangle parfait :

- de dimensions $10 \times 10 \times 5$ mm ;
- de masse volumique $\rho_{\text{CdZnTe}} = 5,78 \text{ g. cm}^{-3}$;

- dont la composition est décrite par les fractions atomiques de 45 % de cadmium, 5 % de zinc et de 50 % de tellure.

L'isolation du semi-conducteur est modélisée par un vernis homogène d'époxy:

- de 100 μm d'épaisseur ;
- de masse volumique $\rho_{epoxy} = 1,1 \text{ g. cm}^{-3}$;
- dont la composition est décrite par les pourcentages atomiques de 28,6 % de carbone ; 57,1 % d'hydrogène et de 14,3 % d'oxygène.

La couverture, utilisée pour la conversion du rayonnement neutronique en un terme source de désexcitation photonique et électronique, est, quant à elle, modélisée sous la forme d'un parallélépipède rectangle de gadolinium naturel au contact de la résine d'époxy :

- de base $\Sigma = 10 \times 10 \text{ mm}$;
- de densité $\rho_{\text{Gd}} = 7,901 \text{ g. cm}^{-3}$
- de pureté 100 %.

Les électrodes décrites dans la Partie III sont négligées dans cette simulation. L'épaisseur h de la couverture de gadolinium constitue la variable de l'étude de dimensionnement, en fonction de laquelle le taux de dépôt énergétique du terme source dans le CdZnTe, utile pour la détection neutronique, doit être maximisé.

La modération neutronique n'est pas assurée par le capteur dans le schéma de détection étudié ici. L'émetteur de rayonnement neutronique utilisé pour le dimensionnement est, par conséquent, modélisé sous la forme d'une émission sphérique isotrope à une distance $d = 10 \text{ cm}$ du centre de masse du semi-conducteur et d'énergie égale à $T_n = 25 \text{ meV}$. La configuration simulée est illustrée sur la Figure VII.5 avec l'interface homme-machine Moritz 1.23, pour une épaisseur de gadolinium $h = 250 \mu\text{m}$.

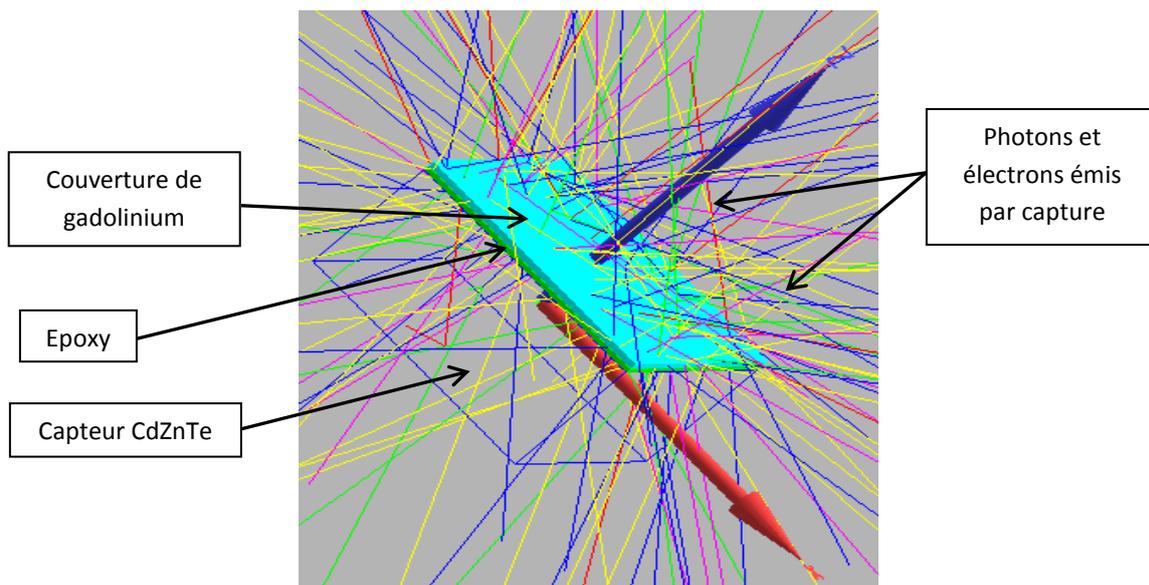


Figure VII.5 : Configuration simulée au moyen du code MCNPX2.6.0 pour l'estimation de la signature d'une capture neutronique dans le capteur CdZnTe (Moritz 1.23).

L'approche détaillée dans ce chapitre vise à tirer parti des propriétés spectroscopiques du matériau semi-conducteur dense. L'évolution de la signature utile pour la détection est d'abord décrite avec le terme source explicite et simplifié calculé dans le Chapitre I, paragraphes 2.1 et 3. En effet, ce terme source rend compte des raies les plus intenses attendues après désexcitations des noyaux $^{158}\text{Gd}^*$ et $^{156}\text{Gd}^*$, que la stratégie présentée ici vise à identifier.

Le tally 4 du code MCNPX2.6.0, couplé à la carte multiplicatrice FM 102, fournit un taux de capture radiative $\text{Gd}(n, \gamma)$ des neutrons thermiques émis par la source dans la couverture de gadolinium naturel, noté $\tau_{\text{cn}}(h)$ et exprimé en capture neutronique par neutron émis ($\text{cn} \cdot n^{-1}$).

Le rayonnement gamma prompt espéré consécutivement à une capture radiative $\text{Gd}(n, \gamma)$ dans la couverture est simulé selon la distribution illustrée sur la Figure I.3 pour la composante gamma prompt, augmentée du terme source d'électrons de conversion interne, d'émissions X et Auger porté dans les Tableau I.4 et I.6. L'ensemble est normalisé par les taux d'émission par capture neutronique $\text{Gd}(n, \gamma)$:

- $\tau_{E_\gamma} = 1,591 \text{ ph. cn}^{-1}$ pour la composante photonique (gamma prompts et rayons X) ;
- $\tau_{E_e} = 0,637 \text{ e. cn}^{-1}$ (électrons de conversion interne et Auger) pour la composante électronique.

Sur la base de l'étude présentée dans le Chapitre IV et résumée sur la Figure IV.11, la distribution spatiale dans la couverture peut être approchée par une distribution homogène jusqu'à une épaisseur de gadolinium de $h = 1 \text{ mm}$, correspondant à la borne supérieure retenue dans cette étude. Un terme source photonique et électronique de désexcitation du gadolinium, généré selon la distribution énergétique et spatiale décrite ci-dessus. Nous rappelons que le seuil de 20 keV est identifié à la limite du bruit dans les conditions de mesure. Au moyen du tally 8 du code MCNPX2.6.0 (sans GEB), nous évaluons le taux de dépôt énergétique à l'intérieur du capteur de CdZnTe :

- de la composante photonique, noté $\tau_{D_{ph}}(h)$ et exprimé en dépôt par génération du terme source photonique ($\text{d. } t_{ph}^{-1}$) ;
- de la composante électronique, noté $\tau_{D_e}(h)$ et exprimé en dépôt par génération du terme source électronique ($\text{d. } t_e^{-1}$).

Le taux de dépôt rapporté à une capture neutronique, noté $\tau_D(h)$ et exprimé en dépôt énergétique par capture neutronique (d. cn^{-1}), est calculé selon :

$$\tau_D(h) = \tau_{D_{ph}}(h) \cdot \tau_{E_{ph}} + \tau_{D_e}(h) \cdot \tau_{E_e} \quad (\text{VII. 2})$$

La signature utile pour la détection, que nous cherchons à maximiser, est notée $\tau(h)$ et exprimée en dépôt énergétique par neutron émis ($\text{d. } n^{-1}$). Elle est finalement explicitée en fonction de l'épaisseur h de la couverture sous la forme :

$$\tau(h) = \tau_{cn}(h) \cdot \tau_D(h) \quad (\text{VII.3})$$

Les Figures VII.6, VII.7 et VII.8 présentent respectivement l'évolution des taux $\tau_{cn}(h)$, $\tau_D(h)$ et $\tau(h)$ en fonction de l'épaisseur h de la couverture de gadolinium. Nous avons retenu les valeurs $h = \{10 ; 25 ; 50 ; 100 ; 250 ; 500 ; 1000\} \mu\text{m}$, qui correspondent à des épaisseurs disponibles commercialement.

La Figure VII.6 montre une croissance monotone du taux de capture neutronique avec l'épaisseur de la couverture de gadolinium, conforme à l'intuition. Sur la Figure VII.7, d'autre part, une décroissance monotone du taux de dépôt de la signature $\text{Gd}(n, \gamma)$ dans le capteur de CdZnTe est observée. Cette décroissance met notamment en évidence l'auto-absorption du convertisseur pour les produits de réaction électroniques. Le dimensionnement du convertisseur de gadolinium résulte d'un compromis entre ces deux tendances antagonistes, illustré par la Figure VII.8. L'évolution du taux utile pour la détection $\tau(h)$ confirme l'existence d'un optimum compris entre $h = 25 \mu\text{m}$ et $h = 50 \mu\text{m}$. L'épaisseur de $h = 25 \mu\text{m}$ est égale à l'optimum déterminé par Miyake *et al.* pour un capteur de CdTe [VII.4].

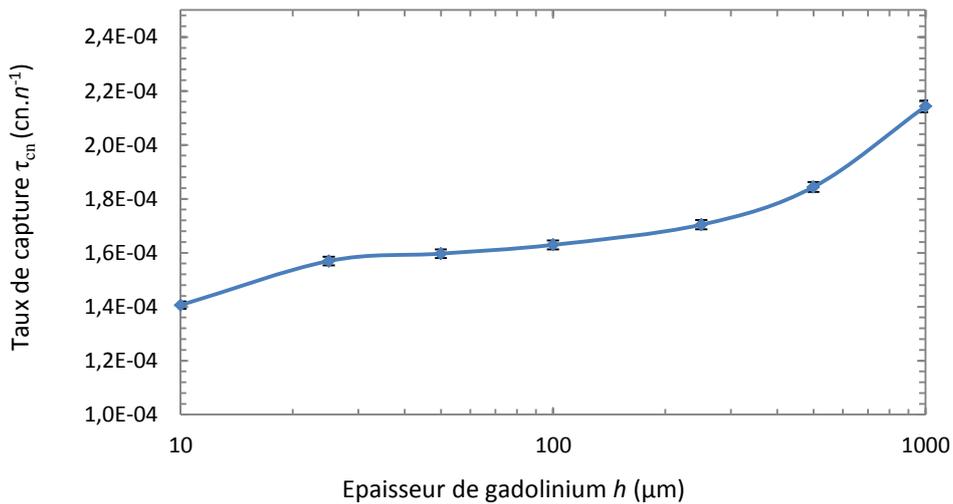


Figure VII.6 : Taux de capture τ_{cn} simulé avec le terme source explicite en fonction de l'épaisseur h .

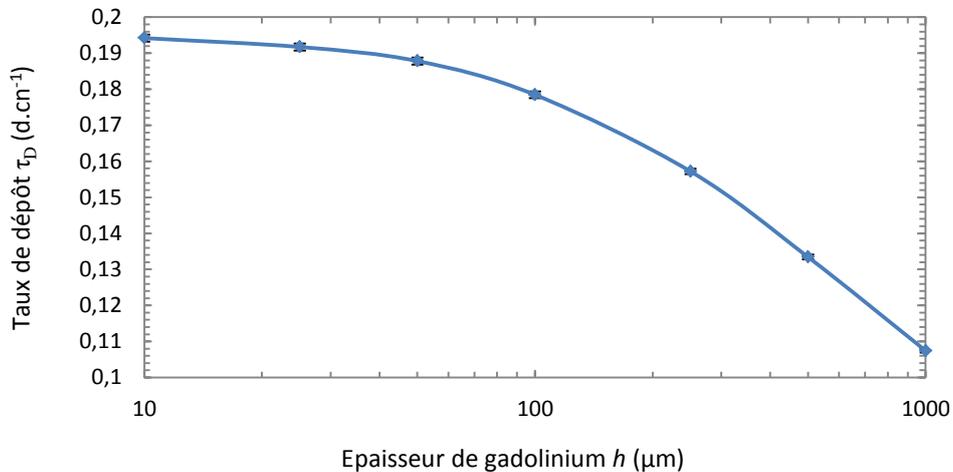


Figure VII.7 : Taux de dépôt τ_D simulé avec le terme source explicite en fonction de l'épaisseur h .

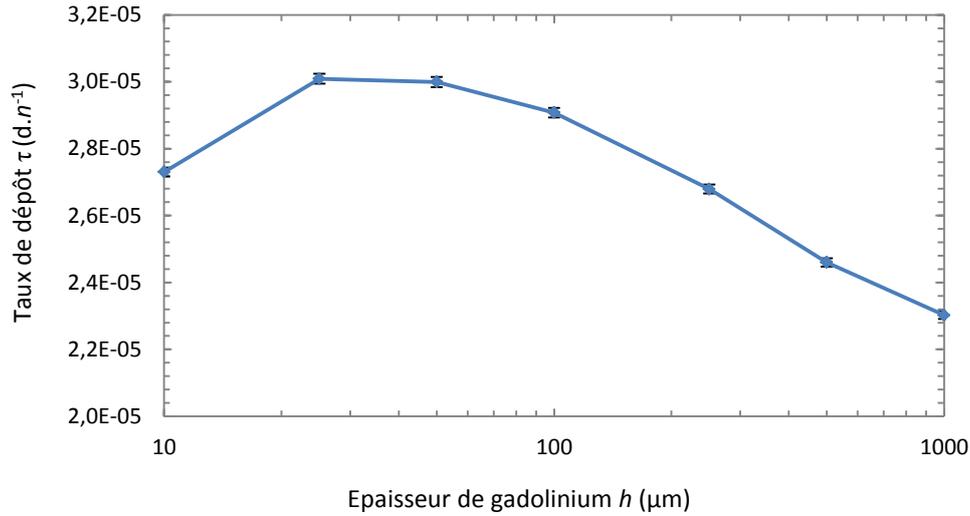


Figure VII.8 : Taux de dépôt τ simulé avec le terme source explicite en fonction de l'épaisseur h .

Nous générons à présent les produits de réaction $\text{Gd}(n, \gamma)$ avec la librairie ENDF/B-VII.0. L'évolution du taux de dépôt $\tau(h)$ entre 20 keV et le Q de la réaction, évalué avec le tally 8, est porté sur la Figure VII.9. La caractéristique corrobore l'existence d'un optimum au voisinage de $h = 25 \mu\text{m}$. Par ailleurs, les taux de dépôt obtenus au moyen de ce dernier terme source, conservant l'ensemble du Q de réaction, ne sont supérieurs à ceux représentés sur la Figure VII.8 que de 3 % ($h = 25 \mu\text{m}$) à 20 % ($h = 100 \mu\text{m}$). Cette observation souligne la contribution prépondérante du terme source représenté par les raies gamma prompts de la Figure I.3, ainsi que des produits de réaction dont l'émission a été estimée au paragraphe 3 du Chapitre I.

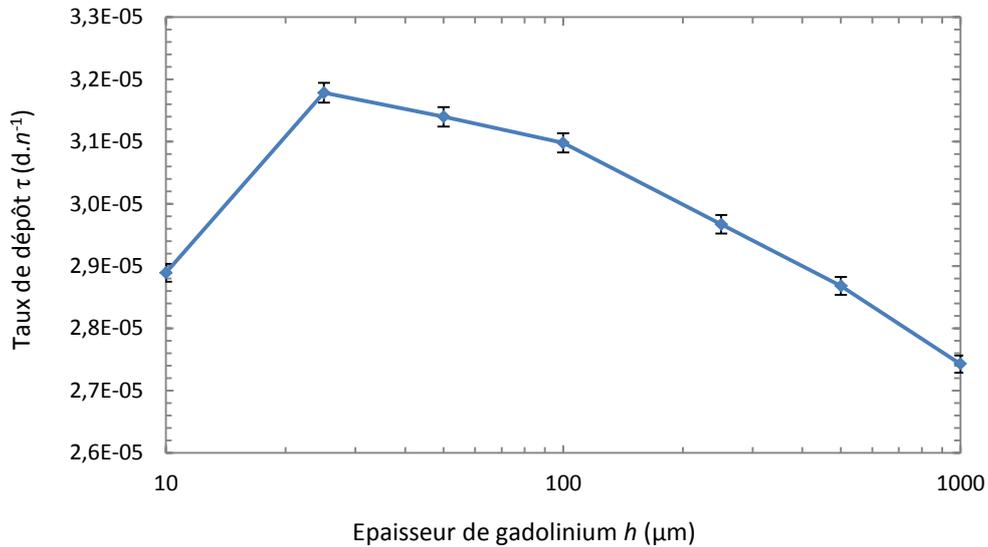


Figure VII.9 : Taux de dépôt τ simulé avec le terme source explicite en fonction de l'épaisseur h .

En vue de l'étude expérimentale de principe décrite dans la Partie VIII, l'épaisseur de $25 \mu\text{m}$ est ainsi retenue pour le convertisseur de gadolinium, ainsi que pour le compensateur de terbium.

Le spectre d'énergie déposée par le terme source explicite dans le capteur de CdZnTe pour $h = 25 \mu\text{m}$, est présenté sur la Figure VII.10 entre 20 keV et 400 keV. Il s'agit de la plage sur laquelle sont identifiables la plupart des pics de la signature. L'axe des ordonnées représente le taux de dépôt par capture τ_D . Le modèle d'élargissement gaussien explicité dans l'Equation (III.1) est paramétré à partir des largeurs à mi-hauteur relevées sur les pics d'absorption totale de l'américium 241 ($E_{PP,^{241}\text{Am}} = 59,5 \text{ keV}$) et du césium 137 ($E_{PP,^{137}\text{Cs}} = 661,7 \text{ keV}$) de la Figure VII.12. Les valeurs des paramètres $a = 0,0092 \text{ MeV}$ et $b = 0,0192 \text{ MeV}^{-1/2}$, calculées à partir de ces relevés et de l'Equation (III.1), sont portées en entrée de la carte GEB.

Le spectre d'énergie simulé et reproduit sur la Figure VII.10 met en évidence un front de dépôts entre 20 keV et 200 keV, représentant des taux compris entre $\tau_D = 5 \cdot 10^{-5} \text{ d. cn}^{-1}$ et $10^{-3} \text{ d. cn}^{-1}$. Un certain nombre de pics caractéristiques des désexcitations radiatives $^{158}\text{Gd}^*$ et $^{156}\text{Gd}^*$ sont, de surcroît, identifiables sur ce front. Ceci signifie que le modèle prévoit la possibilité d'accéder à une information spectroscopique à basse énergie dans le mode de réalisation décrit.

Les pics à 80 keV et 182 keV, qui dominent la signature, correspondent à l'absorption totale des deux raies gamma promptes les plus intenses des captures radiatives $^{157}\text{Gd}(n, \gamma)$, portées sur la Figure I.1. Symétriquement, les pics à 89 keV et 199 keV correspondent à l'absorption totale des deux raies gamma promptes les plus intenses des captures radiatives $^{155}\text{Gd}(n, \gamma)$, portées sur la Figure I.2. Les pics d'absorption totale à 135 keV, 255 keV et 278 keV correspondent également à des raies gamma promptes de capture $^{157}\text{Gd}(n, \gamma)$.

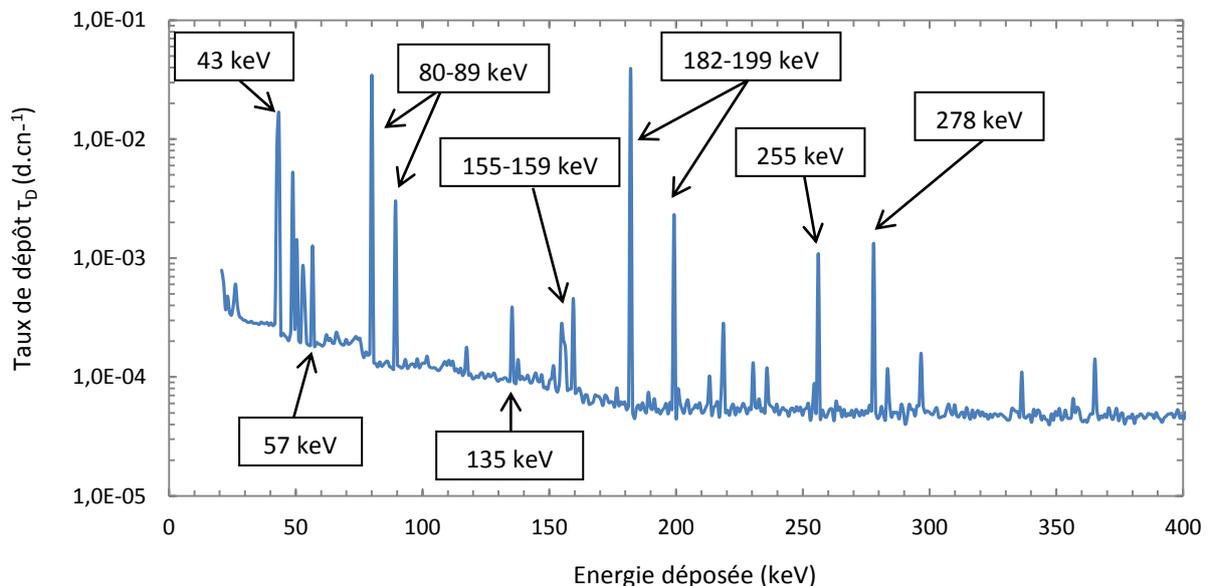


Figure VII.10 : Distribution en énergie simulée de la signature d'une capture neutronique dans le capteur de CdZnTe (avec GEB).

Aucun front associé aux énergies des électrons de conversion interne du Tableau I.4 n'est observable sur la Figure VII.10. Cette absence est causée par l'auto-absorption du convertisseur métallique et du pouvoir d'arrêt de l'épaisseur d'époxy sur cette composante

des produits de réaction. De même que dans le mode de réalisation décrit dans le Chapitre V, ce sont donc les pics des rayons X à 43 keV, 48,7 keV et 50 keV, associés aux conversions internes, qui seuls contribuent significativement à la signature.

