Université Paul Cézanne - Faculté des Sciences et Techniques

IRSIN INSTITUT DE RADIOPROTECTION ET DE SÛRETÉ NUCLÉAIRE Définition par Modélisation, Optimisation et Caractérisation d'un Système de Spectrométrie de Neutron par Sphères de Bonner Étendu au Domaine des Hautes Énergies

par Sébastien Serre

Directeur de thèse : Didier Paul

Co-encadrants : Véronique Lacoste, Karine Castellani-Coulié

Travaux de thèse réalisés à l'Institut de Radioprotection et de Sûreté Nucléaire, Laboratoire de Métrologie et de Dosimétrie des Neutrons



Institut Matériaux Microélectronique Nanosciences de Provence UMR 6242 CNRS, Universités Paul Cézanne, Provence et Sud Toulon-Var



Système de management de la qualité IRSN certifié

Marseille, 14 décembre 2010

Plan de la présentation

- 1. Contexte & motivations
- 2. Spectrométrie des neutrons par la technique des Sphères de Bonner
- 3. Définition par modélisation du Spectromètre de neutron
- 4. Extension du Spectromètre de neutron au domaine des hautes énergies
- 5. Caractérisation par simulations Monte Carlo du Spectromètre de neutron
- 6. Tests de mesure auprès d'une source neutronique ²⁴¹Am-Be de référence
- 7. Caractérisation par simulations Monte Carlo de la réponse du Spectromètre aux Hautes Énergies
- 8. Conclusion & perspectives





Sébastien SERRE

3

Missions du Laboratoire de Métrologie et de Dosimétrie des Neutrons

 \rightarrow Caractérisation des champs de neutrons aux postes de travail :

Industries, installations médicales et de recherche

 \Rightarrow Importantes demandes pour la caractérisation de champs de neutrons qui

s'étendent jusqu'au domaine des hautes énergies :

Environnement neutronique atmosphérique / Analyse du Soft Error Rate aux altitudes terrestres Installations émergentes de proton thérapie / Dosimétrie d'ambiance & dosimétrie individuelle du patient





IRS

⇒ Développement d'un nouveau système de spectrométrie de neutron basé sur le principe des sphères de Bonner

14 décembre 2010



Emergence des aléas logiques jusqu'aux applications terrestres

1960 : Emergence de la problématique des effets des rayons cosmigues sur l'électronique terrestre commercialisée

Aujourd'hui, le rayonnement des neutrons atmosphériques = une des principales causes d'apparition spontanée d'erreurs réversibles et non destructives dans les circuits mémoriels digitaux

6









A l'origine du système généralisé des sphères de Bonner...



Les détecteurs actifs de neutrons thermiques

Type de détecteur	Réaction de détection (/de conversion)	Section efficace de la réaction (E _n =0.025 eV)	 Détection indirecte: → Réaction nucléaire exo énergétique (énergie Q) → Libération de particules chargées → Mesure du dépôt d'énergie dans le volume actif de détection (charge électrique) 	
Cristal scintillateur ⁶ Lil	⁶ Li(n,α)T (Q=+4.78 MeV)	940 barn		
Compteur proportionnel gazeux ¹⁰ BF ₃	¹⁰ B(n,α) ⁷ Li (Q=+2.792 MeV)	3843 barn		
Compteur proportionnel gazeux ³ He	³ He(n,p)T (Q=+764 keV)	5321 barn		



1 neutron détecté ≡ 1 'pulse' électrique

Chaîne électronique d'acquisition

'Spectre' d'impulsions électriques

Taux de comptage de neutrons détectés associé à chaque sphère modératrice



Définition et formalisme mathématique de la spectrométrie des neutrons

Fluence de particules Φ :

Quotient de dN par da, où dN est le nombre de particules incidentes sur une sphère de section da

Réponse en fluence de neutron d'une sphère de Bonner de diamètre *d*, munie d'un détecteur central thermique actif :





Choix du développement d'un spectromètre de neutron par sphères de Bonner pour la caractérisation de l'environnement neutronique atmosphérique

