

EUR 3624 f

COMMUNAUTÉ EUROPÉENNE DE L'ÉNERGIE ATOMIQUE - EURATOM

**ÉTUDE THÉORIQUE ET EXPÉRIMENTALE
DES FLUX DE NEUTRONS THERMIQUES
DANS DES HYDROCARBURES
ET APPLICATION
DES RÉSULTATS À LA MESURE
DE LEUR DENSITÉ ET À LA RECHERCHE
DE LEUR COMPOSITION**

par

P. COROMPT, J. MOLINARI et P. CALMELS
(C.E.N., Grenoble)

1968

LIBRARY



Rapport établi par S.E.D.A.D
Société d'Études et de Développement des Applications Dérivées
Électronique et Mécanique, Paris - France

Contrat Euratom N° 089-64-12 IRAF

AVERTISSEMENT

Le présent document a été élaboré sous les auspices de la Commission des Communautés Européennes.

Il est précisé que la Commission des Communautés Européennes, ses contractants, ou toute personne agissant en leur nom:

ne garantissent pas l'exactitude ou le caractère complet des informations contenues dans ce document, ni que l'utilisation d'une information, d'un équipement, d'une méthode ou d'un procédé quelconque décrits dans le présent document ne porte pas atteinte à des droits privatifs;

n'assument aucune responsabilité pour les dommages qui pourraient résulter de l'utilisation d'informations, d'équipements, de méthodes ou procédés décrits dans le présent document.

Ce rapport est vendu dans les bureaux de vente indiqués en 4^e page de couverture

au prix de FF 15,—	FB 150,—	DM 12,—	Lit. 1870,—	Fl. 11,—
--------------------	----------	---------	-------------	----------

Prière de mentionner, lors de toute commande, le numéro EUR et le titre qui figurent sur la couverture de chaque rapport.

Imprimé par N.I.C.I. Gand
Bruxelles, avril 1968

EUR 3624 f

COMMUNAUTÉ EUROPÉENNE DE L'ÉNERGIE ATOMIQUE - EURATOM

**ÉTUDE THÉORIQUE ET EXPÉRIMENTALE
DES FLUX DE NEUTRONS THERMIQUES
DANS DES HYDROCARBURES
ET APPLICATION
DES RÉSULTATS À LA MESURE
DE LEUR DENSITÉ ET À LA RECHERCHE
DE LEUR COMPOSITION**

par

P. COROMPT, J. MOLINARI et P. CALMELS
(C.E.N., Grenoble)

1968



Rapport établi par S.E.D.A.D
Société d'Études et de Développement des Applications Dérivées
Électronique et Mécanique, Paris - France

Contrat Euratom N° 089-64-12 IRAF

RÉSUMÉ

Le contrôle industriel des caractéristiques physico-chimiques d'un hydrocarbure nécessite généralement des prélèvements d'échantillons et des analyses de laboratoire incompatibles avec le développement de l'automatisation et de l'optimisation des unités de production.

On a examiné dans cette étude, la possibilité de tirer parti des rayonnements nucléaires pénétrants pour mesurer, en continu sur une canalisation, la densité et la composition chimique, d'hydrocarbures. La solution retenue consiste à associer, à une mesure d'absorption de rayonnement gamma, une mesure de thermalisation de neutrons issus d'une source scellée d'Amercium-241-Beryllium.

La réalisation d'un appareillage expérimental a été précédée d'une étude expérimentale et théorique sur la diffusion des neutrons dans les hydrocarbures. Les résultats obtenus dans cette étude préliminaire concernent la répartition du flux thermique au voisinage d'une source de neutrons. Ils peuvent être généralisés et étendus à nombre de milieux hydrogénés.

La précision des mesures de densité et de composition chimique (rapport C/H) obtenues par une telle association gamma neutrons, est limitée par les fluctuations statistiques de comptage et surtout par la non linéarité des phénomènes observés. Dans le meilleur des cas, en recourant à des abaques d'étalonnage de la sonde neutronique la précision des mesures obtenues ne dépasse pas 0,2 %.