Les deux pics à 155 keV et 159 keV correspondent enfin à des pics d'échappement X associés aux effets photoélectriques pour la raie gamma prompt à 182 keV. De même, le pic à 57 keV est un pic d'échappement de la raie gamma prompt à 80 keV. Les différences d'énergie sont, en effet, caractéristiques du cadmium et du tellure qui forment l'essentiel de la composition du capteur. L'énergie de liaison des électrons de la couche principale K varie entre 23 keV et 27 keV pour le cadmium, et 27 keV et 32 keV pour le tellure [VII.11].

Les résultats de cette étude par simulation justifient l'intérêt d'une transposition à la détection à base de matériaux semi-conducteurs du schéma introduit dans le Chapitre V. La distribution spectrale de la signature, évaluée avec la carte GEB, permet de prévoir l'existence de plusieurs régions identifiables, par pas de 10 keV entre 40 keV et 200 keV notamment, où la contribution du front se somme à celle des pics relevés. La Figure VII.10 met en évidence, de surcroît, une contribution dominante de la signature exploitable dans le capteur de CdZnTe jusqu'à environ 300 keV. Cette valeur sera retenue comme borne supérieure de comptage pour la mise en œuvre de la compensation sur une plage resserrée en énergie, en vue d'une maximisation du rapport signal sur bruit.

PARTIE V : Compensation de la réponse photonique par la couverture de terbium

Afin d'évaluer la compensation du fond gamma, Nous modélisons les ensembles {détecteur CdZnTe + couverture de gadolinium} et {détecteur CdZnTe + couverture de terbium}. La réponse des deux ensembles à une source sphérique d'émission isotrope, à l'énergie $E_\gamma = 662$ keV (césium 137), a été étudiée par simulation au moyen du code MCNPX2.6.0. La procédure identique ($d = 10$ cm) à celle détaillée dans la Partie V du Chapitre V.

L'ensemble de détection est modélisé de façon identique à celui décrit dans la Partie IV ci-dessus. La feuille de terbium, utilisée comme couverture du capteur de compensation dans l'étude expérimentale de la Partie VIII, est modélisée sous la forme d'une épaisseur homogène de 25 μm , de densité $\rho_{\text{Tb}} = 8,23$ g. cm^{-3} et de pureté 100 %, au contact de la couche d'époxy.

Les distributions spectrales tracées au moyen du tally 8 sont semblables à celles illustrées sur les Figures V.9. Elles font apparaître une divergence majeure des réponses gamma sur la plage de dépôt $\mathcal{F} = [40 \text{ keV} ; 55 \text{ keV}]$, identifiée aux raies X du gadolinium et terbium. De façon à affranchir la mesure par compensation de cette divergence, les comptages en vue de l'étude expérimentale du principe se limitent donc, à nouveau, à une plage supérieure à la zone de signature des raies X, avec un seuil bas de comptage fixé à 60 keV.

Par ailleurs, et de même qu'au Chapitre V, nous sommes la totalité des dépôts sur la plage $\mathcal{F} = [60 \text{ keV} ; 300 \text{ keV}]$, pour les ensembles {CdZnTe + couverture de gadolinium} et {CdZnTe + couverture de terbium}. En définissant $Q_{\text{Gd/Tb}}$ comme le rapport de la première somme sur la seconde, la valeur de $Q_{\text{Gd/Tb}} = 0,9945 \pm 0,0005$ est calculée. Ce dernier

résultat met en évidence, de même qu'au Chapitre V, pour une émission gamma d'espérance mathématique supérieure à 300 keV, une surcompensation légère de la couverture de terbium sur la plage de comptage retenue pour l'étude. Une surcompensation du même ordre de grandeur est également attendue en présence du fond gamma de l'émetteur de californium 252, d'espérance $\overline{E}_\gamma = 875$ keV, utilisé dans l'étude expérimentale. Sa prise en compte dans le paramétrage du test d'hypothèse de la Partie VII est, par conséquent, laissée en perspective de ces travaux. Cette simplification s'effectue au détriment d'une estimation de la sensibilité neutronique *a minima*, sur la base d'un coefficient de compensation $Q_{Gd/Tb} = 1$ et un écart-type $\sigma_{E_\gamma}(Q_{Gd/Tb}) = 0$. La sensibilité sera, en effet, évaluée à partir d'une ligne de base du spectre à basse énergie surcompensé. Afin de mettre en évidence cet effet, l'étude expérimentale du schéma de détection sera conduite en présence d'une source de césium 137 de forte activité ($A_{137Cs} = 34$ MBq), donnant accès à un débit de dose gamma important sur les détecteurs utilisés en compensation.

Suivant un argumentaire identique à celui détaillé à la fin de la Partie V du Chapitre V, les ensembles de détection et de compensation présentant le même nombre d'atomes légers susceptibles d'interagir avec la composante rapide du rayonnement neutronique incident. L'égalité à 1 du coefficient de compensation Q de la réponse neutronique rapide est par conséquent admise. Une épaisseur de plomb, typiquement de l'ordre de 5 cm, suffit à isoler les deux voies de mesure. L'étude expérimentale du principe de détection sera à nouveau conduite séparément sur les deux ensembles {capteur + couverture}. Nous utiliserons donc le même détecteur de CdZnTe, couvert successivement d'une feuille de gadolinium et d'une feuille de terbium dont les épaisseurs sont spécifiées comme égales.

PARTIE VI : Etalonnage en énergie du détecteur CdZnTe

L'étalonnage du détecteur CdZnTe est réalisé au moyen de plusieurs sources radioactives émettrices de rayonnements gamma disponibles au sein du laboratoire. Chacune des sources est placée au contact du boîtier hermétique, à une distance $d = 1$ cm de la surface d'entrée du capteur encapsulé :

- une source d'américium 241, dont le pic d'absorption totale est relevé à $E_{PP,241Am} = 59,5$ keV ;
- une source d'euporium 152, dont les pics d'absorption totale sont relevés à $E_{PP1,152Eu} = 344,3$ keV et $E_{PP2,152Eu} = 1408$ keV ;
- une source de césium 137, dont le pic d'absorption totale est relevé à $E_{PP,137Cs} = 661,7$ keV ;
- une source de sodium 22 dont les pics d'absorption totale sont relevés à $E_{PP1,22Na} = 511,0$ keV et $E_{PP2,22Na} = 1274,5$ keV.

En raison de la densité et du numéro atomique effectif élevés du capteur, l'étalonnage peut être entièrement réalisé sur la base de pics d'absorption totale associés aux différents

émetteurs photoniques, ce qui permet de réduire les incertitudes de résolution attachées aux énergies identifiées à ces pics. La haute tension a été fixée à 950 V pour l'acquisition des spectres et le gain du numériseur ajusté de façon à couvrir par la mesure une plage d'énergie s'étendant jusqu'à 2 MeV. Les spectres en amplitudes normalisés acquis pour les quatre irradiations listées ci-dessus, sont portés sur la Figure VII.11 en échelle semi-logarithmique. La position du pic d'absorption totale, ainsi que l'incertitude associée sur le numéro du canal, sont portées sur la courbe d'étalonnage présentée en Figure VII.12. La linéarité en énergie de la réponse du capteur est validée au moyen d'une régression linéaire sur les points expérimentaux, avec un coefficient de détermination $R^2 = 0,9995$.

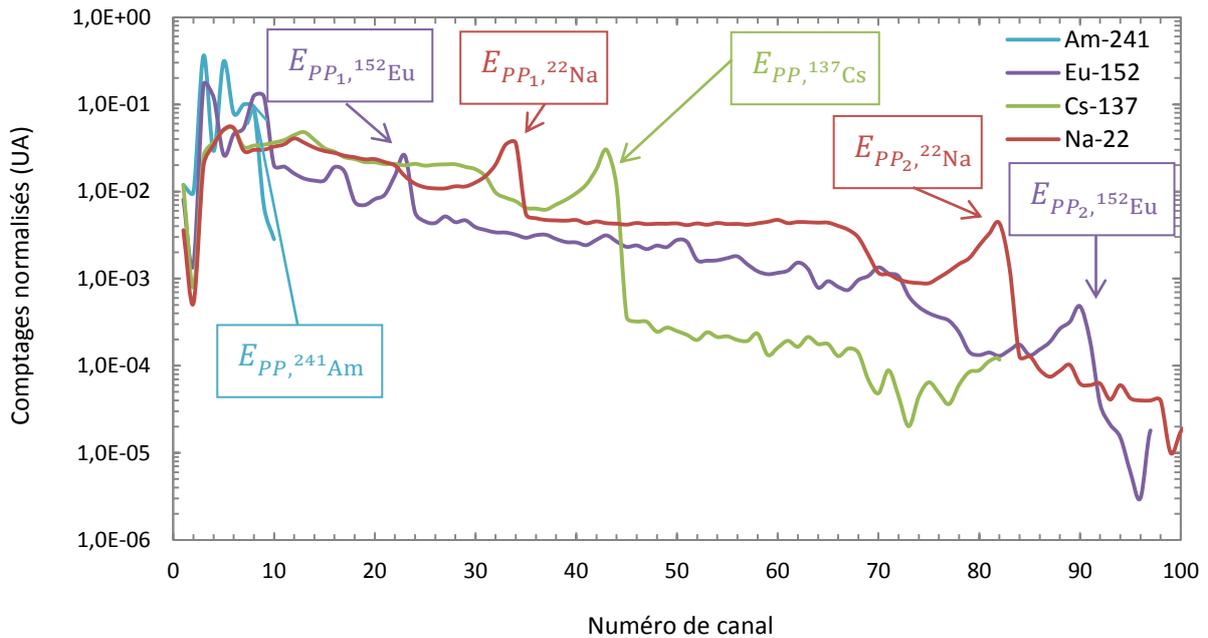


Figure VII.11 : Spectres en amplitude du capteur CdZnTe en réponse à des sources d'américium 241, d'euporium 152, de césium 137 et de sodium 22.

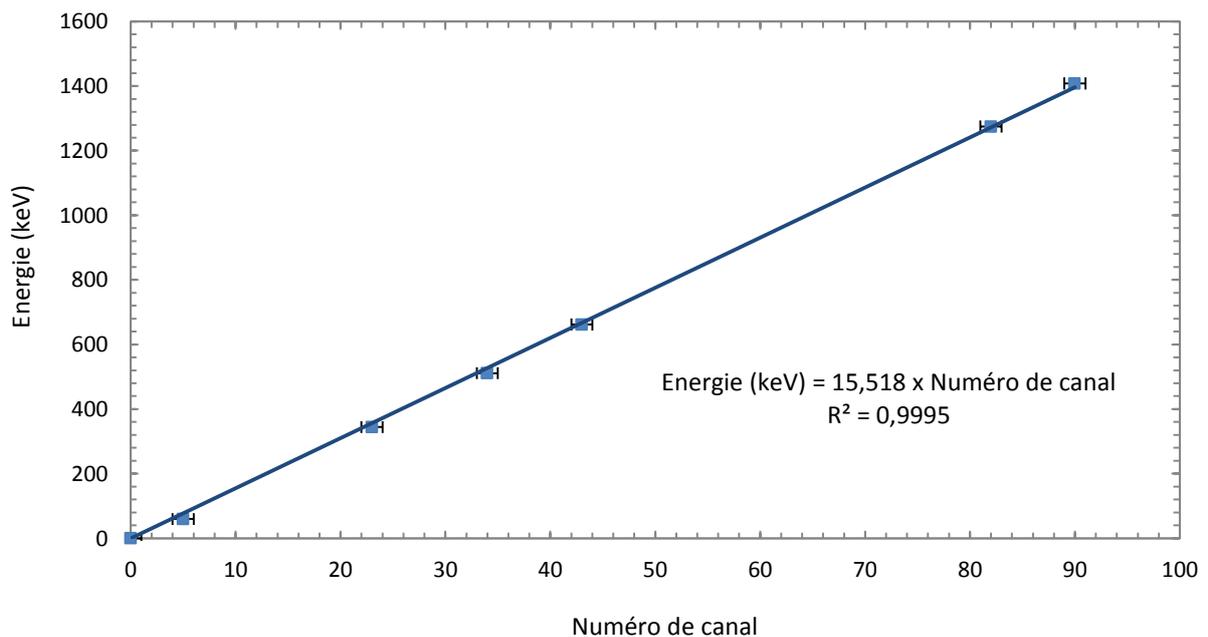


Figure VII.12 : Courbe d'étalonnage en énergie du capteur CdZnTe.

PARTIE VII : Test d'hypothèse pour la détection et le comptage neutroniques

Les estimées des taux de comptage sur la voie 1 et la voie 2, après intégration sur une durée d'acquisition T , sont notés respectivement $\widehat{\lambda}_1$ et $\widehat{\lambda}_2$. Ces estimées, ainsi que les écarts-types $\sigma(\widehat{\lambda}_1)$ et $\sigma(\widehat{\lambda}_2)$ qui leur sont associés, sont calculés selon les Equations (V.2) à (V.5) présentées dans le Chapitre V. L'opération de détection et de comptage neutroniques est, de même que celle décrite au Chapitre V, Partie VII, le résultat d'un test d'hypothèse. L'hypothèse nulle, notée \mathbf{H}_0 , correspond à l'absence d'activité neutronique, et l'hypothèse alternative, notée \mathbf{H}_1 , à la présence d'une activité neutronique détectable. Le test de décision est identique à celui explicité dans l'Equation (V.6). Sur la base du prolongement de la distribution représentée sur la Figure V.13, le facteur d'élargissement du test de détection est fixé à $t_K = 4,4$. Cette valeur permet d'assurer un niveau de confiance $1 - K = 99,999 \%$ sur une plage de comptage en énergie donnée, notée \mathcal{F} .

Le taux de comptage est plus faible sur un pas unique de l'histogramme. L'identification des pics d'intérêt, attribués aux neutrons thermiques, est dès lors effectuée avec un facteur d'élargissement propre fixé à $t_K = 1,96$, assurant un niveau de confiance $1 - K = 95 \%$. Ces pics correspondent aux captures dans la couverture de gadolinium aussi bien que dans le capteur de CdZnTe, riche en cadmium. Enfin, dans le cas où l'hypothèse de détection \mathbf{H}_1 est acceptée sur \mathcal{F} , un taux de comptage $\widehat{\lambda}_n$ attribué à la capture de neutrons thermiques est estimé, sur la durée d'acquisition T , par l'Equation (V.7).

PARTIE VIII : Résultats expérimentaux obtenus avec le détecteur CdZnTe et les couvertures de gadolinium et de terbium

La réjection gamma et la sensibilité neutronique du schéma de détection présenté dans ce chapitre sont étudiées suivant un protocole expérimental analogue à celui décrit dans la Partie VIII du Chapitre V. Trois mesures de comptage sont conduites sur la voie 1 (CdZnTe couvert d'une feuille de gadolinium) et sur la voie 2 (CdZnTe couvert d'une feuille de terbium). Les feuilles de gadolinium et de terbium naturels sont acquises auprès du fournisseur commercial Goodfellow, avec une pureté égale à 99 %, une surface de $2,5 \times 2,5$ cm et une épaisseur égale à 25 μm . La superposition du convertisseur métallique (gadolinium, pour la voie de détection) au capteur de CdZnTe isolé optiquement par une couche de résine d'époxy noire est illustrée sur la Figure VII.13.

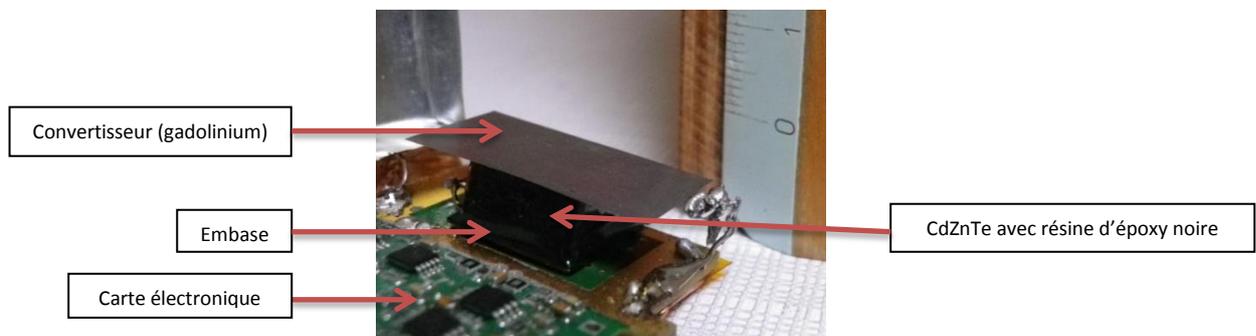


Figure VII.13 : Ensemble {détecteur de CdZnTe + gadolinium} pour la voie de détection.

L'ensemble ci-dessus, pour l'un puis l'autre convertisseur, est placé à l'intérieur du boîtier hermétique décrit dans le paragraphe III.2. Les mesures de comptage, conduites pour la voie de détection notée 1 et la voie de compensation notée 2 successivement, sont décrites comme suit :

- mesure en présence d'une source de *césium 137* d'activité $A_{137\text{Cs}} = 34 \text{ MBq}$, atténuée par une épaisseur de plomb égale à 1 cm et placée à une distance $d = 16 \text{ cm}$ de la face la plus proche du boîtier, intégrée sur une durée d'acquisition $T = 3600 \text{ s}$;
- mesure, intégrée sur une durée d'acquisition $T = 7200 \text{ s}$, en présence d'une source de *californium 252* d'activité $A_{252\text{Cf}} = 485 \text{ kBq}$ placée à une distance $d = 15,5 \text{ cm}$ de la face la plus proche du boîtier. Entre la source et le boîtier, sont intercalées, dans l'ordre, une épaisseur de 10 cm de matériau modérateur des neutrons (Polyéthylène Haute Densité, abrégé PEHD), une brique de plomb d'épaisseur 5 cm et une plaque de laiton d'épaisseur 5 mm ;
- mesure, intégrée sur une durée d'acquisition $T = 7200 \text{ s}$, en présence d'une source de *californium 252* d'activité $A_{252\text{Cf}} = 485 \text{ kBq}$ placée à une distance $d = 15,5 \text{ cm}$ de la face la plus proche du boîtier. Entre la source et le boîtier, sont intercalées, dans l'ordre, une épaisseur de 10 cm de matériau modérateur et absorbeur des neutrons (bois boré Permali HB 780), une brique de plomb d'épaisseur 5 cm et une plaque de laiton d'épaisseur 5 mm.

Le capteur de CdZnTe possède un volume inférieur à 1 cm^3 , ce qui justifie, en vue de l'étude expérimentale du principe, la mise en œuvre de stratagèmes de maximisation du rapport signal neutronique thermalisé sur fond gamma en amont du détecteur. A cette fin, une épaisseur voisine de l'ordre de la dizaine de centimètre de PEHD joue un rôle analogue à celui d'une sphère de Bonner commerciale au diamètre optimisé et l'écran de plomb atténue le fond gamma de la source. Le plomb est émetteur de raies X sur la plage [70 keV – 90 keV], particulièrement critique pour l'identification de pics caractéristiques des désexcitations $^{158}\text{Gd}^*$ et $^{156}\text{Gd}^*$. C'est la raison pour laquelle une épaisseur de laiton est ajoutée au plomb, afin de supprimer cette éventuelle contribution au signal mesuré.

Afin d'illustrer l'apport de la couverture de terbium au schéma de compensation, les deux dernières mesures, soit la mesure californium 252 + PEHD et la mesure californium 252 + bois boré, sont également conduites avec le détecteur CdZnTe sans couverture métallique. Le montage expérimental pour l'acquisition des spectres associés à ces deux mesures est illustré sur les Figures VII.14 et VII.15.

Les spectres compensés, sur lesquels se fonde la détection neutronique, sont obtenus par la soustraction, de canal à canal, des spectres acquis sur la voie 2 à ceux acquis sur la voie 1. Les Figures VII.16 et VII.17 présentent les spectres en taux de comptage ainsi obtenus pour les irradiations au californium 252, en présence de PEHD et de bois boré respectivement. Les barres d'erreur représentent l'incertitude associée au taux de comptage après compensation affiché sur chaque canal, avec le facteur d'élargissement $t_K = 1,96$ retenu en Partie VII pour l'identification des pics. A titre de comparaison, les spectres compensés reproduits sur les

Figures VII.18 et VII.19, sont obtenus, pour les mesures identifiées californium 252 + PEHD et californium 252 + bois boré respectivement, en remplaçant l'ensemble {détecteur CdZnTe + terbium} de compensation par le seul détecteur CdZnTe sans couverture.

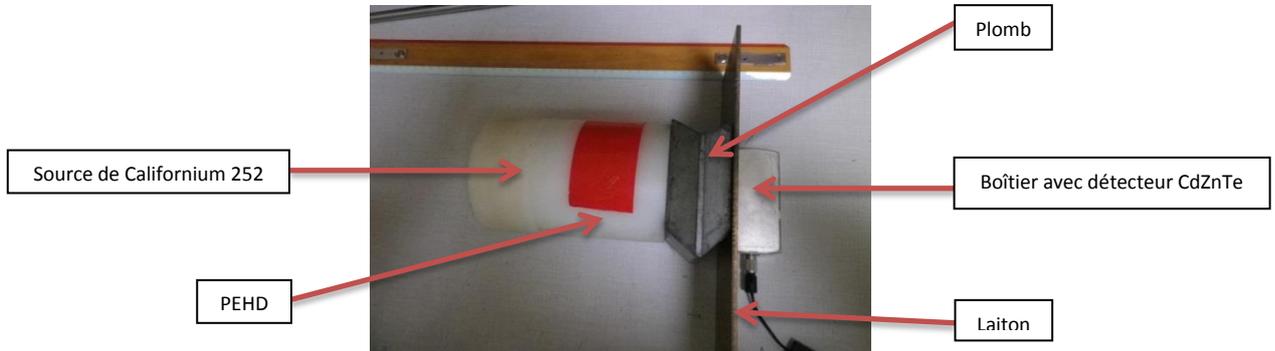


Figure VII.14 : Montage expérimental pour l'acquisition de spectres (californium 252 + PEHD).