Système de sphères de Bonner ⇔ Système multi sphère ⇔ "Bonner Sphere Spectrometer " ('BSS')





 Modélisation d'un jeu de sphères de polyéthylène (C₂H₄)_n comprenant 10 diamètres différents :
 3", 3.5", 4", 4.5", 5", 6", 7", 8", 10" et 12"

densité massique considérée : 0.95 g/cm³

Détecteur central de neutrons thermiques considéré et modélisé :

Choix d'un compteur proportionnel gazeux

sphérique à ³He

➡ Modèle LND 2705, LND Inc. (États-Unis)

- Diamètre externe de 5.08 cm
- Grand volume sensible de détection de 64.57 cm³
- Haute pression de remplissage : $p_{\rm He}$ = 9.7 atm
- \Rightarrow Sensibilité théorique aux neutrons thermiques
 - ~ 75 cps / nv ('coups par seconde par unité de fluence')



Compteur Proportionnel ³He



Modélisation simplifiée – Calculs Monte Carlo des fonctions de réponse



Calcul de la Réponse en fluence

Hypothèse :

Chaque événement ³He(n,p)T est enregistré et contribue à l'indication M_d de la sphère de Bonner

Algorithme de calcul soumis à MCNPX : $R_d(E_n) = \sum_{i} \Phi_j a_{\text{source}} n_{He} V_{\text{sensible}} \sigma_{n, p}(E_j)$

Code de transport MCNPX version 2.6.0

 $MCNPX^{TM} := MCNP^{TM} + LAHET^{TM}$

Simulation du parcours neutron (avant interaction) dans la matière



Variable E_i: énergie des neutrons modérés / thermalisés ($E_i \leq E_n$)

Sébastien SERRE

 \Rightarrow Grandeur Φ_i : Estimation de *la fluence par* longueur de trace traversant le volume sensible (*tally* 'F4') Carte physique F4 de MCNPX : $\Phi_j \propto \frac{1}{V_{sensible}} \sum_{k=1}^{K} l_k (E_j)$ IRS

o Domaine en énergie : $E_{\rm n}$ = 10⁻⁹ MeV → $E_{\rm n}$ = 10 GeV

Sections efficaces d'interaction extraites de la bibliothèque ENDF/B-VI.8

→ Evaluations complètes des données nucléaires depuis le régime thermique jusqu'à 20 MeV

 \rightarrow Extension des évaluations jusqu'à 150 MeV (sous-librairie LA150)

 \rightarrow Traitement thermique spécial des diffusions H(n,n)H dans le polyéthylène : Vibrations des molécules (CH₂)_n \Rightarrow Matrice S(α , β)

 \circ Au-delà de 150 MeV, Modèle physique de Bertini couplé avec le générateur FLUKA (E_n ≥ 3.5 GeV)

 \rightarrow Zone de transition 20 $\leq E_n \leq$ 150 MeV \Rightarrow Option physique "*mix and match*" active

○ Incertitude statistique MC du tally F4 pour $R_d(E_n)$ $\frac{s(R)}{m} \approx \frac{1}{m} \leq 2\%$

Établissement de la matrice de réponse au moyen du code MCNPX



 \Rightarrow Chute des réponses à partir de 10 MeV \Rightarrow Très faible efficacité au-delà de 100 MeV

IRS





Technique des matériaux convertisseurs – Etude de la modification de sphères de Bonner conventionnelles

Sélection de matériaux convertisseurs

Matériaux de nature métallique

- \rightarrow Grand numéro atomique / Densité massique élevée
- \rightarrow Grandes sections efficaces de réactions (*n*,x*n*)
- Seuil des réactions (n,2n') ~ 8 MeV
 ⇒ Emission de neutrons secondaires de basses énergies

 A partir de 100 MeV, les processus de spallation entretiennent les réactions (n,xn')
 ⇒ Multiplication neutronique