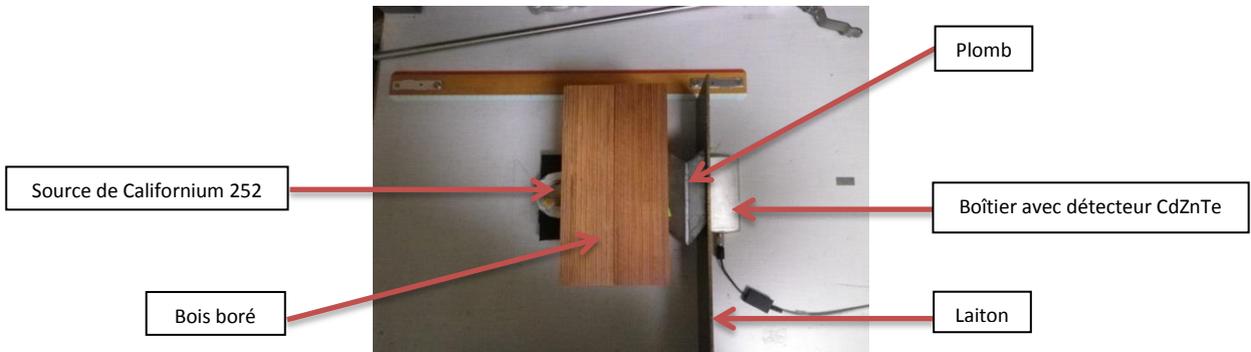


Figure VII.15 : Montage expérimental pour l'acquisition de spectres (californium 252 + bois boré).

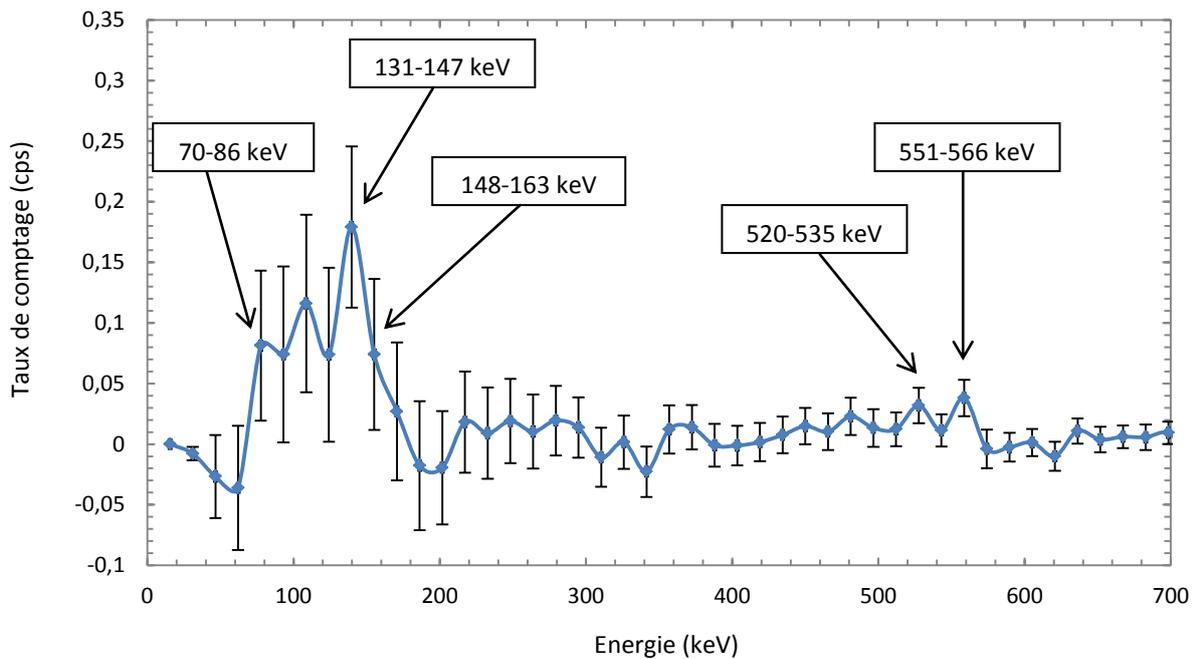


Figure VII.16 : Différence des spectres obtenus avec le capteur CdZnTe couvert de gadolinium et de terbium (californium 252 + PEHD).

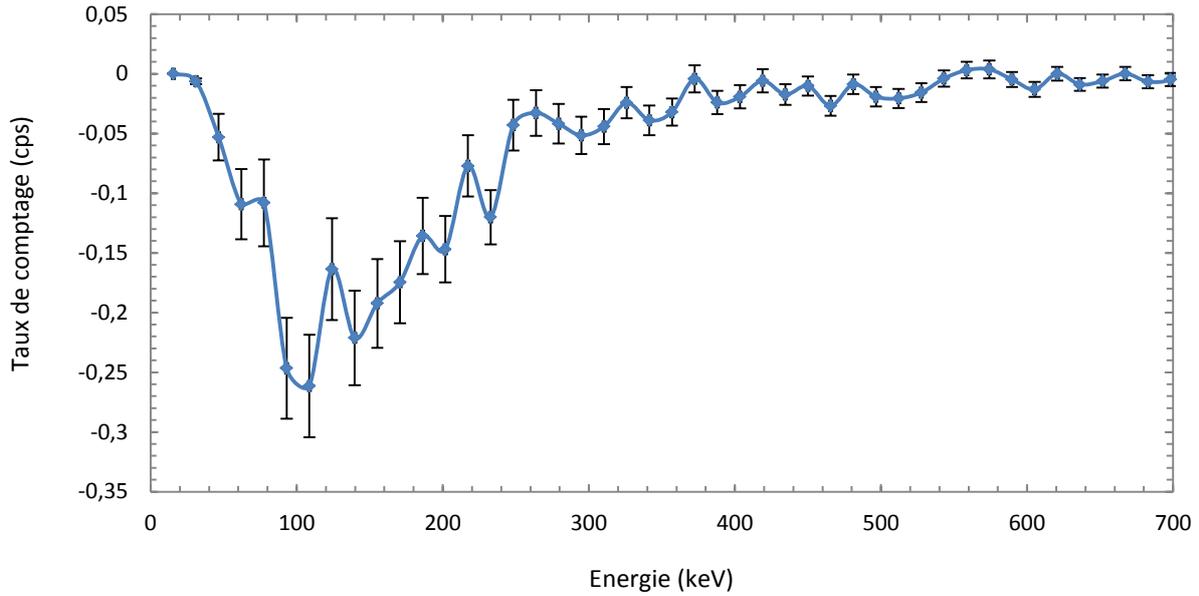


Figure VII.17 : Différence des spectres obtenus avec le capteur CdZnTe couvert de gadolinium et de terbium (californium 252 + bois boré).

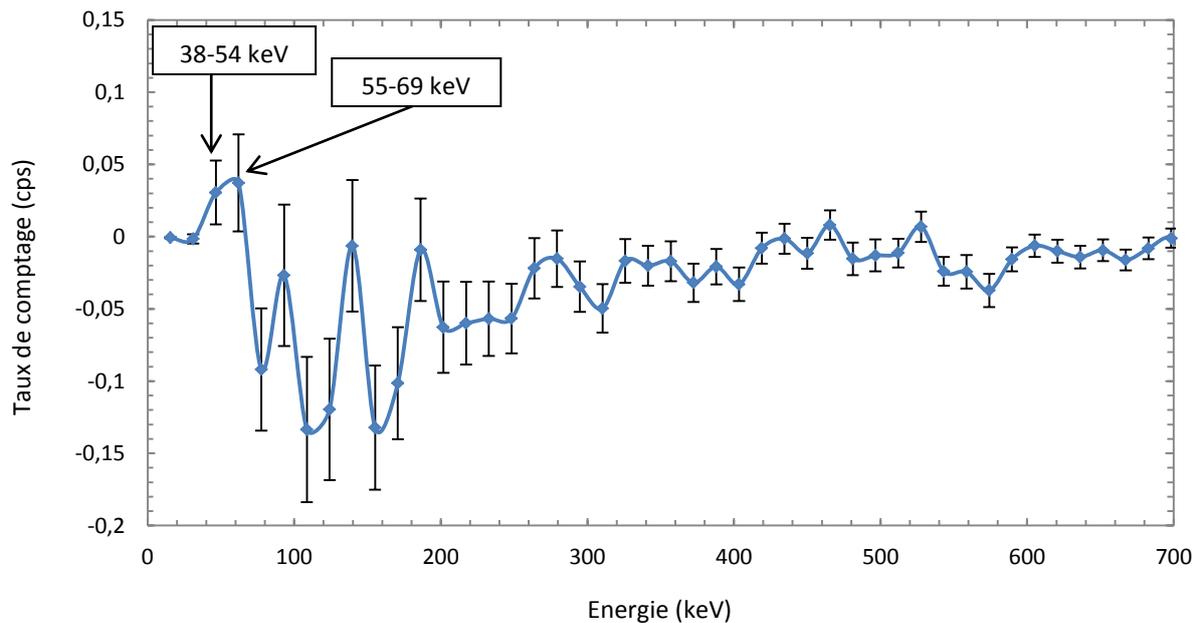


Figure VII.18 : Différence des spectres obtenus avec le capteur CdZnTe couvert de gadolinium et sans couverture (californium 252 + PEHD).

En vue de l'opération de détection et de comptage neutroniques, et sur la base des simulations présentées dans la Partie IV, l'étude du principe se limite aux comptages intégrés sur la fenêtre d'intérêt $\mathcal{F} = [60 \pm 8 \text{ keV} ; 300 \pm 8 \text{ keV}]$.

Dans le cas où le capteur de compensation est couvert d'une feuille de terbium, les taux de comptage bruts moyens déduits sur chacune des voies $\widehat{\lambda}_1$ et $\widehat{\lambda}_2$, estimés sur ces trois plages d'énergie, sont portés dans le Tableau VII.1. Le Tableau VII.1 présente également le résultat des tests de détection neutronique ($t_k = 4,4$) conduits sur ces taux.

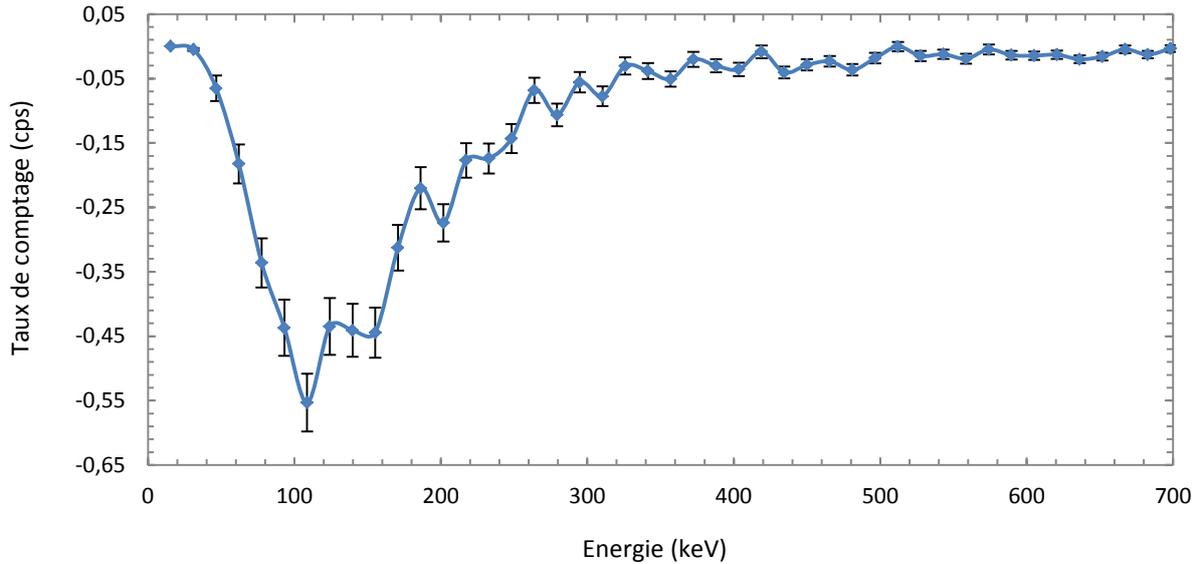


Figure VII.19 : Différence des spectres obtenus avec le capteur CdZnTe couvert de gadolinium et sans couverture (californium 252 + bois boré).

Plage de comptage \ Source radioactive	Césium 137	Californium 252 + PEHD	Californium 252 + bois boré
[60 keV – 300 keV]	$\widehat{\lambda}_1 = 402,49 \pm 0,32$ cps $\widehat{\lambda}_2 = 404,17 \pm 0,38$ cps $\widehat{\lambda}_1 - \widehat{\lambda}_2 = -1,68$ cps $t_K \cdot \sqrt{\sigma^2(\widehat{\lambda}_1) + \sigma^2(\widehat{\lambda}_2)}$ $= 2,20$ cps H₀ acceptée	$\widehat{\lambda}_1 = 20,50 \pm 0,05$ cps $\widehat{\lambda}_2 = 19,86 \pm 0,05$ cps $\widehat{\lambda}_1 - \widehat{\lambda}_2 = 0,64$ cps $t_K \cdot \sqrt{\sigma^2(\widehat{\lambda}_1) + \sigma^2(\widehat{\lambda}_2)}$ $= 0,31$ cps H₁ acceptée $\widehat{\lambda}_n = 0,64 \pm 0,07$ cps	$\widehat{\lambda}_1 = 13,37 \pm 0,04$ cps $\widehat{\lambda}_2 = 15,49 \pm 0,05$ cps $\widehat{\lambda}_1 - \widehat{\lambda}_2 = -2,13$ cps $t_K \cdot \sqrt{\sigma^2(\widehat{\lambda}_1) + \sigma^2(\widehat{\lambda}_2)}$ $= 0,28$ cps H₀ acceptée

Tableau VII.1 : Taux de comptage estimés sur les plages de comptage d'intérêt et résultats des tests de détection neutronique (**H₀** : absence de neutrons ; **H₁** : présence de neutrons, $t_K = 4, 4$).

1. Etude du principe : réjection des rayonnements gamma, détection neutronique et contributions caractéristiques

Le test d'hypothèse pour la détection neutronique a pour résultat l'acceptation de **H₀**, soit une non-détection, en présence de la source de césium 137. Le débit de dose gamma induit par la source au niveau du capteur a été mesuré, au moyen d'un radiamètre commercial de type Thermo Electron ESM FH 40G-L 10, égal à $17 \mu\text{Sv}\cdot\text{h}^{-1}$. Ce débit correspond à une zone « contrôlée » en radioprotection.

La compensation de cette émission gamma, selon les arguments repris dans le paragraphe VIII.1 du Chapitre V, doit assurer la compensation du fond photonique de la source de californium 252 utilisée pour l'étude de la réponse neutronique. Le débit de dose gamma induit par cette dernière au niveau du capteur est en effet de $0,3 \mu\text{Sv}\cdot\text{h}^{-1}$, soit inférieur à celui du césium 137. Une surcompensation significative de la couverture de terbium à basse énergie est, de surcroît, relevée à partir des données du Tableau VII.1. Cette surcompensation est interprétable à partir de la discussion de la Partie V, dans la limite, toutefois, des incertitudes portant sur l'épaisseur et la pureté des convertisseurs métalliques.

Les Figures VII.18 et VII.19, représentent la réponse d'un détecteur CdZnTe couvert de gadolinium et compensé par un détecteur identique sans couverture. Ces résultats sont en accord avec les résultats de l'étude précédemment conduite au sein du laboratoire. La Figure VII.18 montre que le profil de la réponse compensée est partout négatif ou nul, dans la limite d'une incertitude statistique de 5 %, hormis sur l'intervalle $[46 \pm 8 \text{ keV} ; 62 \pm 8 \text{ keV}]$. Cette plage correspond aux raies X du gadolinium identifiables sur la Figure VII.10. L'intensité de ces pics peut s'expliquer par l'arrêt, dans la couche d'époxy recouvrant le matériau semi-conducteur, des électrons de conversion interne associés aux captures $\text{Gd}(n, \gamma)$.

Cette contribution est supprimée lorsque le PEHD est remplacé par le bois boré, ce qui corrobore son attribution aux captures neutroniques. L'effet d'écran de la couverture de gadolinium sur le détecteur CdZnTe explique, en outre, la surcompensation du fond photonique, observée entre 0 et 300 keV sur les deux courbes. La comparaison des Figures VII.16 et VII.17 entre 0 et 300 keV montre toutefois que la réponse compensée, en présence du californium 252 et du PEHD, laisse apparaître une structure caractéristique. Cette structure est formée de pics qui coïncident avec la signature moyenne d'une capture radiative $\text{Gd}(n, \gamma)$ décrite dans la Partie IV : $93 \pm 8 \text{ keV}$, $139 \pm 8 \text{ keV}$, $186 \pm 8 \text{ keV}$. Elle est supprimée lorsque le bois boré est substitué au PEHD. Un seuil de détection positif, tel que ceux décrits dans les Equations (V.6) et (V.7), ne permet toutefois pas d'isoler la contribution de ces pics, ni d'obtenir un taux de comptage significatif sur la plage $\mathcal{F} = [60 \text{ keV} ; 300 \text{ keV}]$.

La couverture du capteur de compensation par une feuille de terbium, d'épaisseur spécifiée égale à celle du convertisseur de gadolinium, autorise le redressement de la ligne de base du spectre compensé. Ce redressement est illustré par la comparaison des Figures VII.16 et VII.17 : le minimum de la courbe passant de $-0,55 \text{ cps}$ à $-0,26 \text{ cps}$, ce qui implique un facteur de réduction supérieur à 2.

La Figure VII.16 illustre le gain apporté par la couverture du capteur de compensation au moyen d'un élément voisin du gadolinium, dont le principe a été énoncé au Chapitre V, paragraphe II.1. La structure de pics caractéristiques entre 0 et 300 keV, partiellement identifiée sur la Figure VII.18, apparaît désormais au-dessus de l'axe des abscisses. Des contributions, identifiables à 95 %, sont notamment relevées à : $78 \pm 8 \text{ keV}$, $139 \pm 8 \text{ keV}$, et $155 \pm 8 \text{ keV}$ que l'on peut rapprocher des pics d'absorption à 80 keV, 135 keV et 155-159 keV de la Figure VII.7. Aucune contribution significative au voisinage de 182 keV n'a cependant pu être observée.

Deux pics à $558 \pm 8 \text{ keV}$ et $527 \pm 8 \text{ keV}$ sont également identifiables avec un taux d'erreur de 5 % sur la Figure VII.16, pics dont la contribution est supprimée lorsque le PEHD est remplacé par le bois boré (Figure VII.17). Le premier pic correspond à la valeur de la raie gamma prompte la plus intense émise lors des captures radiatives $^{113}\text{Cd}(n, \gamma)$, pic qui avait été relevé par Fasasi *et al.* [VII.3]. La seconde est compatible avec un pic d'échappement X associé à cette même raie dans le cristal de CdZnTe. Cette signature des captures de neutrons thermiques dans le cadmium coïncide avec l'émergence des raies attribuées aux captures dans le gadolinium. Elle corrobore donc une première validation du principe sur la base des tests détaillés ci-dessus.

Les tests de détection, réalisés à partir des comptages intégrés sur la plage $\mathcal{F} = [60 \text{ keV} ; 300 \text{ keV}]$, et dont les résultats sont consignés dans le Tableau VII.1, confirment cette analyse, tout en fournissant une donnée intégrale utilisable en ligne. L'hypothèse de détection \mathbf{H}_1 est acceptée sur \mathcal{F} en présence du modérateur neutronique, ce

qui conduit à l'affichage d'un taux de comptage $\widehat{\lambda}_n$ attribué au rayonnement neutronique incident. Elle est, en revanche, rejetée en présence de l'absorbeur neutronique de bois boré. La diminution du taux de comptage affiché sur chaque voie lors de la substitution du bois boré au PEHD, observée au Chapitre V, paragraphe VIII.1, et attribuée au rapport des densités entre les deux matériaux, est également notée dans cette expérience. Cette décroissance varie entre 28 et 53 %, pour une valeur théoriquement attendue au voisinage de 42 %.

2. Estimation de la sensibilité aux neutrons thermiques

La sensibilité \widehat{S}_n aux neutrons thermiques du schéma de détection mis en œuvre dans ce chapitre, peut être estimée selon la même méthode qu'au paragraphe VIII.2 du Chapitre V, à partir du taux de comptage $\widehat{\lambda}_n = 0,64 \pm 0,07$ cps sur $\mathcal{F} = [60 \text{ keV} ; 300 \text{ keV}]$. En raison de la complexité du montage, l'estimation par simulation de la fluence neutronique incidente sur le capteur est toutefois encadrée de plus grandes incertitudes. La sensibilité obtenue par calcul est voisine de 1 cps/nv. Cet ordre de grandeur est supérieur de plus d'un ordre de grandeur à ceux estimés au Chapitre V. Ce dernier résultat est en accord avec le gain attendu du fait :

- de l'optimisation de l'épaisseur de gadolinium ;
- de la mise en œuvre d'un capteur dense et de numéro atomique élevé, plus sensible à la composante photonique des produits de réaction $\text{Gd}(n, \gamma)$ à basse énergie.

CONCLUSION DU CHAPITRE ET PERSPECTIVES

Ce chapitre présente une déclinaison, dans le domaine de la détection à base de matériaux semi-conducteurs, du schéma de comptage neutronique introduit dans le Chapitre V. Le capteur sensible au rayonnement neutronique et le capteur dédié à la compensation de la radioactivité de fond sont constitués d'un détecteur semi-conducteur, ici un cristal de CdZnTe de 500 mm^3 . Ce cristal autorise un dépôt d'énergie significatif des produits de réaction à basse énergie des captures radiatives $^{157}\text{Gd}(n, \gamma)$ et $^{155}\text{Gd}(n, \gamma)$, qui ont lieu dans la couverture du capteur de détection.