Métal	Z	ρ (g/cm³)	
Fer (Fe)	26	7.86	
Cuivre (Cu)	29	8.96	
Bismuth (Bi)	83	9.80	
Plomb (Pb)	82	11.34	
Tungstène (W)	74	19.30	

14 décembre 2010



Modélisation simplifiée / Calcul de la réponse par simulations MCNPX de la sphère 7" modifiée

3 positionnements de coquille métallique de 0.5" d'épaisseur







14 décembre 2010

Optimisation de la réponse de trois configurations de sphères métalliques Pb / W pour $E_n > 10$ MeV





Sébastien SERRE

IRSE







Dépendance angulaire des Réponses en fluence calculées



Influence de la densité massique du modérateur $(C_2H_4)_n$ sur les Réponses en fluence calculées









14 décembre 2010





La déconvolution, ou "la résolution du problème inverse de la spectrométrie"



La déconvolution : 'Connaissant' les quantités **M** et **R** on cherche à obtenir la fluence spectrale Φ

IRS

Premiers résultats de déconvolution - Le code de déconvolution GRAVEL

Code de déconvolution employé GRAVEL (Programme GRV_FC33 tiré du package UMG version 3.3)

Code d'ajustement, par *la méthode des moindres carrés*, requérant un **spectre d'entrée estimé**, lequel est ensuite ajusté de manière itérative jusqu'à ce qu'une **solution de spectre** soit obtenue, de sorte que :





7. Caractérisation par simulations Monte Carlo de la réponse du Spectromètre aux Hautes Énergies



7. Caractérisation par simulations Monte Carlo de la réponse du Spectromètre aux Hautes Energies



Simulations numériques / Code de transport MCNPX version 2.6.0 Extension de la réponse en fluence d'un système BSS conventionnel muni d'un compteur haute sensibilité à ³He au domaine des **Hautes Énergies** ($E_n \ge 10$ MeV)

Démultiplication de la probabilité de capture neutronique au sein du compteur ³He central par la production de neutrons secondaires de basses énergies dans les matériaux métalliques convertisseurs (Pb, W) :

Interaction { neutron - noyau lourd } 10 MeV $\leq E_n \leq 150-200$ MeV Bases de données nucléaires évaluées Réactions de "prééquilibre", de "noyau composé" (*évaporation*) réactions (*n*,x*n*') Interaction { neutron - noyau lourd } 150-200 MeV $\leq E_n \leq 10$ GeV Modèles de cascade intranucléaire Réactions de "spallation" réactions (*n*,x*n*')

IRS

7. Caractérisation par simulations Monte Carlo de la réponse du Spectromètre aux Hautes Energies

Etude des bases de données nucléaires évaluées "Hautes Energies"

Les calculs MCNPX de la matrice de réponse du spectromètre s'appuient sur la base de données nucléaires ENDF/B-VI.8

Plusieurs bibliothèques de données nucléaires évaluées (200 MeV max.) sont laissées au libre choix de l'utilisateur pour effectuer des simulations Monte Carlo au moyen du code de transport MCNPX

Etude et comparaison des bibliothèques de données nucléaires ENDF/B-VI.8, ENDF/B-VII.0 et JEFF-3.1

ENDF/B 'Evaluated Nuclear Data File' (Etats-Unis) / **Code d'évaluation GNASH (150 MeV max.) JEFF** 'Joint Evaluated Fission and Fusion' project (Europe de l'Ouest) / **Code d'évaluation TALYS (200 MeV max.**

Ces bibliothèques ne contiennent pas directement les données nucléaires mesurées, mais sont déterminées par des codes de calcul de sections efficaces correctement ajustés à partir de résultats expérimentaux

En dessous de 20 MeV, bibliothèques complètes et issues en amont d'une grande quantité de données expérimentales

<u>Au-delà de 20 MeV jusqu'à 200 MeV</u>, quasi-inexistence de mesures expérimentales de référence →Prédictions des modèles théoriques GNASH et THALYS par extrapolation de paramètres des données disponibles ⇒Matrices de covariance des données de sections efficaces non disponibles



7. Caractérisation par simulations Monte Carlo de la réponse du Spectromètre aux Hautes Energies

Etude des bases de données nucléaires évaluées "Hautes Energies"

Résultats Sphères 8"W & 9"Pb / Comparaison des bases de données nucléaires avec le modèle CEM03.01



Sphère 9"Pb 30% d'écart max. relevé entre ENDF/B-VI.8 et JEFF-3.1

7. Caractérisation par simulations Monte Carlo de la réponse du Spectromètre aux Hautes Energies

Etude des modèles de cascade intranucléaire

La réaction de spallation



42

7. Caractérisation par simulations Monte Carlo de la réponse du Spectromètre aux Hautes Energies

Cadre théorique de la réaction de spallation

Deux étapes principales [Serber, 1947] :

♦ Une phase rapide (10^{-23} s) de collision entre le noyau cible et le projectile → Suite de collisions individuelles

 \rightarrow Le noyau est laissé dans un état excité

 \Rightarrow Cascade intranucléaire

◆ <u>Une 2^{nde} phase plus lente (10⁻²⁰ s)</u>
 Le préfragment formé évacue son excès
 d'énergie en émettant préférentiellement des neutrons (cas des noyaux lourds)
 → Evaporation

High-energy fission \Rightarrow Evaporation Evaporation or n de-excitation Introduction d'une transition étape Neutrons intermédiaire d'une émission de prééquilibre n $E_{\rm n} \leq 10 \, {\rm MeV}$ Proton (n, xn), (n, f) Nuclear Neutron $(n, \gamma), (n, n p)$ reactions Développement de modèles de cascade (n, n'α) etc. intranucléaire IRSI 14 décembre 2010 Sébastien SERRE 43

Target

nucleus

Incident particle

> ≥ 150 MeV

Etude des modèles de cascade intranucléaire

Intranuclear

cascade

Nucléons

hautes énergies

n

n

Internuclear

cascade

n

π

7. Caractérisation par simulations Monte Carlo de la réponse du Spectromètre aux Hautes Energies

Etude des modèles de cascade intranucléaire 'INC' / MCNPX 2.6.0

Bertini	ISABEL	INCL4	CEM03.01	LAQGSM03.01
H.W. Bertini ORNL	Extension VEGAS	INC - Liège	Dubna INC MEM	Extension QGSM
Évaporation EVAP (Dresner)	Évaporation EVAP (Dresner)	Évaporation ABLA	Évaporation GEM2	Évaporation GEM2
Nucléon-noyau 3.5 GeV Pion-nucléon 2.5 GeV Bertini-Scaled /FLUKA (Nucléons) 10 GeV	Nucléon-noyau Noyau(A≤4)-noyau 1 GeV	Nucléon-noyau 2 GeV Pion-nucléon 2 GeV	Nucléon-noyau 5 GeV Pion-nucléon 2.5 GeV	Toutes particules élémentaires & noyaux 1 TeV

De manière générale, l'incertitude physique majeure associée au pouvoir prédictif des modèles INC :

- → Détermination des distributions angulaires et énergétiques des particules produites par collisions non élastiques
- \rightarrow Détermination des multiplicités de particules

Prédiction de la production de neutrons secondaires par spallation selon modèles INC / MCNPX: Précision ~ 10-15%