Les résultats de la première campagne de tests réalisée sur le capteur corroborent ceux du Chapitre V obtenus avec un scintillateur dopé au bismuth :

- réjection d'une ambiance de césium 137 de débit de dose compatible avec la définition d'une zone contrôlée ;
- détection d'une activité neutronique associée à une source de californium 252 modérée par un bloc PEHD ;
- détection qui est supprimée lorsque la modération est associée à une absorption par le bore des neutrons thermiques.

Les taux de comptage sont plus élevés que ceux relevés au Chapitre V, en raison des probabilités d'effets photoélectriques et Compton supérieures dans le cristal, sélectionné pour sa densité et le numéro atomique élevé de ses constituants. Cette élévation a autorisé le réglage du test d'hypothèse avec un facteur d'élargissement de $t_K = 4,4$ au lieu de $t_K = 1,96$,

consolidant ainsi les résultats. Les propriétés spectroscopiques du cristal semi-conducteur ont, en outre, permis de corrélérer le taux de comptage résiduel après compensation à certains pics attendus après capture dans le gadolinium et le cadmium. La précision reste toutefois largement améliorable du fait de la résolution de la chaîne. L'estimation de la sensibilité aux neutrons thermiques d'une cellule élémentaire, à deux capteurs compensés, atteint le même ordre de grandeur que celle calculée pour les scintillateurs dopés du Chapitre III, soit environ 1 cps/nv. Cet ordre de grandeur, voisin des sensibilités neutroniques affichées par le compteur à hélium 3 de plus faible volume actif (2,8 cm³) utilisé dans la comparaison à l'art du Chapitre III, paragraphe X.1, confirme le potentiel de sensibilité du schéma de comptage. Ce schéma est, de surcroît, compatible avec la contrainte d'opérabilité en ligne, ce qui n'est pas le cas des schémas de détection fondés sur la seule identification *a posteriori* des pics caractéristiques, tels que présentés par exemple par Kandlakunta *et al.* [VII.12].

La Partie IV décrit l'optimisation par simulation Monte Carlo de l'épaisseur du convertisseur de gadolinium, pour un capteur de CdZnTe de dimensions fixées. Le dimensionnement d'une cellule élémentaire optimisée, au regard d'une part de l'amplitude de la signature dans le cristal et d'autre part du courant de fuite dans ce dernier, est donc la première perspective de travail ouverte par ce chapitre.

La surface active du capteur final envisagé, sur la base de la modélisation présentée dans les Parties IV et V et de l'étude expérimentale de principe détaillée dans la Partie VIII, est, par ailleurs, une fonction de la surface de gadolinium mise en œuvre dans la couverture. Une fois une cellule élémentaire duale (gadolinium et terbium) dimensionnée, l'efficacité de détection atteignable par une structure matricielle permettra de déterminer la compétitivité du schéma de comptage neutronique. Cette structure matricielle sera constituée d'un assemblage de cellules duales, dont l'efficacité résultante sera à confronter au coût primaire des capteurs et à la complexité de réalisation.

Le coût de réalisation est un paramètre critique dans l'attractivité du système. En outre, le schéma de détection met en œuvre, non l'identification des pics, mais un taux de comptage compensé. La contrainte portant sur les propriétés spectroscopiques du cristal pourra, par conséquent, être relâchée, au profit d'un capteur moins onéreux. L'étude du principe sera donc, par la suite, conduite sur des détecteurs à base de silicium. Enfin, la fiabilité de la compensation est directement corrélée à l'épaisseur et au degré de pureté des couvertures, ici encadrés par les incertitudes obtenues auprès des fournisseurs. Un procédé de dépôt du gadolinium et du terbium sur les cristaux semi-conducteurs, autorisant la définition la plus précise possible de ces paramètres, devra par conséquent être mis au point.

Références du Chapitre VII :

[VII.1] A. G. Vradii, M. I. Krapivin, L. V. Maslova, O. A. Matseev, A. K. Khusainov, V. K. Sharushin, "Possibilities of recording thermal neutrons with cadmium telluride detectors", *Soviet Atomic Energy*, Vol. 42, Iss. 1, pp. 64-66 (1977).

[VII.2] A. D. Carlson, V. G. Pronyaev, D. L. Smith, N. M. Larson, Z. Chen, G. M. Hale, F.-J. Hamsch, E. V. Gai, S.-Y. Oh, S. A. Badikov, T. Kawano, H. M. Hofmann, H. Vonach, S. Tagesen, "International Evaluation of Neutron Cross Section Standards", *Nuclear Data Sheets*, Vol. 110, Iss. 12, pp. 3215-3324 (2009).

- [VII.3] M. Fasasi, M. Jung, P. Siffert, C. Teissier, “Thermal neutron dosimetry with cadmium telluride detectors”, *Radiation Protection Dosimetry*, Vol. 23, pp. 429-431 (1988).
- [VII.4] A. Miyake, T. Nishioka, S. Singh, H. Morii, H. Mimura, T. Aoki, “A CdTe detector with a Gd converter for thermal neutron detection”, *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research A*, Vol. 654, pp. 390-393 (2011).
- [VII.5] S. Del Sordo, L. Abbene, E. Caroli, A. M. Mancini, A. Zappettini, P. Ubertino, “Progress in the development of CdTe and CdZnTe Semiconductor Radiation Detectors for Astrophysical and Medical Applications”, *Sensors*, Vol. 9, pp. 3491-3526 (2009).
- [VII.6] V. Ivanov, P. Popov, A. Loutchansky, L. Aleksejeva, E. Mozchaev, “Further Development of Hemispherical CdZnTe Detectors for Safeguards Applications”, *Proceedings of 21th Annual ESARDA Symposium on Safeguards and Nuclear Material Management*, pp. 479-484 (1999).
- [VII.7] D. S. Bale, C. Szeles, “Design of High Performance CdZnTe Quasi-Hemispherical Gamma-ray CAPture™ Plus Detectors”, *Proceedings of SPIE*, Vol. 6319 (2006).
- [VII.8] D. S. McGregor, J. T. Lindsay, R. W. Olsen, “Thermal neutron detection with cadmium_{1-x} zinc_x telluride semiconductor detectors”, *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research A*, Vol. 381, pp. 498-501 (1996).
- [VII.9] <http://www.ritec.lv/files/czt500/czt500manual.pdf>
- [VII.10] K. Boudergui, V. Kondrasovs, “New CZT handled spectrometer”, *Proceedings of ANIMMA* (2015).
- [VII.11] W. T. Elam, B. D. Ravel, J. R. Sieber, “A new atomic database for X-ray spectroscopic calculations”, *Radiation Physics and Chemistry*, Vol. 63, Iss. 2, pp. 121-128 (2002).
- [VII.12] P. Kandlakunta, L.R. Cao, P. Mulligan, “Measurement of internal conversion electrons from Gd neutron capture”, *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research A*, Vol. 705 pp. 36-41 (2013).

SECTION C :

DETECTION DE RAYONNEMENTS PAR TRANSITION DE PHASE MAGNETIQUE DANS LE GADOLINIUM

CHAPITRE VIII : ETUDE DE FAISABILITE SUR UNE DETECTION NEUTRONIQUE PAR TRANSITION DE PHASE MAGNETIQUE DANS LE GADOLINIUM

Outre une section efficace d'interaction avec les neutrons thermiques et une exothermie de l'ordre de la dizaine de MeV associée aux réactions de capture radiative des neutrons, le gadolinium présente la propriété d'être un matériau ferromagnétique, exceptionnel pour sa forte aimantation. La température de Curie, notée T_c , caractéristique de la transition entre l'état ferromagnétique et l'état paramagnétique du gadolinium est, de surcroît, voisine de la température ambiante, la littérature faisant état de l'encadrement $289 \text{ K} \leq T_c \leq 293 \text{ K}$ [VIII.1, VIII.2]. Ce chapitre a pour objet d'étudier, après une description macroscopique du comportement magnétique du gadolinium, la perturbation potentielle de ce comportement, à proximité du point de Curie (puisque l'opérabilité à température ambiante de tout schéma de détection proposé dans les travaux de cette thèse est une contrainte définie dès l'Introduction), suite à la capture d'un neutron thermique. Il s'agit notamment de s'interroger sur la mesurabilité d'une telle perturbation, au regard de son amplitude, de sa localisation et de sa cinétique, de façon à déterminer la faisabilité d'une détection neutronique fondée sur son apparition.

PARTIE I : Modèle phénoménologique de Weiss du gadolinium magnétique

Les matériaux à l'état *ferromagnétique* [VIII.3] sont caractérisés par l'existence, dans des domaines de taille réduite, d'une *aimantation spontanée*, notée M_s , c'est-à-dire d'un ordre magnétique local en l'absence de champ extérieur. Si les matériaux ferromagnétiques ne produisent pas d'aimantation mesurable en l'absence de champ, c'est parce que les différents domaines du matériau sont alors distribués selon des directions différentes, si bien que leurs contributions se somment macroscopiquement à zéro ou près. La température T_c , dite *température de Curie*, est définie comme la température pour laquelle l'aimantation spontanée s'annule, ce qui définit l'état *paramagnétique* du matériau. Ainsi le modèle original de Weiss décrit, hors champ appliqué, une organisation de la matière ferromagnétique en domaines discrets, au sein desquels les moments magnétiques associés à chaque atome sont identiques. L'aimantation spontanée $M_s(T)$ associée à chacun de ces domaines est fonction de la température ; elle est postulée égale pour tous les domaines en module, mais variable en direction et sens. En présence d'une induction extérieure suffisante, les domaines de Weiss dont l'aimantation est colinéaire au champ extérieur croissent au détriment des autres, si bien que l'aimantation résultante devient constante dans chaque volume découpé au sein du matériau.

L'alignement des moments à l'intérieur d'un domaine magnétique, en l'absence de champ extérieur, est décrit dans le modèle phénoménologique de Weiss comme résultant d'un champ magnétique interne au matériau, dit *champ moléculaire de Weiss* et noté H_m . Le modèle d'alignement des moments magnétiques sous l'action du champ moléculaire est fondé sur une analogie avec le modèle d'alignement des moments magnétiques en régime paramagnétique sous l'influence d'un champ extérieur H_{ext} , détaillé dans le paragraphe 1 ci-dessous.

1. *Modèle statistique du gadolinium paramagnétique*

Le spin S d'une particule [VIII.4] est défini comme l'observable quantique représentant le moment cinétique dit propre ou intrinsèque de la particule, par opposition à son moment cinétique orbital. La mesure du spin est quantifiée selon une direction donnée et soumise au principe d'incertitude. Par analogie avec la définition du moment cinétique orbital, on peut construire, pour l'opérateur quantique de spin $\hat{\mathcal{S}}$, une base de vecteurs propres $|s, m_s\rangle$, où le nombre quantique de spin s est un entier ou demi-entier de signe positif et m_s un entier ou demi-entier prenant l'une de ses $2s + 1$ valeurs possibles dans l'intervalle : $-s \leq m_s \leq s$. Le concept quantique de spin intéresse la théorie du magnétisme dans la mesure où cette dernière associe au *moment cinétique de spin* $\hbar S$ (\hbar étant la constante de Planck normalisée) d'une particule de masse m et de charge q , un *moment magnétique* qui lui est proportionnel :

$$\mu_s = \frac{gq}{2m} \hbar S \quad (\text{VIII. 1})$$

où g est le dit *facteur de Landé* de la particule et $\frac{q}{2m}$ son *rapport gyromagnétique*.

Il est utile de définir, pour les faibles ordres de grandeur des moments à l'échelle de l'électron, voire de l'atome, une unité fondamentale pour le moment magnétique des particules élémentaires, connue comme le *magnéton de Bohr* μ_B et dérivée à partir de l'Equation (VIII.1) appliquée à l'électron, avec les paramètres $q = e, g = g_e = 2, m = m_e, |S| = \frac{1}{2}$, selon :

$$\mu_B = \frac{e\hbar}{2m_e} \quad (\text{VIII. 2})$$

Le moment cinétique total porté par un électron dans un atome, noté $\hbar J$, est alors calculé comme la somme de son moment cinétique de spin $\hbar S$ et de son moment cinétique orbital $\hbar L$:

$$\hbar J = \hbar S + \hbar L \quad (\text{VIII. 3})$$

La théorie quantique du paramagnétisme pose initialement un *spin* unique, isolé, c'est-à-dire sans interaction avec les spins voisins, et plongé dans une induction extérieure homogène $\mathbf{B}_{ext} = \mu_0 \mathbf{H}_{ext}$. Pour ce spin isolé, toute composante du moment magnétique est quantifiée ; ainsi, par exemple, la composante μ_z du moment magnétique selon la direction de l'induction B_{ext} , prend ses valeurs explicites sous la forme :

$$\mu_z = m_{j, j \in \llbracket 1; 2J+1 \rrbracket} g_j \mu_B \quad (\text{VIII. 4})$$

où le *nombre quantique principal* J est un nombre demi-entier, g_j est le facteur de Landé de l'atome (fonction de J), le *nombre quantique azimutal* m_j prend ses valeurs par pas demi-entier parmi les $2J + 1$ possibilités : $-J \leq m_{j, j \in \llbracket 1; 2J+1 \rrbracket} \leq J$. Le moment magnétique porté par le spin possède dès lors également $2J + 1$ valeurs discrètes possibles, détaillées dans l'Equation (VIII.4).

Enfin, l'énergie potentielle V associée à un moment magnétique $\boldsymbol{\mu}$ plongé dans une induction extérieure \mathbf{B}_{ext} est calculée par le produit scalaire :

$$V = -\boldsymbol{\mu} \cdot \mathbf{B}_{ext} = -\mu_z B_{ext} = -m_j g_J \mu_B B_{ext}, -J \leq m_j, j \in \llbracket 1; 2J+1 \rrbracket \leq J \quad (\text{VIII.5})$$

d'après la définition de μ_z donnée ci-dessus.

Il vient par conséquent que l'énergie potentielle V prend également sa valeur parmi $2J + 1$ possibilités, en fonction de m_j : chacune de ces valeurs correspond à l'un des niveaux d'énergie potentielle magnétique accessibles au spin isolé. En l'absence d'induction extérieure, les niveaux se confondent tous au potentiel $V = 0$. Ainsi, une induction extérieure non nulle a pour effet de dissocier les niveaux d'énergie accessibles à une particule isolée de spin non nul ; ce phénomène est connu sous le nom de *dissociation de Zeeman* (*Zeeman splitting* en anglais). L'expression de l'énergie potentielle décrite par l'Equation (VIII.5) est minimale lorsque $m_j = J$, étant alors égale à $V = -J g_J \mu_B B_{ext}$: cette valeur correspond à la minimisation de l'angle entre les vecteurs $\boldsymbol{\mu}$ et \mathbf{B}_{ext} . Il reste donc à préciser ce modèle pour le cas particulier du gadolinium paramagnétique.

Le gadolinium, de numéro atomique $Z = 64$, appartient aux *terres rares*, groupe formé par les lanthanides (éléments de numéro atomique compris entre 57 à 71), auquel on adjoint l'yttrium et le scandium. Le gadolinium est, parmi les lanthanides, une terre rare ferromagnétique dont la sous-couche f est porteuse de 7 électrons non-appariés [VIII.5] ; ses constantes magnétiques sont données par : $S = \frac{7}{2}$, $L = 0$, $J = \frac{7}{2}$. Ainsi, la composante μ_z du moment magnétique selon l'induction extérieure \mathbf{B}_{ext} n'a que 8 valeurs possibles, de même que l'énergie potentielle associée, dont les niveaux possibles sont notés V_j , avec $j \in \llbracket 1; 8 \rrbracket$, et directement liés aux valeurs de m_j . Deux niveaux d'énergie adjacents, numérotés j et $j + 1$, sont dès lors séparés par la différence de potentiel $\Delta V = g_J \mu_B B_{ext}$.

Comment dès lors expliquer qu'en présence d'une induction extérieure non nulle, l'alignement parfait de tous les spins du système paramagnétique sur cette induction ne soit pas réalisé, puisque ce dernier minimise l'énergie potentielle dérivée à l'Equation (VIII.5) ? De même que la perturbation aléatoire et continue de la position des atomes dans un réseau cristallin, physiquement associée à une variation d'énergie cinétique, est modélisée par un paramètre moyen appelé *température de réseau* ou *température de phonons* (c'est-à-dire une mesure de l'*agitation thermique*), notée T_p (ou simplement T à l'équilibre de toutes les températures du système), on modélise la perturbation aléatoire et continue du spin des atomes d'un système magnétique par une température [VIII.6], dite *température de spins* et notée T_s , physiquement associée à une variation de l'énergie potentielle V . Ainsi, dans le cas qui nous occupe, l'énergie de perturbation spinique du système est quantifiée sous la forme moyenne $k_B T_s$, où k_B est la constante de Boltzmann. En présence d'une induction extérieure $B_{ext} \neq 0$ et pour une agitation thermique non nulle, c'est-à-dire pour $T_s > 0$, tous les spins du système paramagnétique n'occupent donc pas le niveau de plus basse énergie potentielle V_8 , mais des transitions inter-niveaux sont observées. A la faveur de ces transitions, les huit niveaux d'énergie potentielle $V_{j, j \in \llbracket 1; 8 \rrbracket}$ définis pour le gadolinium se voient chacun associer une probabilité d'occupation non nulle $P_{j, j \in \llbracket 1; 8 \rrbracket}$.

En notant N le nombre total de spins par unité de volume du système paramagnétique considéré, les probabilités $P_{j, j \in \llbracket 1; 8 \rrbracket}$ sont calculées à partir du nombre de spins présents dans

chacun des niveaux de potentiel par unité de volume $N_{j,j \in \llbracket 1; 8 \rrbracket}$. Le modèle mathématique appliqué à un tel système est celui d'une distribution stochastique de Boltzmann discrète [VIII.7] à huit niveaux d'occupation sans dégénérescence : la probabilité P *a priori* du macro-état $\{\forall j \in \llbracket 1; 8 \rrbracket, N_j = n_j\}$ étant donnée par la fonction de huit variables :

$$P = \frac{N!}{\prod_{j=1}^8 n_j!} \quad (\text{VIII. 6})$$

A cette fonction de probabilité macroscopique est associé un jeu de conditions aux limites, représenté par les Equations (VIII.7) et (VIII.8), et permettant d'en calculer la valeur :

$$\sum_{j=1}^8 n_j = N \quad (\text{VIII. 7})$$

$$\sum_{j=1}^8 n_j V_j = V \quad (\text{VIII. 8})$$

où V est défini comme le potentiel total du système paramagnétique. Dans le modèle de la distribution de Boltzmann, le système occupera finalement le macro-état maximisant la fonction décrite dans l'Equation (VIII.6), ou, ce qui est équivalent dans la mesure où les $n_{j,j \in \llbracket 1; 8 \rrbracket}$ sont tous strictement positifs à $T_s > 0$, maximisant la fonction :

$$\ln(P) = \ln(N!) - \sum_{j=1}^8 \ln(n_j!) \quad (\text{VIII. 9})$$

Le calcul montre [VIII.7] que la probabilité d'occupation P_j de chacun des 8 niveaux d'énergie potentielle par un spin donné s'exprime alors sous la forme explicite :

$$\forall j \in \llbracket 1; 8 \rrbracket, P_j = P(m_j) = \frac{e^{m_j x}}{\sum_{j=1}^8 e^{m_j x}} \quad (\text{VIII. 10})$$

où l'on a défini $x = \frac{g_j \mu_B B_{ext}}{k_B T_s}$. Notons que, conformément à l'intuition, plus l'énergie d'agitation thermique de spin $k_B T_s$ est élevée, plus les probabilités d'occupation des différents niveaux se rapprochent de l'égalité.

En remontant à présent au système paramagnétique considéré dans sa totalité, la valeur moyenne du nombre quantique azimutal gouvernant le moment magnétique et l'énergie potentielle magnétique est calculé par la fonction d'espérance mathématique :

$$\langle m_j \rangle = \sum_{j=1}^8 m_j P(m_j) = \frac{\sum_{j=1}^8 m_j e^{m_j x}}{\sum_{j=1}^8 e^{m_j x}} \quad (\text{VIII. 11})$$

de laquelle est déduite, d'après l'Equation (VIII.4), la valeur moyenne du moment magnétique selon l'induction extérieure :

$$\langle \mu_z \rangle = g_J \mu_B \langle m_j \rangle = g_J \mu_B \frac{\sum_{j=1}^8 m_j e^{m_j x}}{\sum_{j=1}^8 e^{m_j x}} = g_J \mu_B \frac{d}{dx} \left[\sum_{j=1}^8 m_j e^{m_j x} \right] \quad (\text{VIII. 12})$$

En utilisant les valeurs aux bornes de la somme $m_1 = -J$ et $m_8 = J$, et en réécrivant la somme discrète de fonctions exponentielles sous la forme d'un quotient de fonctions sinus hyperboliques, on obtient :

$$\begin{aligned} \langle \mu_z \rangle &= g_J \mu_B \frac{d}{dx} \left[\sum_{j=1}^8 m_j e^{m_j x} \right] = g_J \mu_B \frac{d}{dx} \left[\frac{\sinh \left((2J+1) \frac{x}{2} \right)}{\sinh \left(\frac{x}{2} \right)} \right] \\ \langle \mu_z \rangle &= g_J \mu_B J \left[\frac{2J+1}{2J} \coth \left((2J+1) \frac{x}{2} \right) - \frac{1}{2J} \coth \left(\frac{x}{2} \right) \right] \quad (\text{VIII. 13}) \end{aligned}$$

Par définition de l'aimantation vectorielle \mathbf{M} comme la moyenne des moments magnétiques sur un volume déterminé, en gardant N égal au nombre de spins par unité de volume, la composante de l'aimantation M_z selon la direction de l'induction extérieure est donc égale à :

$$M_z = N \langle \mu_z \rangle = N g_J \mu_B J B_J \left(\frac{g_J \mu_B B_{ext} J}{k_B T_s} \right) \quad (\text{VIII. 14})$$

où B_J est *fonction de Brillouin* prenant ses valeurs dans l'intervalle réel $[-1 ; 1]$ et définie d'après l'Equation (VIII.13) par :

$$\forall y \in [0, +\infty], B_J(y) = \frac{2J+1}{2J} \coth \left(\frac{(2J+1)}{2J} y \right) - \frac{1}{2J} \coth \left(\frac{y}{2J} \right) \quad (\text{VIII. 15})$$

Ainsi l'Equation (VIII.14), étudiée comme une fonction de T_s , représente la transition entre une configuration de spins purement aléatoire, équivalente à une température de spins infinie et définie par $B_J(0) = 0$, et l'alignement maximal du système paramagnétique suivant l'induction extérieure \mathbf{B}_{ext} , équivalent à une température de spins nulle et défini par $\lim_{y \rightarrow +\infty} B_J(y) = 1$.