IRSI

14 décembre 2010

7. Caractérisation par simulations Monte Carlo de la réponse du Spectromètre aux Hautes Energies

Etude des modèles de cascade intranucléaire 'INC' / MCNPX 2.6.0

Sphère 8"W $150 \text{ MeV} \le E_{n} \le 800 \text{ MeV}$

Ecarts de réponse max. relevés entre CEM03.01 et INCL4 ~25%

Sphère 8"W $150 \text{ MeV} \le E_n \le 10 \text{ GeV}$

Ecarts de réponse max. relevés entre Bertini / Scaled Bertini et LAQGSM ~22%



14 décembre 2010

7. Caractérisation par simulations Monte Carlo de la réponse du Spectromètre aux Hautes Energies

Etude des modèles de cascade intranucléaire 'INC' / MCNPX 2.6.0

Sphère 9″Pb 150 MeV ≤ *E*_n ≤ 800 MeV

Ecarts de réponse max. relevés entre CEM03.01 et INCL4 ~18%

Sphère 9"Pb 150 MeV ≤ *E*_n ≤ 10 GeV

Ecarts de réponse max. relevés entre Bertini / Scaled Bertini et LAQGSM ~18%



7. Caractérisation par simulations Monte Carlo de la réponse du Spectromètre aux Hautes Energies



7. Caractérisation par simulations Monte Carlo de la réponse du Spectromètre aux Hautes Energies



7. Caractérisation par simulations Monte Carlo de la réponse du Spectromètre aux Hautes Energies

Sensibilité du spectromètre aux particules chargées atmosphériques



7. Caractérisation par simulations Monte Carlo de la réponse du Spectromètre aux Hautes Energies



8. Conclusion & perspectives



8. Conclusion générale

✤ Définition par modélisation, optimisation et réalisation d'un système de spectrométrie de neutron par sphères de Bonner de haute sensibilité et étendu au domaine des hautes énergies

Développement abouti d'un spectromètre de neutron destiné à la mise en œuvre de campagnes de mesure en environnement radiatif naturel atmosphérique

Acquisition des données du spectre des neutrons atmosphériques sur site potentiel de mesure Pic du Midi (9462 ft, 5.59 GV)

Temps de mesure estimé ~10 heures ⇔ acquisition parallèle des 13 sphères avec une statistique minimum requise de 10 000 coups neutron /sphère

* Caractérisation précise et détaillée du spectromètre par simulations numériques MCNPX

- ✓ Etablissement de la matrice de réponse complète du spectromètre
- ✓ Validité des calculs MCNPX de réponse / Vérification semi-empirique
- ✓ Isotropie de la réponse du spectromètre
- ✓ Influence des paramètres densité $(C_2H_4)_n$ et ³He sur la détermination de la réponse du spectromètre

✤ Tests de mesure auprès d'une source ²⁴¹Am-Be de référence

 \Rightarrow Résultats de validation expérimentale préliminaire des fonctions de réponse calculées ($E_n \le 10 \text{ MeV}$)

* Caractérisation de la réponse du spectromètre dans le domaine des Hautes Énergies

⇒Etude approfondie et maîtrise du contenu de la physique du noyau et des réactions nucléaires intégrée dans le code de transport MCNPX au-delà de 10 MeV jusqu'au GeV



8. Perspectives

Inter-comparaison des résultats de calculs de réponse MCNPX avec d'autres codes de transport Monte Carlo tels que FLUKA, GEANT4...

Poursuite de la validation expérimentale de la matrice de réponse auprès de sources polyénergétiques (²⁴¹Am-Be, ²⁵²Cf) selon recommandations ISO

> Validation expérimentale auprès de faisceaux monénergétiques $(E_n \le 20 \text{ MeV})$ caractérisés de référence (tel que ceux du LMDN, IRSN)

Exploitation des données de mesures effectuées auprès des faisceaux Hautes Energies (50 et 150 MeV) du TSL (The Svedberg Laboratory, Suède)

Poursuite de la validation expérimentale de la matrice de réponse auprès d'installations fournissant des champs neutroniques Hautes Energies de référence (tels que ceux du CERF, CERN)

Etape ultime : Mesure de l'environnement neutronique atmosphérique sur site en altitude





IRSN

Travaux de thèse présentés au « 8th European Workshop



on RADiation Effects on Components and Systems », Sept. 2008, Jyväskylä, Finland

✤ <u>S. Serre</u>, K. Castellani-Coulié, D. Paul, and V. Lacoste

"Optimization Using Monte Carlo Calculations of a Bonner Sphere Spectrometer

Extended to High Energies for the Neutron Environments Characterization"

IEEE Transactions On Nuclear Science, Vol. 56, No. 6, 3582-3590,

December 2009