2. Modèle phénoménologique de Weiss appliqué au gadolinium ferromagnétique

Ainsi qu'énoncé dans l'introduction à cette partie, le modèle phénoménologique de Weiss représente l'aimantation spontanée et homogène de chaque domaine d'un matériau ferromagnétique, ici le gadolinium, et en l'absence de toute induction extérieure, de façon analogue à l'aimantation d'un système paramagnétique en présence d'un champ magnétique extérieur équivalent. Le *champ moléculaire interne* du matériau magnétique [VIII.8], qui modélise l'origine de l'alignement des spins, est noté \mathbf{H}_m et construit selon une analogie avec le champ dit *de Lorentz*, c'est-à-dire d'amplitude proportionnelle à celle de l'aimantation

spontanée M_s ; ainsi, en projection selon la direction z du champ moléculaire, le champ s'écrit :

$$H_m = N_W M_{s,z} \quad (\text{VIII. 16})$$

où la *constante de champ moléculaire* N_W a été empiriquement déterminée par Weiss : $N_W \sim 340$. Par analogie avec le modèle statistique du paramagnétisme détaillé dans le paragraphe 1 ci-dessus, l'aimantation spontanée selon la direction du champ moléculaire s'écrit donc, en reprenant les notations de l'Equation (VIII.14) et en fonction de la température de spins T_s :

$$M_{s,z}(T_s) = N g_J \mu_B J B_J \left(\frac{g_J \mu_B \mu_0 J}{k_B T_s} N_W M_{s,z}(T_s) \right) \quad (\text{VIII. 17})$$

où l'induction extérieure B_{ext} a été remplacée par l'induction interne $\mu_0 H_m = \mu_0 N_W M_{s,z}$.

L'Equation (VIII.17) est non linéaire en $M_{s,z}(T_s)$ et peut être résolue numériquement point par point. L'Equation (VIII.17) se généralise en présence d'une induction extérieure non nulle $B_{ext} = \mu_0 H_{ext}$ en introduisant un champ effectif total, somme du champ extérieur et du champ moléculaire interne ; ainsi en projection selon z :

$$H_{eff,z} = H_{ext,z} + N_W M_{s,z}(T_s) \quad (\text{VIII. 18})$$

En faisant tendre la température vers la limite $T_s \rightarrow 0$ dans les deux membres de l'Equation (VIII.17), l'aimantation spontanée à température nulle est quantifiée selon :

$$M_{s,z}(0) = N g_J \mu_B J \quad (\text{VIII. 19})$$

L'équation de définition de l'aimantation résultante selon la direction de mesure, en présence d'une induction extérieure, est ainsi mise sous forme compacte par combinaison des Equations (VIII.14), (VIII.18) et (VIII.19) :

$$M_z(T_s) = M_{s,z}(0) B_J \left(\frac{g_J \mu_B \mu_0 J}{\mu_B T_s} (H_{ext} + N_W M_z(T_s)) \right) \quad (\text{VIII. 20})$$

La courbe caractéristique de l'aimantation M_z en fonction de la température T_s , obtenue par résolution numérique de l'Equation (VIII.20) au moyen du logiciel commercial Matlab[®] (fonction *fsolve*), avec un pas en température $\Delta T_s = 1$ K, sous des inductions extérieures $B_{ext,1} = 0,1$ T et $B_{ext,2} = 2$ T, est reproduite sur la Figure VIII.1.

Les caractéristiques obtenues par application du modèle phénoménologique de Weiss, selon le développement ci-dessus, permet de calculer, au voisinage de la température de Curie, ici prise égale à $T_c = 292$ K, les taux de variation $\frac{\Delta M_z}{\Delta T_s} \sim -2 \cdot 10^{-4}$ A.m⁻¹.K⁻¹ sous $B_{ext,1} = 0,1$ T et $\frac{\Delta M_z}{\Delta T_s} \sim -10^{-4}$ A.m⁻¹.K⁻¹ sous $B_{ext,2} = 2$ T, en bon accord avec les caractéristiques dressées par Aprea *et al.* [VIII.9], desquelles sont extraits les taux de variation

$\frac{\Delta M_z}{\Delta T_s} \sim -4 \cdot 10^{-4} \text{ A} \cdot \text{m}^{-1} \cdot \text{K}^{-1}$ pour $B_{ext,1} \rightarrow 0 \text{ T}$ et $\frac{\Delta M_z}{\Delta T_s} \sim -1,5 \cdot 10^{-4} \text{ A} \cdot \text{m}^{-1} \cdot \text{K}^{-1}$ sous $B_{ext,2} = 2 \text{ T}$.

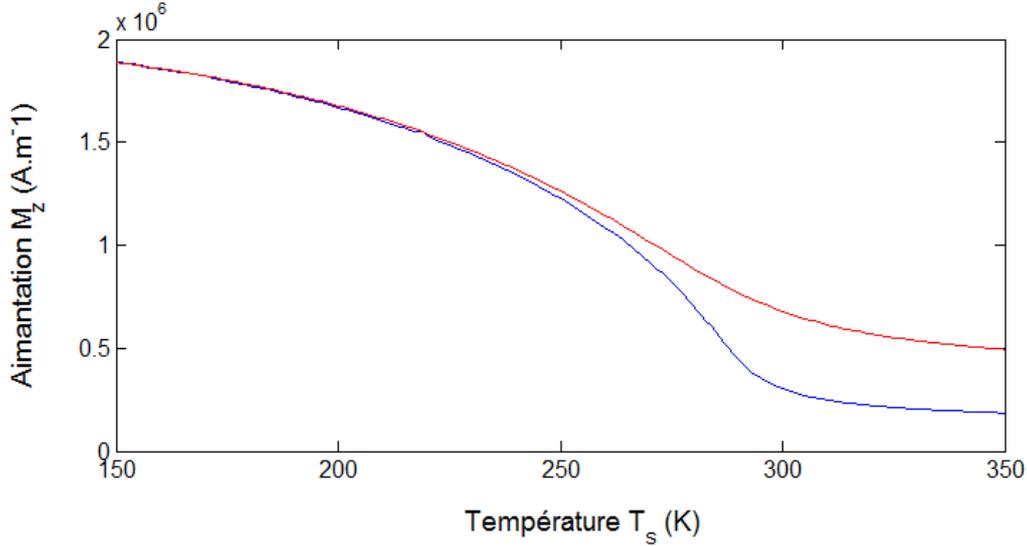


Figure VIII.1 : Modèle de Weiss de l'aimantation du gadolinium en fonction de la température sous $B_{ext,1} = 0,1 \text{ T}$ (bleu) et $B_{ext,2} = 2 \text{ T}$ (rouge).

PARTIE II : Modèle macroscopique de perturbation des propriétés magnétiques du gadolinium

Le modèle phénoménologique de Weiss appliqué au gadolinium dans la Partie I, paragraphe 2, met en évidence, à induction extérieure fixée B_{ext} , la dépendance de l'aimantation mesurée en la température du système de spins. La variation locale et transitoire de cette température, induite par un rayonnement donné et notée $\Delta T_s(r, t)$, est dès lors susceptible d'induire une variation de l'aimantation mesurée, notée $\Delta M_z(r, t)$, particulièrement abrupte au voisinage de la température de Curie, qui se situe à l'ambiante. Le modèle le plus simple tendant à fournir des ordres de grandeur prévisionnels sur l'amplitude et la cinétique de la variation d'aimantation est fourni par l'équation linéarisée [VIII.10] :

$$\frac{dM_z(r, t)}{dt} = \frac{-M_{transitoire,z}(r, t) - M_z(r, t)}{\tau} \quad (\text{VIII. 21})$$

où l'aimantation locale transitoire $M_{transitoire,z}$ est reliée à la température de spins par l'Equation (VIII.20) : $M_{transitoire,z}(r, t) = M_z(T_s(r, t))$. La constante de temps τ qui gouverne la cinétique de la variation est un paramètre macroscopique qui dépend du champ magnétique extérieur appliqué au système ferromagnétique [VIII.11], et varie typiquement entre 1 et 10 ns [VIII.12].

Les différents modèles de couplage des températures introduites pour rendre compte de la perturbation des systèmes électronique, spinique et du réseau d'un volume donné de matière de gadolinium [VIII.13, VIII.14], ainsi que les études expérimentales [VIII. 15], convergent vers des constantes de temps de couplage comprises entre 20 et 100 ps ; l'équilibre des températures sera donc considéré comme instantané aux échelles de temps qui intéressent

cette étude, sur la base de l'ordre de grandeur défini pour la constante τ . L'expression de l'aimantation transitoire introduite dans l'Equation (VIII.21) est alors simplement donnée par $M_{transitoire,z}(r, t) = M_z(T(r, t))$, où l'élévation locale et transitoire de température $\Delta T(r, t)$ sur le parcours du rayonnement est calculée à partir des paramètres caractéristiques de la maille du gadolinium, notamment de la *capacité thermique* ou *calorifique*.

La première étape dans l'étude de faisabilité d'une détection neutronique fondée sur l'aimantation transitoire induite par la désexcitation d'un noyau de gadolinium, après capture d'un neutron thermique, consiste ainsi à évaluer l'ordre de grandeur maximal attendu pour $\Delta T(r, t)$ sur la trace des produits des réactions de capture décrits dans le Chapitre I.

PARTIE III : Etude préliminaire sur la faisabilité d'une détection neutronique

Afin d'extraire de premiers ordres de grandeur sur la variation de température ΔT induite dans une masse m de gadolinium métallique, initialement à la température d'équilibre de Curie T_c , par l'énergie déposée E_d d'un produit de réaction de capture radiative tel que représenté dans les Equations (0.5) et (0.6), un modèle simplifié de thermodynamique statistique est mis en œuvre. Soit U l'énergie interne du système de gadolinium avant le dépôt d'énergie E_d . Le détecteur n'étant jamais parfaitement isolé, il échange en permanence de l'énergie sous forme thermique avec son environnement, échange dont l'influence est modélisée par un écart-type de variation de l'énergie interne $\sigma(U)$. En introduisant la *capacité thermique massique* du gadolinium à la température de Curie, notée $c_m(T_c)$ et exprimée en $\text{eV.kg}^{-1}.\text{K}^{-1}$, l'écart-type est mis sous la forme explicite [VIII.16] :

$$\sigma(U) = \sqrt{k_B T_c^2 m c_m(T_c)} \quad (\text{VIII. 22})$$

où $k_B = 8,61722 \cdot 10^{-5} \text{ eV.K}^{-1}$ est la constante de Boltzmann. Ce dernier écart-type représente la limite intrinsèque de détection en énergie d'un bolomètre classique. En posant $\Delta U = E_d$ la variation d'énergie interne induite par le dépôt énergétique de la particule émise *via* la désexcitation d'un noyau de gadolinium après capture neutronique, le rapport signal sur bruit exprimé en fonction de l'énergie interne, noté RSB , est calculé selon :

$$RSB = \frac{\Delta U}{\sigma(U)} = \frac{E_d}{\sqrt{k_B T_c^2 m c_m(T_c)}} = \frac{E_d}{T_c \sqrt{k_B m c_m(T_c)}} \quad (\text{VIII. 23})$$

La variation de température transitoire induite par le dépôt énergétique sur une masse m de gadolinium est alors exprimée sous la forme :

$$\Delta T = \frac{\Delta U}{m c_m(T_c)} = \frac{E_d}{m c_m(T_c)} \quad (\text{VIII. 24})$$

L'écart-type au voisinage de la température T_c , noté $\sigma(T_c)$, est quant à lui directement lié à l'écart-type de variation $\sigma(U)$ selon :

$$\sigma(T_c) = \frac{\sqrt{k_B T_c^2 m c_m(T_c)}}{m c_m(T_c)} = T_c \sqrt{\frac{k_B}{m c_m(T_c)}} \quad (\text{VIII. 25})$$

L'étude préliminaire se base sur le scénario de désexcitation et d'atténuation du terme source le plus favorable selon la discussion du Chapitre I, donnant lieu à l'émission d'un électron emportant la totalité de la Q-value moyenne d'une capture radiative de neutron thermique dans le gadolinium naturel, voisine de 8 MeV. Le gadolinium est modélisé sous la forme d'une bille pleine, de densité $\rho = 7901 \text{ kg} \cdot \text{m}^{-3}$ et de capacité thermique massique $c_m(T_c) = 1,4375 \cdot 10^{17} \text{ eV} \cdot \text{kg}^{-1} \cdot \text{K}^{-1}$, le rayon r gouvernant la masse m du matériau étant la variable de l'étude.

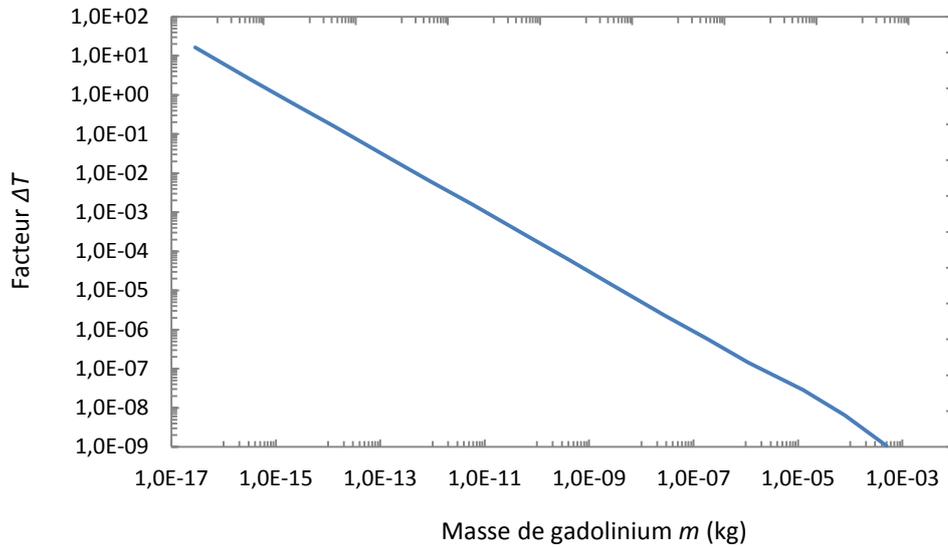


Figure VIII.2 : Evolution du facteur ΔT en fonction de la masse m de gadolinium.

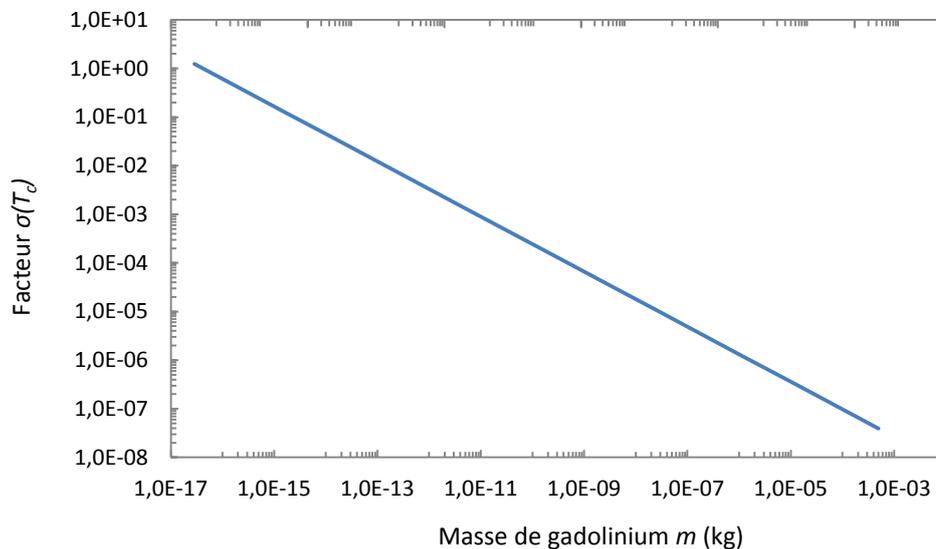


Figure VIII.3 : Evolution du facteur $\sigma(T_c)$ en fonction de la masse m de gadolinium.

Un terme source électronique d'énergie égale à 8 MeV est généré au moyen du code MCNPX2.6.0, selon une distribution homogène et une émission isotrope à l'intérieur de la bille de masse m . Le tally 8, dédié à l'évaluation des dépôts d'énergie, fournit alors un spectre d'énergie déposée par génération du terme source, *via* lequel, par calcul de l'aire sous le spectre, l'énergie moyenne déposée dans le gadolinium E_d par électron source généré est estimée. L'évolution des facteurs de mérite ΔT , $\sigma(T_c)$ et RSB , calculés selon les

Equations (VIII.22) à (VIII.24), en fonction de la masse m de gadolinium modélisée, est représentée sur les Figures VIII.2, VIII.3 et VIII.4 respectivement.

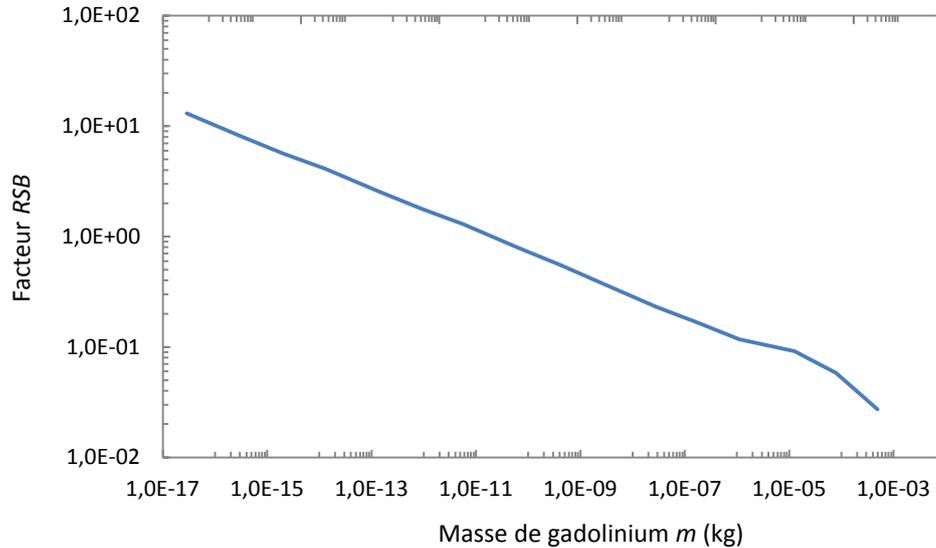


Figure VIII.4 : Evolution du facteur RSB en fonction de la masse m de gadolinium.

L'évolution du RSB telle qu'illustrée sur la Figure VIII.4 permet l'identification d'une masse maximale de gadolinium $m \sim 100$ pg donnant accès à une valeur de $RSB > 3$. Cette masse, extrêmement faible, étant de plus obtenue pour le cas très favorable d'un électron secondaire porteur de l'ensemble du Q de réaction, l'étude préliminaire décrite dans ce paragraphe a été conclue par une non-faisabilité, si bien que la piste d'une détection des neutrons thermiques capturés dans le gadolinium, fondée sur une perturbation des propriétés magnétiques de ce dernier à température ambiante, a été abandonnée dans le cadre de cette thèse.

CONCLUSION DU CHAPITRE ET PERSPECTIVES

Ce chapitre décrit une première étude de faisabilité portant sur la détection des neutrons thermiques capturés dans un volume donné de gadolinium *via* la modification, locale et transitoire, des propriétés magnétiques du gadolinium au voisinage de sa température de Curie, laquelle possède la caractéristique remarquable d'être à l'ambiante. Un modèle macroscopique reliant l'aimantation du matériau à sa température a été introduit, puis l'évolution locale de la température induite par un terme source représentatif d'une signature favorable, prenant la forme d'un rayonnement directement ionisant d'énergie égale à la Q -value de la réaction, a été comparée à l'écart-type de fluctuation d'énergie interne du même volume de matière à température ambiante. La diminution drastique du rapport signal sur bruit, calculé en fonction de la masse de gadolinium modélisé, met en évidence une zone d'exploitabilité limitée à des masses extrêmement faibles, inférieures à 100 pg. Sur la base de cette étude préliminaire, il a été par conséquent conclu qu'un schéma couplant la capture neutronique à l'énergie thermique, c'est-à-dire la section efficace exceptionnellement élevée du gadolinium pour l'interaction avec les neutrons thermiques, et la transition de phase ferromagnétique-paramagnétique de ce même élément à température ambiante, ne présentait pas de faisabilité pratique.

L'évolution du bruit intrinsèque modélisé dans cette étude ne dépendant pas de la nature ni de l'énergie du rayonnement incident, ce modèle de premier ordre pourra être appliqué, dans des travaux laissés en perspective de cette thèse, à des rayonnements d'énergie plus élevée et possédant un transfert d'énergie linéique supérieur à celui d'un électron, tels que des protons ou des noyaux d'hélium, permettant ainsi de déterminer si la transition de phase magnétique du gadolinium seule possède un potentiel d'exploitabilité pour la détection de particules considérée dans sa généralité.

Références du Chapitre VIII :

- [VIII.1] W. C. Roe, *Measurements of the magnetic anisotropy of gadolinium*, Doctoral Thesis, Durham University, p. 4 (1961).
- [VIII.2] H.E. Nigh, S. Legvold, F. H. Spedding, "Magnetism and Electrical Resistivity of Gadolinium single Crystals", *Physics Review*, Vol. 132, Iss. 3, pp. 1092-1097 (1963).
- [VIII.3] E. du Trémolet de la Lacheisserie, *Magnétisme. I, Fondements*, Presses universitaires de Grenoble, EDP Sciences, pp. 96-99 (1999).
- [VIII.4] J.-L. Basdevant, J. Dalibard, M. Joffe, *Mécanique quantique*, Ed. Ecole Polytechnique, p. 249 (2002).
- [VIII.5] R. J. Weiss, *Physics of Materials*, Ed. Taylor & Francis, p. 284 (1990).
- [VIII.6] M. Goldman, "Overview of Spin Temperature, Thermal Mixing and Dynamic Nuclear Polarization", *Applied Magnetic Resonance*, Vol. 34, Iss. 3, pp. 219-226 (2008).
- [VIII.7] W. Greiner, L. Neise, H. Stöckner, *Thermodynamics and Statistical Mechanics*, Ed. Springer Science & Business Media, pp. 214-220 (2012).
- [VIII.8] A. Herpin, "Le champ moléculaire", *Journal de Physique Colloques*, Vol. 32, pp. 4-10 (1971).
- [VIII.9] C. Aprea, A. Maiorano, "A flexible numerical model to study an active magnetic refrigerator for near room temperature applications", *Applied Energy*, Vol. 87, pp. 2690-2698 (2010).
- [VIII.10] A. Kirilyuk, A. V. Kimel, T. Rasing, "Laser-induced magnetization dynamics and reversal in ferrimagnetic alloys", *Reports on Progress in Physics*, Vol. 76, N° 2, p. 26501 (2013).
- [VIII.11] F. Romanens, *Dynamique du retournement de l'aimantation dans les systèmes pour l'enregistrement magnétique : Imagerie magnéto-optique résolue en temps avec rayons X et radiation visible*, Thèse de doctorat, Université Joseph Fourier, p. 30 (2007).
- [VIII.12] N. D. Rizzo, T. J. Silva, A. B. Kos, "Relaxation Times for Magnetization Reversal in a High Coercivity Magnetic Thin Film", *Physical Review Letters*, Vol. 83, pp. 4876-4879 (1999).
- [VIII.13] B. Koopmans, G. Malinowski, F. Dalla Longa, D. Steiauf, M. Fähnle, T. Roth, M. Cinchetti, M. Aeschlimann, "Explaining the paradoxical diversity of ultrafast laser-induced demagnetization", *Nature Materials*, Vol. 9, pp. 259-265 (2010).
- [VIII.14] W. Hübner, K. H. Bennemann, "Simple theory for spin-lattice relaxation in metallic rare earth ferromagnets", *Physical Review B*, Vol. 53, pp. 3422-3427 (1996).

[VIII.15] A. Vaterlaus, T. Beutler, F. Meier, “Spin-Lattice Relaxation Time of Ferromagnetic Gadolinium Determined with Time-Resolved Spin-Polarized Photoemission”, *Physical Review Letters*, Vol. 67, p. 3314 (1991).

[VIII.16] Ch. Enss, *Cryogenic Particle Detection*, Topics in Applied Physics, Vol. 99, Ed. Springer, pp. 3-11 (2005).

CONCLUSION GENERALE ET PERSPECTIVES DE LA THESE

Le gadolinium présente, parmi les éléments naturels, la section efficace de réaction avec les neutrons thermiques la plus élevée, voisine de 49000 barns. L'énergie de 8 MeV, libérée par une réaction moyenne, est portée par des rayonnements gamma prompts et X, ainsi que des électrons de conversion interne et Auger de moins de 200 keV. La signature de ces produits de réaction dans le milieu de détection (plastique scintillant, solide semi-conducteur) donne dès lors accès à la détection et au comptage des neutrons incidents.

Le périmètre de ces travaux de thèse a été délimité autour de la mesure d'une activité neutronique typique des applications de détection de matières nucléaires spéciales et de radioprotection, en présence de débits de dose gamma bornés à $100 \mu\text{Sv.h}^{-1}$. L'objectif était d'étudier l'opérabilité de schémas de détection neutronique, fondés sur la signature des captures dans le gadolinium, à température ambiante et avec un temps de réponse devant être, à terme, de l'ordre de la minute.

L'étude des produits de réaction du gadolinium avec les neutrons thermiques, conduite dans le Chapitre I, a permis de dégager deux voies de mise en œuvre. La première vise à isoler de l'activité gamma, par compensation du bruit de fond, la signature à basse énergie (entre 20 keV et 200-300 keV, selon le capteur), portée par les raies gamma prompts et X, ainsi que les électrons de conversion interne. La seconde entend améliorer la sensibilité des détecteurs pour des comptages au-dessus d'un seuil à haute énergie, compris entre 2,6 MeV et 5-6 MeV, en tirant parti de la signature des produits gamma prompts les plus énergétiques. Ces deux pistes d'exploitation correspondent aux schémas de détection rencontrés dans l'état de l'art. Une dernière voie, s'appuyant sur la perturbation des propriétés magnétiques du gadolinium après capture et présentée dans le Chapitre VIII, a été écartée en raison du rapport signal sur bruit insuffisant pour des masses supérieures à la centaine de picogrammes.

L'étude des réactions de capture a mené à la définition de trois schémas de détection neutronique. Pour chacun de ces schémas, nous avons d'abord défini le principe, et notamment la signature des captures $\text{Gd}(n, \gamma)$ que l'on cherche à mettre en œuvre. Nous avons ensuite présenté le dimensionnement du détecteur par simulation Monte-Carlo. Sur la base des campagnes de mesure, nous avons établi de premières estimées de la sensibilité neutronique et de la limite de détection neutronique sur fond gamma. Nous avons également étudié la robustesse et, le cas échéant, les biais en présence de bruits de fond gamma d'énergies et de débits de dose divers. Les facteurs de mérite évalués pour les schémas les plus aboutis de cette thèse, ceux des Chapitres III, IV et VII, nous résumés dans le Tableau X.1.

Dans le premier schéma, qui fait l'objet du Chapitre III, des scintillateurs plastiques de volume centimétrique, dopés au gadolinium, sont compensés par des scintillateurs de même volume dopés au bismuth. L'intérêt du dopage homogène réside dans la maximisation du taux d'interaction, ainsi que de l'amplitude de la signature, pour une masse donnée de l'élément incorporé. La synthèse d'échantillons, dédiés à une première étude expérimentale de principe, a permis d'étudier un complexe organométallique versatile, donnant accès à un chargement massique de 5 %m. L'étude préliminaire de principe, consolidée et interprétée à l'aide des résultats de plusieurs simulations Monte-Carlo, a été conclue par une compensation efficace d'un fond gamma centré à plus de 200-300 keV. L'estimation de la sensibilité neutronique, déduite de la modélisation d'une exposition à une source de californium 252 modérée par un

CONCLUSION

bloc de polyéthylène haute densité, a donné des résultats prometteurs, de l'ordre du cps/nv. L'étude expérimentale a, toutefois, confirmé les prévisions formulées par simulation en mettant en évidence, pour des ambiances gamma à basse énergie, une forte divergence du coefficient de compensation par rapport à sa valeur à convergence. Les perspectives à court terme de cette étude sont ainsi doubles. Il s'agit, d'une part, de consolider les estimations de sensibilités et de limites de détection au moyen de mesures expérimentales. Le dimensionnement et la synthèse de scintillateurs de compensation permettant de corriger la divergence à basse énergie, notamment au moyen de métaux lourds alternatifs au bismuth, forment, d'autre part, un prérequis à toute perspective de déploiement.

Schéma de détection	Terme source	Sensibilité neutronique	Limite de détection	Biais majeurs
SP + Gd / SP + Bi	< 200 keV	0,9 – 3,3 cps/nv Réf ³ He : 0,06 – 2 cps/nv	0,01 – 0,36 nv (¹³⁷ Cs) Réf ³ He : 0,005 – 0,017 nv	Gamma de basse énergie (²⁴¹ Am)
Sphère SP + Gd	> 2,6 MeV	0,08 – 0,14 cps/(n.cm⁻².s⁻¹) Réf ³ He : 0,07 cps/(n.cm ⁻² .s ⁻¹)	8 – 10 n.cm⁻².s⁻¹ (¹³⁷ Cs, ⁶⁰ Co) Réf ³ He : 1,9 n.cm ⁻² .s ⁻¹	Muons, gamma de haute énergie
CZT + Gd / CZT + Tb	< 300 keV	≈ 1 cps/nv	ND	Gamma de basse énergie

Tableau IX.1 : Tableau récapitulatif des performances des schémas de détections (Chapitres III, IV et VII).

Ce retour d'expérience sur le dopage au gadolinium a orienté les études suivantes vers la mise en œuvre d'un convertisseur distinct du milieu de détection. Cette approche correspond, par ailleurs, à la stratégie la plus conventionnelle rencontrée dans l'état de l'art.

Un scintillateur plastique de volume élevé, d'une capacité comprise entre un et dix litres, forme un capteur sensible au rayonnement neutronique *via* les diffusions neutroniques et les captures radiatives dans la matrice. L'enjeu de l'étude préliminaire exposée dans le Chapitre IV était double. Il s'agissait, d'une part, de quantifier l'évolution de l'efficacité de détection en fonction des dimensions d'un convertisseur de gadolinium inséré au centre du scintillateur plastique. Cette quantification a été effectuée par simulation Monte-Carlo, pour des seuils de comptage en MeVee autorisant une discrimination par amplitude de la radioactivité gamma naturelle. La modélisation a notamment mis en évidence, au-dessus de 5 MeVee et 6 MeVee, un gain d'efficacité attendu d'un facteur 2 à 3 pour la configuration du premier prototype : sphère pleine de gadolinium, d'une masse inférieure à 10 grammes. Le gain atteint plus d'un ordre de grandeur pour une géométrie optimisée (sphère creuse) et une montée en masse de près de 100 grammes. Dans un second temps, une campagne de mesure conduite sur un premier prototype, après analyse des contributions significatives au signal à haute énergie, a donné accès à des ordres de grandeur portant sur les facteurs de mérite d'intérêt. Les résultats de cette étude expérimentale pointent des performances du même ordre de grandeur en sensibilité et dégradées d'un demi-ordre de grandeur en limite de détection par rapport à une sphère de Bonner à hélium 3. La prochaine étape exploratoire de ce schéma de détection consiste est une étude expérimentale bi-paramétrique, dont les deux variables seront le rayon du scintillateur plastique et le chargement en gadolinium. L'objectif de cette étude est de corroborer les tendances et amplitudes respectives des contributions au signal total à haute énergie des différentes captures radiatives, ainsi que des protons de diffusion.

CONCLUSION

Les Chapitres V et VII sont consacrés à un troisième schéma de détection neutronique, également à base d'un convertisseur de gadolinium. Le gadolinium est mis en œuvre comme couverture de capteurs de faible volume : scintillateurs plastiques dopés dans le premier cas, cristal de tellure de cadmium et zinc dans le second cas. Il s'agit, dans cette approche, d'isoler par compensation, au moyen d'un capteur couvert de terbium, la signature à basse énergie des captures de neutrons thermiques dans le gadolinium. Les essais conduits en laboratoire, et interprétés à partir de données de simulation, ont notamment donné des résultats prometteurs dans le schéma à base de semi-conducteurs denses du Chapitre VII. La sensibilité estimée approche l'ordre du cps/nv. Les contributions dominantes, entre 60 keV et 200 keV pour la signature du gadolinium, et au voisinage de 558 keV pour le cadmium, ont été identifiées avec 95 % de confiance. Les perspectives à court terme ouvertes par ces deux études sont triples. Dans le cas où les capteurs sont des solides semi-conducteurs, une montée en surface de gadolinium, sur des capteurs de plus large section, doit être expérimentalement mise en œuvre. L'enjeu de ce passage à l'échelle est d'accroître la sensibilité neutronique et de garantir des intervalles de confiance à moins de 1 %, avec des temps d'intégration de l'ordre de la minute. L'influence des surcompensations et sous-compensations de la réponse photonique par la couverture de terbium devra également être étudiée en détail. Cette étude permettra de dégager des pistes d'optimisation du matériau ou de consolidation du test d'hypothèse gouvernant la détection neutronique. Enfin, dans l'ambition de réaliser un détecteur à bas coût, le remplacement d'un détecteur semi-conducteur par un milieu plastique scintillant dopé en élément lourd (plomb, bismuth) sera exploré plus avant. Nous conduirons, en premier lieu, une étude expérimentale bi-paramétrique, dont les variables seront le volume et le chargement en masse du scintillateur.

La finalité de ces travaux de thèse étant le déploiement de systèmes de comptage opérant en temps réel, un algorithme de filtrage non linéaire des signaux (Chapitre III), ainsi qu'un algorithme de détection dédié à la mise en œuvre de moniteurs-portiques en réseau (Annexe II), ont été développés.

Les travaux présentés dans cette thèse avaient vocation à définir des schémas de comptage neutronique, opérables en temps réel, et à sélectionner, sur la base de campagnes de mesure, les voies de mise en œuvre assurant une sensibilité aux neutrons la plus proche possible de celles d'un détecteur à hélium 3. Toute stratégie ultérieure de consolidation de la détection, fondée sur la corrélation de comptages dans des régions spectrales d'intérêt, ou de signaux enregistrés sur différentes voies de mesure, n'est en effet viable que si la sensibilité totale est suffisamment élevée.

Après recoupement d'études expérimentales multiparamétriques et d'études d'optimisation des schémas de détection par simulation Monte-Carlo, l'intégration des briques technologiques introduites dans ces travaux (synthèse de plastiques scintillants, convertisseurs de gadolinium, algorithmes) dans des systèmes de mesure pourra être envisagée.

Dans le contexte de la recherche d'alternatives aux détecteurs et dosimètres neutroniques à hélium 3, un système transportable (masse inférieure à 10 kg) et à bas coût tel que celui décrit dans le Chapitre IV trouve sa justification. De façon similaire, un système à deux capteurs utilisés en compensation, scintillateurs plastiques dopés ou solides semi-conducteurs, peut être déployé en tant que détecteur actif et personnel, le corps humain agissant dans ce cas comme modérateur du rayonnement neutronique.

CONCLUSION

Les recherches consignées ici ont préliminairement exploré le périmètre applicatif de tels schémas de comptage, au regard notamment de la nature, de la distribution spectrale et du débit de dose d'environnements de mesure variés. La consolidation de la détection neutronique, jusqu'à des débits de dose gamma définissant une zone contrôlée, et en présence d'émetteurs potentiels à basse énergie, constitue l'axe de prolongement majeur de cette thèse, préalablement à une mise en œuvre opérationnelle du gadolinium dans un compteur neutronique commercialisable.

ANNEXE I : Calcul de la densité de probabilité h associée à l'énergie T_p des protons de recul de première diffusion

Afin d'étudier le produit T_p des variables aléatoires E_n et $\cos^2(\theta_r)$, étudions d'abord séparément $\ln(E_n)$, $\ln(\cos^2(\theta_r))$, $\ln(T_p) = \ln(E_n) + \ln(\cos^2(\theta_r))$ et $T_p = e^{\ln(T_p)}$.

Lemme 1 : Soit X une variable aléatoire réelle à densité sur (Ω, A, P) et f une densité de X prenant presque sûrement ses valeurs sur $]0; +\infty[$. Alors $Y = \ln(X)$ est une variable aléatoire réelle à densité, ladite densité, notée F étant définie sur \mathbb{R} par :

$$\forall x \in]-\infty; +\infty[, F(x) = e^x f(e^x) \quad (\text{AI. 1})$$

Les variables aléatoires E_n et $\cos^2(\theta_r)$ sont réelles. La densité f prend presque sûrement ses valeurs dans $]0; +\infty[$, la valeur $E_n = 0$ correspondant à un non-neutron incident, ce qui est exclu dans notre étude. De même, la densité g prend presque sûrement ses valeurs dans $]0; +\infty[$, puisque la valeur $\cos^2(\theta_r) = 0$ correspond au non-recul du proton, également hors du cadre de travail. Ainsi, les conditions d'application du lemme 1 sont vérifiées, et l'on introduit pour les variables aléatoires $\ln(E_n)$ et $\ln(\cos^2(\theta_r))$ les densités respectives F et G , définies par :

$$\forall x \in]-\infty; +\infty[, F(x) = e^x f(e^x) = C \cdot \exp\left(-\frac{e^x}{a}\right) \cdot \sinh(\sqrt{b \cdot e^x}) \quad (\text{AI. 2})$$

$$\forall x \in]-\infty; +\infty[, G(x) = e^x g(e^x) = e^x 1_{[0;1]}(e^x) \quad (\text{AI. 3})$$

Théorème 1 (dit *fondamental*) : Soient X et Y deux variables aléatoires réelles indépendantes, de densités respectives f_X et f_Y . Si $h: x \rightarrow \int_{-\infty}^{+\infty} f_X(t)f_Y(x-t)dt$ (respectivement $x \rightarrow \int_{-\infty}^{+\infty} f_X(x-t)f_Y(t)dt$) est définie et continue, sauf peut-être en un nombre fini de points, alors $X + Y$ est une variable aléatoire à densité, ladite densité, notée h , étant la convolée de f_X et f_Y .

Formons la somme, notée $\ln(T_p)$, des deux variables aléatoires $\ln(E_n)$ et $\ln(\cos^2(\theta_r))$, indépendantes et de densités respectives F et G . La convolée de F et G , notée H , est formée par :

$$H: x > 0 \rightarrow \int_{-\infty}^{+\infty} F(t)G(x-t)dt = \int_{-\infty}^{+\infty} e^t f(e^t) e^{x-t} 1_{[0;1]}(e^{x-t}) dt \quad (\text{AI. 4})$$

Or $1_{[0;1]}(e^{x-t}) = 1_{]x; +\infty[}(t)$, d'où :

$$H: x \rightarrow e^x \int_x^{+\infty} f(e^t) dt = e^x \int_x^{+\infty} C \cdot \exp\left(-\frac{e^t}{a}\right) \cdot \sinh(\sqrt{b \cdot e^t}) dt \quad (\text{A1.5})$$

laquelle fonction est définie et continue sur $]0; +\infty[$. Par application du théorème fondamental, il vient que $\ln(T_p)$ est une variable aléatoire de densité H sur $]0; +\infty[$.

Lemme 2 : Soit X une variable aléatoire réelle à densité sur (Ω, A, P) et f une densité de X définie sur \mathbb{R} . $Y = e^X$ est une variable aléatoire réelle à densité, laquelle densité notée F , est définie sur \mathbb{R} par :

$$\forall x \in]-\infty; 0], F(x) = 0 \text{ et } \forall x \in]0; +\infty[, F(x) = \frac{1}{x} f(\ln(x)) \quad (\text{A1.6})$$

La variable aléatoire $\ln(T_p)$ vérifie les conditions d'application du lemme 2, si bien que la variable aléatoire $e^{\ln(T_p)}$, qui s'identifie sur l'intervalle d'intérêt [25 meV ; 10 MeV] à la variable aléatoire T_p , admet la fonction de densité suivante, notée h :

$$\forall T_p \in]0; +\infty[, h(T_p) = \frac{1}{T_p} e^{\ln(T_p)} \int_{\ln(T_p)}^{+\infty} C \cdot \exp\left(-\frac{e^t}{a}\right) \cdot \sinh(\sqrt{b \cdot e^t}) dt$$

$$\forall T_p \in]0; +\infty[, h(T_p) = \int_{\ln(T_p)}^{+\infty} C \cdot \exp\left(-\frac{e^t}{a}\right) \cdot \sinh(\sqrt{b \cdot e^t}) dt \quad (\text{A1.7})$$

Sous l'hypothèse simplificatrice d'uniformité de $\cos^2(\theta_r)$, rappelons-le largement validée dans la gamme [25 meV ; 10 MeV] qui contient l'essentiel du spectre de fission, une fonction explicite décrivant la distribution en énergie cinétique des protons de recul générés dans le scintillateur est ainsi établie.

La variable aléatoire T_n suit par ailleurs la même loi que T_p , si bien que la distribution en énergie cinétique des neutrons après la première diffusion est également connue.

Mentionnons également que l'on peut déterminer, à partir de T_n et $\cos^2(\theta_r)$, la distribution associée à l'énergie de recul des protons de seconde diffusion, notée $T_p^{(2)}$; on a comme *supra* :

$$T_p^{(2)} = T_n \cdot \cos^2(\theta_r) \quad (\text{A1.8})$$

Les variables T_n , $\cos^2(\theta_r)$, $\ln(T_n)$, $\ln(\cos^2(\theta_r))$, $\ln(T_p^{(2)}) = \ln(T_n) + \ln(\cos^2(\theta_r))$ et $T_p^{(2)} = e^{\ln(T_p^{(2)})}$ vérifiant des propriétés identiques à celles exploitées lors de la première diffusion sur leurs analogues respectifs, $T_p^{(2)}$ est une variable aléatoire réelle à densité, laquelle densité, notée $h^{(2)}$, étant définie sur [25 meV ; 10 MeV] par :

$$\forall T_p^{(2)} \in]0; +\infty], h^{(2)}(T_p^{(2)}) = \int_{\ln(T_p^{(2)})}^{+\infty} \int_t^{+\infty} C \cdot \exp\left(-\frac{e^u}{a}\right) \cdot \sinh(\sqrt{b \cdot e^u}) du dt \quad (\text{A1.9})$$

Il en va de même, *mutatis mutandis*, pour les diffusions qui suivent jusqu'à thermalisation des neutrons. Ainsi, pour la $n^{\text{ème}}$ diffusion, la fonction de densité $h^{(n)}$ associée à la distribution en énergie cinétique $T_p^{(n)}$ des protons de recul sera donnée par l'expression multiple intégrale :

$$\forall T_p^{(n)} \in]0; +\infty[,$$

$$h^{(n)}(T_p^{(n)}) = \int_{\ln(T_p^{(n)})}^{+\infty} \int_{t_{n-1}}^{+\infty} \dots \int_{t_2}^{+\infty} \int_{t_1}^{+\infty} C \cdot \exp\left(-\frac{e^u}{a}\right) \cdot \sinh(\sqrt{b \cdot e^u}) du dt_1 dt_2 \dots dt_{n-1} \quad (\text{A1.10})$$

ANNEXE II (COMPLEMENT AU CHAPITRE IV) : Algorithme adapté à une mise en œuvre en réseau pour la détection de radio-émetteurs en mouvement

Le capteur décrit dans le Chapitre IV constitue à la fois un détecteur de rayonnements gamma très sensible (comme le montrent les courbes d'étalonnage présentées sur la Figure IV.14) et, sur la base de l'interprétation des résultats menée dans la Partie VII, un détecteur neutronique efficace. Il est dans le même temps, en raison de la nature et du volume du plastique scintillant, fortement bruité par le fond radioactif gamma comme par les descendants muoniques des rayons cosmiques, ainsi que l'illustre la Figure IV.16. En supposant qu'un tel capteur soit déployé comme moniteur-portique de détection du rayonnement, dans le cadre applicatif détaillé au paragraphe 2.3 de l'Introduction, apparaît alors une problématique de détection des sources, *a priori* mobiles, sous un rapport signal sur bruit (*RSB*) faible. C'est dans cette perspective de déploiement que l'on a travaillé sur une amélioration d'un schéma de mise en œuvre en réseau et d'un test d'hypothèse dédié, élaborés précédemment au sein du laboratoire, pour la détection de sources radioactives en mouvement.

1. Travaux précédents et principe de l'algorithme

Les moniteurs-portiques déployés pour la détection de radio-émetteurs en mouvement répondent à un double impératif de sensibilité au rayonnement, laquelle nécessite une montée en volume, et de compromis entre l'efficacité et le coût, ce qui justifie l'orientation de solutions industrielles vers des technologies à base de scintillateurs plastiques [AII.1]. La détection de source mobile est, dans une configuration à un seul capteur, le résultat d'un test d'hypothèse sur la voie de signal unique en sortie de la balise à proximité de laquelle les porteurs potentiels défilent. Le seuil d'alarme est une fonction croissante du bruit de fond, définie de façon à maximiser le compromis entre le taux de détection des sources présentes et le taux de fausse détection ou faux positifs en l'absence de source. Dans les cas limites où le *RSB* tend vers 1, voire est inférieur à 1, que ce soit parce que l'activité de la source à détecter est très faible ou parce que le bruit de mesure est très élevé (ainsi qu'on l'attend pour le capteur présenté dans le Chapitre IV), une stratégie efficace consiste à déployer un réseau de détecteurs identiques [AII.2], dont la configuration la plus élémentaire est celle d'un réseau linéaire le long de la trajectoire du porteur potentiel.

Un premier algorithme répondant à la problématique de *RSB* faible, dont le principe suit, a été breveté [AII.3] par le Laboratoire Capteurs et Architectures Electroniques et détaillé dans la référence [AII.4]. Supposons que le porteur potentiel suit une trajectoire linéaire ou quasi-linéaire en passant devant les moniteurs-portiques déployés en réseau : il induit dans ce cas, successivement et sur un intervalle temporel donné, une élévation du signal enregistré au niveau de chacune des balises. Or, dans un cas où le *RSB* est faible, cette élévation du signal n'est pas discriminable des fluctuations statistiques du bruit de mesure attribuable à la radioactivité ambiante, fluctuations dont la nature est théoriquement poissonnienne. En revanche, en supposant que le porteur se déplace à vitesse constante ou quasi-constante (hypothèse raisonnable pour un piéton aussi bien que pour un véhicule), un écho du signal non détecté existe *périodiquement* dans les trames enregistrées au niveau de chacun des moniteurs-portiques. Il est dès lors possible de rechercher ladite période et, en multipliant les

différentes trames décalées d'un multiple de cette période, dont la valeur dépend de la position de la balise au sein du réseau, de superposer les échos successifs du signal non détecté. C'est alors le produit de ces échos que le test de détection vise à discriminer, par un seuil en amplitude, des fluctuations statistiques du vecteur-produit des trames successives. L'algorithme pour la détection d'une source en mouvement est construit à partir de la moyenne et de la variance empirique des vecteurs-produits des trames enregistrées, sans postulat sur la nature et l'intensité de ces grandeurs. L'étude par simulation décrite dans la référence [AII.4], conduite pour une vitesse du porteur relativement élevée (7 m.s^{-1}) et un taux de comptage attribuable à l'ambiance faible (20 cps) a révélé des performances satisfaisantes regardant l'amélioration du compromis entre le taux de détection et le taux de fausse alarme.

Dans le cadre de cette thèse, une évolution de ce premier algorithme a été étudiée : cette évolution est bâtie sur la description de la loi statistique sous-jacente au vecteur-produit des trames temporelles, utilisée ensuite pour paramétrer le test de détection sous hypothèse poissonnienne, au moyen d'une formule explicite pour l'espérance et la variance du signal enregistré. Une étude détaillée des performances du nouvel algorithme, en comparaison de sa version originelle, a été décrite dans la référence [AII.5], dont ne sont présentés ici que les aspects directement applicables au détecteur plastique de volume décimétrique, fortement bruité, qui fait l'objet du Chapitre IV.

2. Formalisme mathématique

Considérons d'abord les signaux enregistrés par deux moniteurs-portiques de détection du rayonnement alignés, signaux générés par deux variables aléatoires sous-jacentes S_1 et S_1 , réelles et indépendantes, de densités de loi de Poisson respectivement paramétrées par λ_1 et λ_2 . En supposant les valeurs de λ_1 et λ_2 suffisamment élevées, les deux distributions peuvent être approchées par deux lois normales $\mathcal{N}(\lambda_1, \lambda_1)$ et $\mathcal{N}(\lambda_2, \lambda_2)$. Considérons, selon le principe énoncé dans le paragraphe précédent, la variable aléatoire $Y = S_1 \cdot S_2$ formée par le produit des deux précédentes.

L'espérance $E[Y]$ de la variable aléatoire formée par le produit de deux variables réelles et indépendantes se réduit au produit des espérances $E[S_1]$ et $E[S_2]$ de ces variables :

$$E[Y] = E[S_1 \cdot S_2] = E[S_1] \cdot E[S_2] = \lambda_1 \cdot \lambda_2 \quad (\text{AII. 1})$$

La variance $V(Y)$ de la variable Y est une fonction des variances $V(S_1)$ et $V(S_2)$ des deux variables multipliées, ainsi que de leurs espérances $E[S_1]$ et $E[S_2]$:

$$V(Y) = V(S_1) \cdot V(S_2) + V(S_1) \cdot (E[S_2])^2 + V(S_2) \cdot (E[S_1])^2$$

$$V(Y) = \lambda_1 \cdot \lambda_2 \cdot (1 + \lambda_1 + \lambda_2) \quad (\text{AII. 2})$$

Ce formalisme peut être généralisé à un réseau linéaire comprenant un nombre quelconque, noté n , de moniteurs-portiques. Considérons dans ce cas les n variables aléatoires $S_1, S_2 \dots S_n$ sous-jacentes aux signaux enregistrés, réelles et indépendantes, de densités de loi de Poisson paramétrées respectivement par $\lambda_1, \lambda_2 \dots \lambda_n$. Leurs distributions sont à nouveau approchées par les lois normales $\mathcal{N}(\lambda_1, \lambda_1), \mathcal{N}(\lambda_2, \lambda_2) \dots \mathcal{N}(\lambda_n, \lambda_n)$, et l'on forme le produit de ces variables $Y = S_1 \cdot S_2 \dots S_n$.

L'espérance $E[Y]$ de la variable aléatoire formée par le produit de n variables réelles et indépendantes se réduit au produit des espérances $E[S_1], E[S_2] \dots E[S_n]$ de ces variables :

$$E[Y] = E[S_1] \cdot E[S_2] \dots E[S_n] = \lambda_1 \cdot \lambda_2 \dots \lambda_n = \prod_{i=1}^n \lambda_i \quad (\text{AII. 3})$$

Le calcul de la variance $V(Y)$ de la variable Y est mené récursivement en appliquant l'Equation (AII.2) :

$$V(Y) = V(S_1 \cdot S_2 \dots S_{n-1}) \cdot V(S_n) + V(S_1 \cdot S_2 \dots S_{n-1}) \cdot (E[S_n])^2 + V(S_n) \cdot (E[S_1 \cdot S_2 \dots S_{n-1}])^2$$

$$V(Y) = V(S_1 \cdot S_2 \dots S_{n-1}) \cdot (\lambda_n + \lambda_n^2) + \lambda_n \cdot \left(\prod_{i=1}^{n-1} \lambda_i \right)^2 \quad (\text{AII. 4})$$

Le même traitement est ensuite appliqué itérativement aux variables produits $S_1 \cdot S_2 \dots S_{n-1}$, puis $S_1 \cdot S_2 \dots S_{n-2} \dots$, abaissant ainsi le nombre de facteurs jusqu'à être ramené à l'Equation (AII.2).

3. Code de simulation pour la comparaison des algorithmes

Ce paragraphe présente les différentes étapes du code de simulation implémenté avec le logiciel commercial Matlab pour la comparaison des versions originelle (moyenne et variance empiriques) et révisée (hypothèse poissonnienne) de l'algorithme de détection de source en mouvement dont le principe a été décrit dans le paragraphe 1.

3.1. Simulation du signal de radioactivité

Soit n le nombre de moniteurs-portiques identiques, déployés en réseau linéaire, d_1 la distance euclidienne entre le porteur potentiel et le réseau, d_2 la distance entre deux balises adjacentes, v la vitesse du porteur, supposée constante ou quasi-constante, M la taille de mémoire associée au logiciel de traitement des signaux en sortie d'une balise, λ_b le taux de comptage causé par le bruit de fond et λ_s le taux de comptage généré en face d'une balise par le radio-émetteur à détecter. En présence d'un radio-émetteur, la valeur du taux de comptage instantané $\lambda_j[t_i]$ espérée au $i^{\text{ème}}$ pas de rafraîchissement de la mesure au niveau du $j^{\text{ème}}$ moniteur-portique est une fonction de la position du porteur $x[t_i]$, elle-même dépendante du temps, fonction décrite dans l'Equation (AII.5) sous l'hypothèse simplificatrice que la source et le capteur peuvent être réduits à leurs centres de masse respectifs :

$$\forall j \in \llbracket 1; n \rrbracket, \forall i \in \llbracket 1; M \rrbracket, \lambda_j[t_i] = \frac{\lambda_s \cdot d_1^2}{d_1^2 + (x[t_i] - x_j)^2} + \lambda_b \quad (\text{AII. 5})$$

L'intervalle de rafraîchissement de la mesure est noté $\Delta t = t_{i+1} - t_i$. Avec les notations introduites, le RSB est évalué selon :

$$RSB = \frac{\lambda_s \cdot \Delta t}{\sqrt{\lambda_b \cdot \Delta t}} = \frac{\lambda_s \cdot \sqrt{\Delta t}}{\sqrt{\lambda_b}} \quad (\text{AII. 6})$$

Pour chacune des j balises, un comptage instantané est généré selon un processus poissonien inhomogène en utilisant la fonction ‘‘Poisrnd’’, notée \wp , que l’on paramètre par la valeur instantanée du taux de comptage sous-jacent $\lambda_j[t_i]$. Un lissage des signaux est en outre appliqué sous la forme d’une moyenne glissante (*moving average* en anglais) d’ordre 3 notée $MA(\cdot, 3)$, si bien que le signal enregistré au $i^{\text{ème}}$ pas de rafraîchissement de la mesure au niveau du $j^{\text{ème}}$ moniteur-portique est décrit par :

$$\forall j \in \llbracket 1; n \rrbracket, \forall i \in \llbracket 1; M \rrbracket, S_j[t_i] = MA(\wp(\lambda_j[t_i] \cdot \Delta t), 3) \quad (\text{AII. 7})$$

Sur chacune des j voies de mesure et à chaque instant de rafraîchissement t_i , une nouvelle valeur de signal est mémorisée dans une matrice $(S_{i,j} = S_j[t_i])_{i=1\dots M, j=1\dots n}$, où M est identifiée à la profondeur temporelle de la mesure.

3.2. Calcul du vecteur-produit des trames temporelles

Les deux algorithmes décrits dans le paragraphe 1 sont fondés sur le même vecteur-produit des trames temporelles $(R_k)_{k=1\dots N_R}$ de longueur $N_R = \lfloor \frac{n}{M} \rfloor$, dont la $k^{\text{ème}}$ composante est calculée selon l’Equation (AII.8) et l’Equation (AII.9) pour des tailles du réseau linéaire égales à $n = 2$ et $n = 4$ (cas auxquels cette étude est réduite) respectivement :

$$\forall k \in \llbracket 1; N_R \rrbracket, R_k = \max_{i \in \llbracket 1; M-k+1 \rrbracket} (S_{i,1} \cdot S_{i+k-1,2}) \quad (\text{AII. 8})$$

$$\forall k \in \llbracket 1; N_R \rrbracket, R_k = \max_{i \in \llbracket 1; M-4(k-1) \rrbracket} (S_{i,1} \cdot S_{i+k-1,2} \cdot S_{i+2(k-1),3} \cdot S_{i+4(k-1),4}) \quad (\text{AII. 9})$$

3.3. Test d’hypothèse pour la détection d’une source en mouvement à vitesse constante

Chacun des deux algorithmes de détection étudiés repose sur la comparaison du signal mesuré à un seuil de décision, réglé en fonction de l’amplitude espérée et de la dispersion du bruit de fond. Ainsi, pour le test d’hypothèse le plus simple mis en œuvre au niveau d’une balise seule, par exemple la première du réseau, si l’on définit l’hypothèse nulle \mathbf{H}_0 par l’énoncé « aucun radio-émetteur n’est présent lors du passage du porteur devant le moniteur-portique » et l’hypothèse alternative \mathbf{H}_1 par « un radio-émetteur est présent lors du passage du porteur devant le moniteur-portique », l’acceptation de \mathbf{H}_1 est paramétrée par un facteur d’élargissement t_K de telle sorte que si :

$$\max_{i \in \llbracket 1; M \rrbracket} (S_{i,1}) > \overline{S_{\cdot,1}} + t_K \cdot \sigma(S_{\cdot,1}) \quad (\text{AII. 10})$$

alors l’alarme est déclenchée et une source est détectée. Les estimées non biaisées de l’espérance $\overline{S_{\cdot,1}}$ et de l’écart-type $\sigma(S_{\cdot,1})$ du taux de comptage sont calculées selon :

$$\overline{S_{\cdot,1}} = \frac{1}{M} \sum_{i=1}^M S_{i,1} \quad (\text{AII. 11})$$

$$\sigma(S_{.,1}) = \sqrt{\frac{1}{M-1} \sum_{i=1}^M (S_{i,1} - \bar{S}_{.,1})^2} \quad (\text{AII. 12})$$

Le réglage du facteur t_K est le résultat d'un compromis entre la probabilité de fausse alarme ($P_{FA} = P(\mathbf{H}_1|\mathbf{H}_0)$ par définition), soit l'acceptation de \mathbf{H}_1 en l'absence de source en mouvement ($\lambda_s = 0$), et la probabilité de détection juste ou vrai positif ($P_D = P(\mathbf{H}_1|\mathbf{H}_1)$ par définition), qui correspond à l'acceptation de \mathbf{H}_1 en présence d'une source. Ce compromis peut être illustré par le tracé de la *fonction d'efficacité du récepteur* (*Receiver Operating Characteristic* en anglais, abrégée *ROC*) représentant l'évolution de P_D en fonction de P_{FA} , ou, lorsque comme ici, aucune valeur critique de P_{FA} n'a été définie, par l'évolution d'un facteur de mérite intuitif, noté *FOM* (pour *Factor Of Merit* en anglais) et calculé simplement selon :

$$FOM = P_D - P_{FA} \quad (\text{AII. 13})$$

Dans les cas où le *RSB* est faible, la stratégie canonique qui consiste à déclencher l'alarme, pour une valeur de t_K fixée, lorsque \mathbf{H}_1 est acceptée au niveau d'au moins une des n balises déployées en réseau (fonction logique OU), a pour résultat une dégradation rédhibitoire du facteur de mérite, ainsi qu'il a été démontré dans la référence [AII.4]. C'est ainsi qu'est justifiée l'approche fondée sur la multiplication des trames temporelles étudiée ici.

Le test de détection auquel on souhaite apporter une amélioration dans ces travaux repose sur l'ajout d'une condition à l'acceptation de \mathbf{H}_1 dans la fonction logique OU sur les n tests indépendants réalisés au niveau des trames temporelles enregistrées par les moniteurs-portiques, condition stipulée dans l'Equation (AII.14) en fonction du vecteur-produit des trames construit dans le paragraphe 3.2 :

$$\max_{k \in \llbracket 1; N_R \rrbracket} (R_k) > \bar{R} + t_K \cdot \sigma(R) \quad (\text{AII. 14})$$

Les estimées non biaisées de l'espérance \bar{R} et de l'écart-type $\sigma(R)$ du taux de comptage sont calculées selon :

$$\bar{R} = \frac{1}{N_R} \sum_{k=1}^M R_k \quad (\text{AII. 15})$$

$$\sigma(R) = \sqrt{\frac{1}{N_R - 1} \sum_{i=1}^{N_R} (R_k - \bar{R})^2} \quad (\text{AII. 16})$$

Le facteur t_K est réglé en fonction de la maximisation du facteur *FOM* résultant de la fonction OU sur les $n + 1$ tests réalisés.

Le principe du test de détection alternatif que l'on décrit dans ce complément au Chapitre IV repose sur le remplacement de \bar{R} et $\sigma(R)$ par des estimées de l'espérance et de la

variance du vecteur-produit fondées sur le calcul théorique conduit dans le paragraphe 2, en injectant donc dans l'estimation une connaissance *a priori* de la nature poissonnienne des statistiques sous-jacentes aux comptages. Dans ce schéma, la $(n + 1)^{\text{ème}}$ condition d'acceptation est formulée en appliquant les Equations (AII.2) et (AII.4) pour $n = 2$ et $n = 4$ respectivement, et explicitée dans ces deux cas selon les Equations (AII.17) et (AII.18) ci-dessous :

$$\max_{k \in \llbracket 1; N_R \rrbracket} (R_k) > \overline{S}_{.,1} \cdot \overline{S}_{.,2} + t_K \cdot \sqrt{\overline{S}_{.,1} \cdot \overline{S}_{.,2} \cdot (1 + \overline{S}_{.,1} + \overline{S}_{.,2})} \quad (\text{AII. 17})$$

$$\max_{k \in \llbracket 1; N_R \rrbracket} (R_k) > \prod_{j=1}^4 \overline{S}_{.,j} + t_K \cdot \sqrt{\Pi \cdot (\overline{S}_{.,4} + \overline{S}_{.,4}^2) + \overline{S}_{.,4} \cdot \left(\prod_{j=1}^3 \overline{S}_{.,j} \right)^2} \quad (\text{AII. 18})$$

où le facteur Π est lui-même calculé selon :

$$\Pi = \overline{S}_{.,1} \cdot \overline{S}_{.,2} \cdot (1 + \overline{S}_{.,1} + \overline{S}_{.,2}) \cdot (\overline{S}_{.,3} + \overline{S}_{.,3}^2) + \overline{S}_{.,3} \cdot (\overline{S}_{.,1} \cdot \overline{S}_{.,2})^2 \quad (\text{AII. 19})$$

Pour chacune des j voies de mesure, associées à autant de balises, l'espérance $\overline{S}_{.,j}$ du comptage est estimée par :

$$\forall j \in \llbracket 1; n \rrbracket, \overline{S}_{.,j} = \frac{1}{M} \sum_{i=1}^M S_{i,j} \quad (\text{AII. 20})$$

4. Résultats

L'évolution du facteur de mérite FOM en fonction du facteur d'élargissement t_K est évaluée, dans chacune des conditions de mise en œuvre décrites ci-dessous, à l'aide du logiciel Matlab. Chaque configuration est simulée $N = 1000$ fois avec une valeur de RSB correspondant au taux de signal λ_s que l'on souhaite détecter, et $N = 1000$ fois avec $\lambda_s = 0$ de façon à évaluer le taux de fausse alarme. Le nombre d'itérations a été fixé de telle sorte que l'incertitude de répétabilité sur le calcul de FOM n'excède jamais 2 %. En notant N_D le nombre de détections sur N itérations en présence d'une activité de source ($\lambda_s \neq 0$), et N_{FA} le nombre de fausses alarmes sur N itérations, les probabilités définies dans le paragraphe précédent, ainsi que les écarts-types de répétabilité associés $\sigma(P_D)$ et $\sigma(P_{FA})$, sont calculés suivant :

$$P_D = \frac{N_D}{N} \quad (\text{AII. 21})$$

$$\sigma(P_D) = \sqrt{\frac{1}{N} \cdot P_D \cdot (1 - P_D)} \quad (\text{AII. 22})$$

$$P_{FA} = \frac{N_{FA}}{N} \quad (\text{AII. 23})$$

$$\sigma(P_{FA}) = \sqrt{\frac{1}{N} \cdot P_{FA} \cdot (1 - P_{FA})} \quad (\text{AII. 24})$$

Le facteur de mérite est calculé selon l'Equation (AII.13), et l'écart-type de répétabilité qui lui est associé selon :

$$\sigma(FOM) = \sqrt{\sigma^2(P_D) + \sigma^2(P_{FA})} \quad (\text{AII. 25})$$

Le pas de rafraîchissement de la meure a été fixé à $\Delta t = t_{i+1} - t_i = 100$ ms, et la taille de mémoire $M = 100$.

4.1. Piéton

La première mise en œuvre opérationnelle simulée est celle d'un réseau linéaire de moniteurs-portiques déployés afin de détecter un radio-émetteur porté par un piéton dans un bruit de fond élevé (tel qu'il est attendu sur le détecteur présenté dans le Chapitre IV, notamment lorsqu'il est employé comme compteur gamma en dessous de 2,614 MeV). Le taux de comptage fixé pour le bruit de fond égale $\lambda_b = 2000$ cps. Afin de représenter une expérience réaliste, la vitesse du piéton, qui marche devant le réseau à une distance $d_1 = 1$ m, est fixée à $v = 5$ km. h⁻¹. La vitesse étant faible, l'espacement des balises doit être limité, on choisit donc de le fixer à $d_2 = 2$ m. L'évolution du facteur de mérite FOM en fonction du facteur d'élargissement t_K est décrite pour quatre valeurs de RSB représentant une détection de plus en plus ardue : $RSB = 2$; $RSB = 1,5$; $RSB = 1$ et $RSB = 0,8$. La Figure AII.1 présente ainsi l'évolution de FOM en fonction de t_K sous un $RSB = 1$, pour le test de détection présenté dans l'Equation (AII.10) sur la voie 1 (appelé M1FOM), pour la fonction logique OU avec le test fondé sur l'espérance et la variance empiriques de la référence [AII.4] le long d'un réseau de taille $n = 2$ (R2FOM) et $n = 4$ (R4FOM), et pour la fonction logique OU avec le test présenté dans ce chapitre, fondé sur l'espérance et la variance estimées sous hypothèse poissonienne le long des mêmes réseaux de taille $n = 2$ (PG2FOM) et $n = 4$ (PG4FOM).

4.2. Véhicule

La seconde mise en œuvre opérationnelle simulée est celle d'un réseau linéaire de moniteurs-portiques déployés afin de détecter un radio-émetteur à l'intérieur d'un véhicule, typiquement une automobile en entrée ou sortie d'une zone à accès restreint. Le taux de comptage $\lambda_b = 2000$ cps dû au bruit est conservé, ainsi que les taux de comptage induits par la source λ_s correspondant aux quatre valeurs de $RSB = 2$; $RSB = 1,5$; $RSB = 1$ et $RSB = 0,8$. Le reste du jeu de paramètres est modifié de façon à rendre compte des contraintes associées à cette seconde mise en œuvre selon : $d_1 = 3$ m, $v = 15$ km. h⁻¹ et $d_2 = 15$ m. La Figure AII. 2 présente comme *supra* l'évolution de M1FOM, R2FOM, R4FOM, PG2FOM et PG4FOM en fonction de t_K , sous un $RSB = 1,5$.

Les résultats des huit configurations simulées corroborent les revendications formulées dans la référence [AII.4] au sujet du gain de FOM autorisé par la multiplication des trames temporelles, que le test de détection mis en œuvre soit celui de l'Equation (AII.14) ou celui

des Equations (AII.17) et (AII.18). Pour la modélisation d'un piéton comme pour celle d'un véhicule, l'exploitation de l'écho du signal, identifié au maximum du vecteur-produit $(R_k)_{k=1\dots N_R}$ à l'issue d'un balayage des décalages temporels entre les trames, indexés par k , a pour résultat une amélioration sensible de la FOM sous un RSB faible, de 10 à 20 % *a minima* par rapport à celle du test standard M1FOM pour la multiplication des deux voies dans R2FOM et PG2FOM, et de 30 à 40 % *a minima* pour la multiplication des quatre voies dans R4FOM et PG4FOM. Les caractéristiques confirment également que, conformément à l'intuition, les performances sont améliorées lorsque la taille n du réseau augmente. Cette étude élargit donc les conclusions de la référence [AII.4] à deux configurations typiques (piéton et véhicule) en présence d'un bruit de fond élevé.

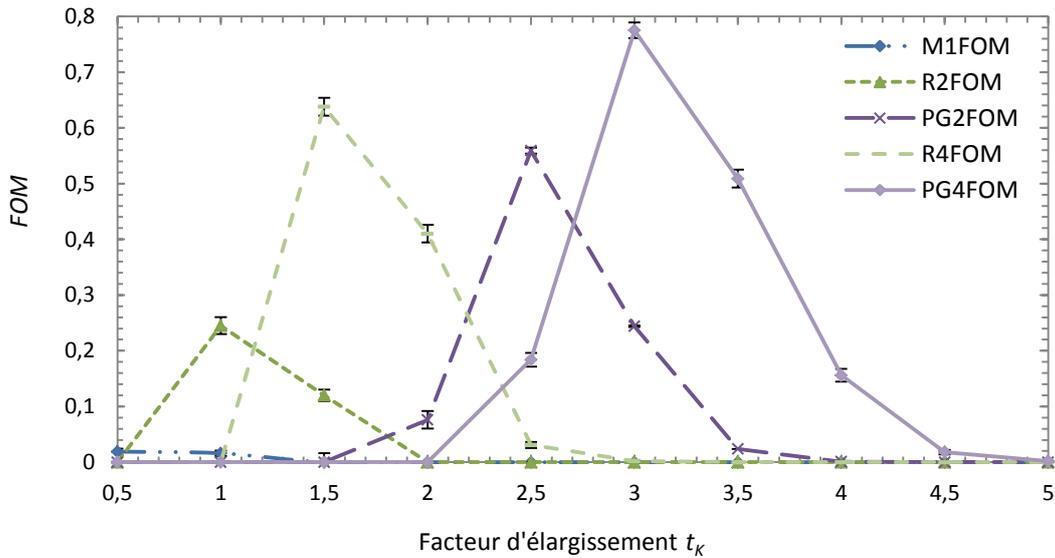


Figure AII.1 : Evolution de FOM en fonction de t_k pour un piéton ($\lambda_b = 2000$ cps ; $RSB = 1$).

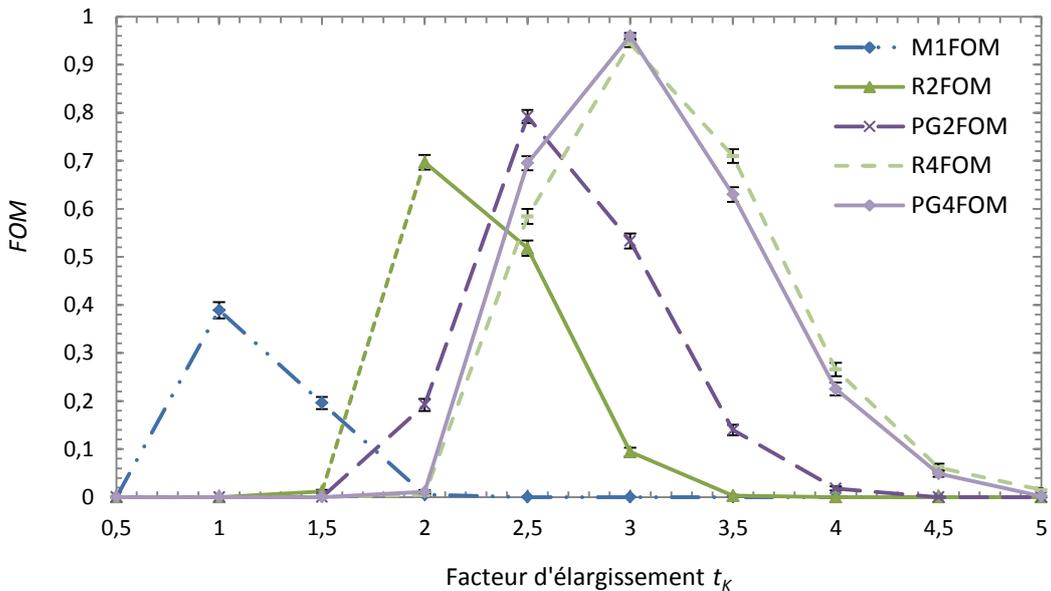


Figure AII.2 : Evolution de FOM en fonction de t_k pour un véhicule ($\lambda_b = 2000$ cps ; $RSB = 1,5$).

Le point central de l'étude est la comparaison deux à deux des facteurs FOM atteints par les tests R2FOM et PG2FOM d'une part, et R4FOM et PG4FOM d'autre part. Dans les huit configurations simulées, le maximum de la distribution $FOM(t_K)$ pour PG2FOM excède celui relevé pour R2FOM, et semblablement le maximum de PG4FOM est supérieur à celui de R4FOM. Dans la mesure où le test de détection doit être réglé sans *a priori* sur le RSB , un autre critère de mérite fondamental est la stabilité du facteur d'élargissement t_K garantissant un compromis sensibilité / fausse alarme proche de l'optimum, pour différentes valeurs de RSB . Les caractéristiques tracées pour PG2FOM et PG4FOM confirment cette stabilité : ainsi, pour un réglage initial du facteur d'élargissement à $t_K = 3$ dans la simulation d'un piéton, les valeurs de PG4FOM égalent respectivement $FOM = 0,85$; $FOM = 0,83$; $FOM = 0,78$ et $FOM = 0,78$ pour $RSB = 2$; $RSB = 1,5$; $RSB = 1$ et $RSB = 0,8$, à la fois très satisfaisantes en valeur absolue et supérieures de 5 à 15 % à celles atteintes par R4FOM. La même tendance a été observée pour la simulation du véhicule porteur.

5. Conclusions

L'étude par simulation présentée ci-dessus, conduite pour plusieurs configurations de mise en œuvre et des valeurs de rapport signal sur bruit comprises entre 2 et 0,8, met en évidence l'apport d'une version modifiée de l'algorithme précédemment élaboré au sein du laboratoire. Le test de détection sur lequel est fondé cette évolution, qui utilise un *a priori* poissonien sur les lois statiques sous-jacentes aux signaux de radioactivité, s'est révélé plus performant, au regard du compromis sensibilité / fausse alarme, que la version sans *a priori* décrite antérieurement. Il a, de surcroît, été établi que la plage d'optimisation pour le réglage du facteur d'élargissement du test reste stable, à bruit de fond constant, pour les diverses valeurs de RSB simulées.

Deux limites au cadre de mise en œuvre du vecteur-produit pour la détection de sources en mouvements sont communes à la version de référence et à la version modifiée décrite ici : le facteur d'élargissement, d'une part, ne peut être réglé que pour un bruit de fond donné, que l'on suppose stable durant la mesure, et le porteur doit, d'autre part, se déplacer à vitesse constante ou quasi-constante le long du réseau de moniteurs-portiques, de façon à rendre la recherche d'écho possible. Il convient en outre de souligner une limite propre à l'algorithme introduit dans cette étude : celui-ci, par construction, devient inopérant lorsque le signal enregistré au niveau des différentes balises diverge significativement d'un comptage reconstitué par un modèle poissonien, comme c'est le cas, par exemple, en présence d'un taux d'empilement très important. Enfin, dans les cas où le porteur potentiel est un véhicule, l'algorithme de détection doit intégrer une gestion de l'auto-écranage (*self-shielding* en anglais) : en raison de ses dimensions, densité et numéro atomique effectif, le porteur écranterait partiellement les moniteurs-portiques déployés en réseau, introduisant ainsi une distorsion du bruit de fond enregistré par chacun d'eux. Si cet effet systématique a été négligé dans l'étude développée ici, sa prise en compte fait l'objet d'une amélioration incrémentale de l'algorithme, détaillée dans la demande de dépôt de brevet [AII.6].

Le nouvel algorithme présenté dans ce complément au Chapitre IV doit faire l'objet de tests sur le prototype, à base de scintillateurs plastiques de dimensions $10 \times 10 \times 100$ cm de type EJ-200 (produits par Eljen Technology), développé dans le cadre du projet européen SECUR-ED pour la sécurisation des transports en commun de ville. Sa mise en œuvre appliquée à des détecteurs neutroniques du type de celui décrit dans le Chapitre IV,

nécessitant au moins deux prototypes de même composition, est laissée en perspective dans le cadre de cette thèse.

Références de l'Annexe II :

[AII.1] "Radiological control of vehicle load," SAPHYMO Technical file 29294 835 EN (2011).

[AII.2] D. Stephens, A. Peurrung, "Detection of moving radioactive sources using sensor networks," *IEEE Transactions on Nuclear Science*, Vol. 51, Iss. 5, pp. 2273-2278 (2004).

[AII.3] R. Coulon, V. Kondrasovs, S. Normand, M. Bakkali, "Procédé de détection de source radioactive en mouvement et dispositif associé", Commissariat à l'Energie Atomique et aux Energies Alternatives, Brevet EP 2948800 A1 (2014).

[AII.4] R. Coulon, V. Kondrasovs, K. Boudergui, S. Normand, "Moving sources detection algorithm for radiation portal monitors used in a linear network," *IEEE Transactions on Nuclear Science*, Vol. 61, Iss. 4, pp. 2189-2194 (2014).

[AII.5] J. Dumazert, R. Coulon, V. Kondrasovs, K. Boudergui, Y. Moline, G. Sannié, J. Gameiro, S. Normand, L. Méchin, "A robust hypothesis test for the sensitive detection of constant speed radiation moving sources", *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research A*, Vol. 795, pp. 335-342 (2015).

[AII.6] R. Coulon, J. Dumazert, M. Bakkali, "Système et procédé de détection de source radioactive avec correction d'effet d'écran", Commissariat à l'Energie Atomique, demande déposée le 15/04/2016 sous le n° FR1653358.

VALORISATION SCIENTIFIQUE ET ENCADREMENT

Publications en revue de rang A (1^{er} auteur) :

J. Dumazert, R. Coulon, V. Kondrasovs, K. Boudergui, Y. Moline, G. Sannié, J. Gameiro, S. Normand, L. Méchin, “A robust hypothesis test for the sensitive detection of constant speed radiation moving sources”, *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research A*, Vol. 795, pp. 335-342 (2015).

J. Dumazert, R. Coulon, G. H. V. Bertrand, S. Normand, L. Méchin, M. Hamel, “Compensated bismuth-loaded plastic scintillators for neutron detection using low-energy pseudo-spectroscopy”, *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research A*, Vol. 819, pp. 25-32 (2016).

J. Dumazert, R. Coulon, M. Hamel, F. Carrel, F. Sguerra, S. Normand, L. Méchin, G. H. V. Bertrand, “Gadolinium-loaded plastic scintillators for thermal neutron detection using compensation”, *IEEE Transactions on Nuclear Science*, Vol. 63, Iss. 3, pp. 1-14 (2016).

J. Dumazert, R. Coulon, F. Carrel, G. Corre, S. Normand, L. Méchin, M. Hamel, “Sensitive and transportable gadolinium-core plastic scintillator sphere for neutron detection and counting”, *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research A*, Vol. 828, pp. 181-190 (2016).

J. Dumazert, R. Coulon, V. Kondrasovs, K. Boudergui, “Compensation scheme for online neutron detection using a gadolinium-covered CdZnTe sensor”, soumis à *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research A*.

Publications en revue de rang A (2^{ème} auteur) :

G. H. V. Bertrand, J. Dumazert, F. Sguerra, R. Coulon, G. Corre, M. Hamel, “Understanding behavior of different metals in loaded scintillators: discrepancy between gadolinium and bismuth”, *Journal of Materials Chemistry C*, Vol. 3, pp. 6006-6011 (2015).

R. Coulon, J. Dumazert, V. Kondrasovs, S. Normand, “Implementation of a nonlinear filter for online nuclear counting”, *Radiation Measurements*, Vol. 87, pp. 13-23 (2016).

R. Coulon, J. Dumazert, V. Kondrasovs, E. Rohée, S. Normand, “Estimation of nuclear counting by a nonlinear filter based on a hypothesis test and a double exponential smoothing”, *IEEE Transactions on Nuclear Science*, Vol. 63, Iss. 5, pp. 2671-2676 (2016).

Brevets :

R. Coulon, J. Dumazert, G. Bertrand, M. Hamel, F. Sguerra, “Dispositif de détection de neutrons thermiques et dispositif de comptage de neutrons thermiques associé”, Commissariat à l’Energie Atomique, demande déposée le 24/10/2014 sous le n° FR1460266, publiée le 29/04/2016 sous le n° FR3027687.

J. Dumazert, F. Carrel, R. Coulon, M. Hamel, “Dispositif de détection de neutrons thermiques, comportant une coquille de scintillateur plastique enveloppant un cœur de gadolinium ou de cadmium, et dispositif de comptage de neutrons thermiques associé”, Commissariat à l’Energie Atomique, demande déposée le 16/03/2015 sous le n° FR1552110.

R. Coulon, J. Dumazert, V. Kondrasovs, “Système de détection de neutrons et procédé de détection associé”, Commissariat à l’Energie Atomique, demande déposée le 20/10/2015 sous le n° FR1560002.

R. Coulon, J. Dumazert, M. Bakkali, “Système et procédé de détection de source radioactive avec correction d'effet d'écran”, Commissariat à l’Energie Atomique, demande déposée le 15/04/2016 sous le n° FR1653358.

R. Coulon, J. Dumazert, M. Hamel, F. Carrel, “DéTECTEUR de neutrons, à plastique scintillant, entourant un cœur de gadolinium ou de cadmium, et couverture scintillante dopée ou couverte par du bore ou du lithium, et dispositif de comptage de neutrons associé”, Commissariat à l’Energie Atomique, demande déposée le 04/05/2016 sous le n° FR1654066.

Conférences internationales (1^{er} auteur) :

J. Dumazert, G. H. V. Bertrand, R. Coulon, M. Hamel, F. Sguerra, C. Dehé-Pittance, S. Normand L. Méchin, “Gadolinium-loaded plastic scintillators for thermal neutron detection and counting using photon response compensation”, *CBRN Research and Innovation Conference 2015*, Antibes, France, 16-19 mars 2015.

J. Dumazert, R. Coulon, G. H. V. Bertrand, M. Hamel, F. Sguerra, C. Dehé-Pittance, S. Normand L. Méchin, “Compensated gadolinium-loaded plastic scintillators for thermal neutron detection”, *4th International Conference on Advancements in Nuclear Instrumentation Measurements Methods and their Applications (ANIMMA) 2015*, Lisbonne, Portugal, 20-24 avril 2015.

J. Dumazert, R. Coulon, V. Kondrasovs, K. Boudergui, G. Sannié, J. Gameiro, S. Normand, L. Méchin, “Hypothesis test for the detection of constant speed radiation moving sources”, *4th International Conference on Advancements in Nuclear Instrumentation Measurements Methods and their Applications (ANIMMA) 2015*, Lisbonne, Portugal, 20-24 avril 2015.

J. Dumazert, R. Coulon, F. Carrel, F. Sguerra, E. Rohée, S. Normand, L. Méchin, M. Hamel, “Gadosphere: a high-scale plastic scintillator sphere with a metal gadolinium core for thermal neutron detection and counting”, *2015 IEEE Nuclear Science Symposium and Medical Imaging Conference (NSS/MIC)*, San Diego, Etats-Unis, 1-7 novembre 2015.

J. Dumazert, R. Coulon, M. Hamel, S. Normand, L. Méchin, G. H. Bertrand, “Gadolinium and terbium-covered bismuth-loaded plastic scintillators for thermal neutron detection”, *2016 IEEE Symposium On Radiation Measurements and Applications (SORMA)*, Berkeley, Etats-Unis, 22-26 mai 2016.

J. Dumazert, R. Coulon, F. Carrel, S. Normand, L. Méchin, M. Hamel, “Gadolinium-core based polyvinyltoluene plastic scintillator sphere for neutron detection and counting”, *2016 IEEE Symposium On Radiation Measurements and Applications (SORMA)*, Berkeley, Etats-Unis, 22-26 mai 2016.

J. Dumazert, R. Coulon, M. Hamel, S. Normand, L. Méchin, G. H. Bertrand, “Gadolinium and terbium-covered bismuth-loaded plastic scintillators for thermal neutron detection”, *2016 International Symposium on Occupational Exposure management at nuclear facilities* (ISOE), Bruxelles, Belgique, 1-3 juin 2016.

Conférences internationales (2^{ème} auteur) :

R. Coulon, T. Tith, E. Rohée, J. Dumazert, K. Boudergui, S. Normand, “A large volume and room temperature gamma spectrometer for environmental radiation monitoring”, *2014 International Symposium on Occupational Exposure management at nuclear facilities* (ISOE), Berne, Suisse, 9-11 avril 2014.

M. Hamel, G. H. V. Bertrand, F. Carrel, R. Coulon, J. Dumazert, E. Montbarbon, F. Sguerra, “Current status on plastic scintillators modifications”, *4th International Conference on Advancements in Nuclear Instrumentation Measurements Methods and their Applications* (ANIMMA) 2015, Lisbonne, Portugal, 20-24 avril 2015.

R. Coulon, J. Dumazert, V. Kondrasovs, E. Rohée, S. Normand, “Nuclear counting filter based on a Centered Skellam Test and a Double Exponential Smoothing”, *4th International Conference on Advancements in Nuclear Instrumentation Measurements Methods and their Applications* (ANIMMA) 2015, Lisbonne, Portugal, 20-24 avril 2015.

R. Coulon, J. Dumazert, “Nuclear signal simulation applied to gas ionizing chambers”, *4th International Conference on Advancements in Nuclear Instrumentation Measurements Methods and their Applications* (ANIMMA) 2015, Lisbonne, Portugal, 20-24 avril 2015.

R. Coulon, J. Dumazert, “Self-shielding compensation for moving source detection”, *2016 IEEE Symposium On Radiation Measurements and Applications* (SORMA), Berkeley, Etats-Unis, 22-26 mai 2016.

R. Coulon, V. Kondrasovs, J. Dumazert, K. Boudergui, “Neutron detection using gadolinium-covered CdZnTe detector”, *2016 International Symposium on Occupational Exposure management at nuclear facilities* (ISOE), Bruxelles, Belgique, 1-3 juin 2016.

Encadrement :

Stage de Master 2^{ème} année « Physique des Rayonnements, Détecteurs, Instrumentation et Imagerie » de Mlle MONTBARBON Eva, intitulé *Caractérisation de scintillateurs plastiques innovants* et portant sur la mise en place d’une chaîne de spectroscopie numérique (2014).