MOTS CLÉS

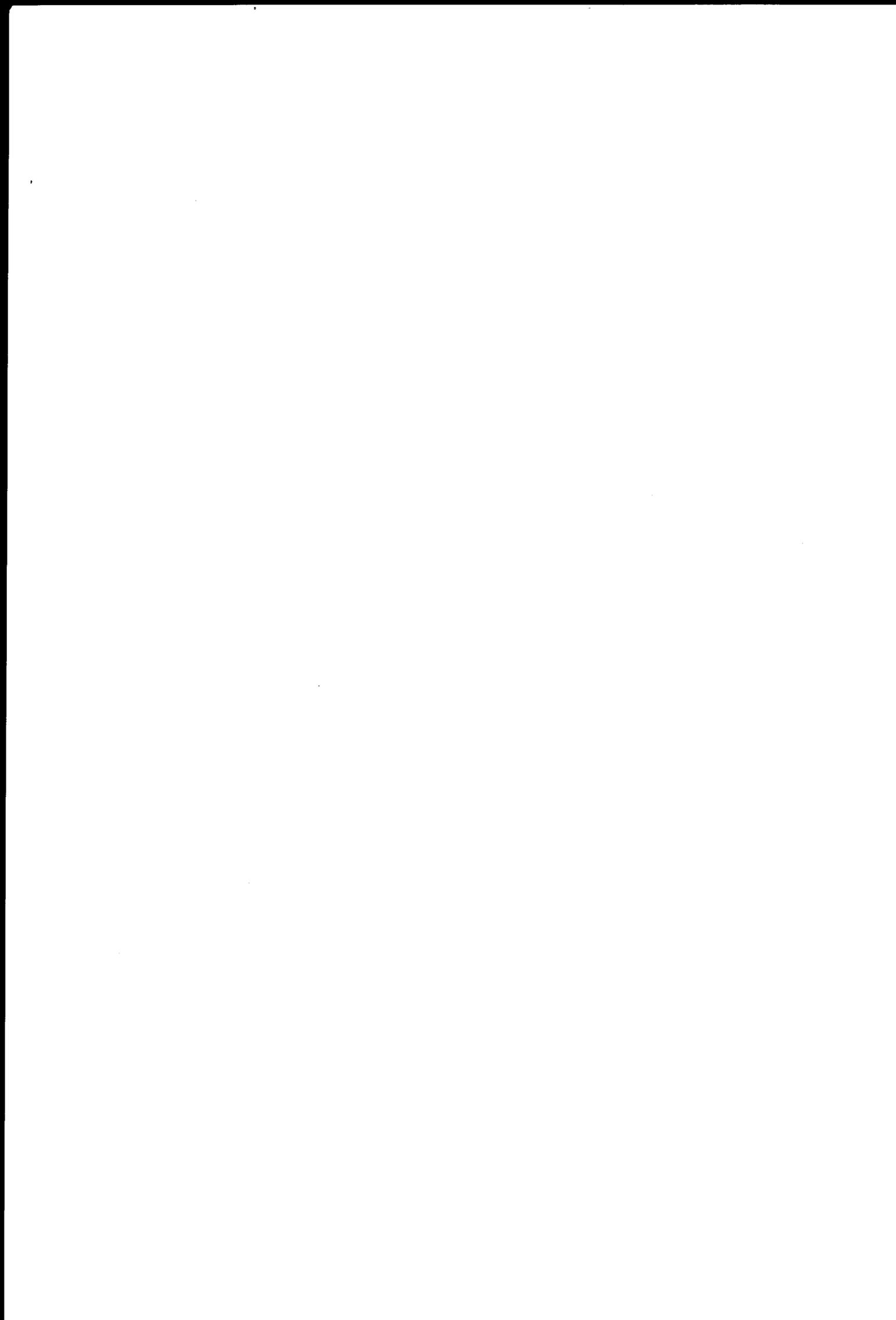
THERMAL NEUTRONS
NEUTRON DETECTION
SCINTILLATION COUNTERS
PROPORTIONAL COUNTERS
NEUTRON SOURCES
ACTIVATION
SENSITIVITY
NEUTRON FLUX
TEMPERATURE
IMPURITIES
ACTIVATION ANALYSIS
HYDROCARBONS
INFRARED RADIATION
SPECTROSCOPY
GAMMA RADIATION
GAGES

TABLE DES MATIERES

	Page
INTRODUCTION	7
1 — ÉTUDE COMPARATIVE DE DIFFÉRENTS TYPES DE DÉTECTEURS DE NEUTRONS THERMIQUES	8
1.1 — SOURCES DE NEUTRONS	9
1.2 — MESURES PAR ACTIVATION	9
1.3 — DÉTECTION PAR SCINTILLATEUR AU BORE	10
1.4 — DÉTECTION PAR TUBES COMPTEURS A TRIFLUORURE DE BORE ENRICHI	10
1.4.1 — Ensemble de détection	10
1.4.2 — Performances des compteurs à BF ₃ utilisés dans les mesures de flux	11
1.4.3 — Montage	12
1.4.4 — Mesures	13
1.4.5 — Résultats	13
1.5 — CONCLUSIONS	13
1.5.1 — Réponse spectrale en énergie	14
1.5.2 — Sensibilité des détecteurs	15
1.5.3 — Allure des cartes de flux	15
1.5.4 — Bibliographie	16
2 — INFLUENCE DE LA TEMPÉRATURE SUR LA DÉTECTION DES NEUTRONS THERMI- QUES PAR COMPTEURS PROPORTIONNELS AU BF ₃	16
2.1 — ÉTUDE DE L'INFLUENCE DES VARIATIONS DE TEMPÉRATURE DU DÉTECTEUR SUR LE TAUX DE COMPTAGE	17
2.1.1 — Appareillage	17
a) Montage expérimental	17
b) Régulation de température et contrôle	17
c) Principe de la mesure	18
2.1.2 — Résultats	18
a) Cyclage thermique d'un détecteur à BF ₃	18
b) Influence de la température sur les courbes caractéristiques d'un détecteur	18
2.1.3 — Essai d'interprétation	19
a) Influence de la section efficace de capture du Bore	19
b) Influence de la pression du gaz de remplissage	19
c) Influence de la géométrie	20
2.2 — INFLUENCE DE LA TEMPÉRATURE DU MILIEU À ÉTUDIER SUR LE TAUX DE COMPTAGE	20
3 — CONTRÔLE DE LA PURETÉ DES PRODUITS ORGANIQUES ÉTUDIÉS	21
3.1 — DENSITÉ	21
3.2 — TENEUR EN IMPURETÉS MINÉRALES — ANALYSE PAR ACTIVATION	22
3.2.1 — Section efficace d'absorption d'un liquide organique et teneurs maximales admissibles en impuretés	22

	Page
3.2.2 — <i>Principe de la mesure</i>	22
a) <i>Éléments dosés par analyse rapide</i>	22
b) <i>Réactions nucléaires d'activation et de décroissance</i>	23
3.2.3 — <i>Résultats des analyses</i>	23
3.3 — TENEUR EN IMPURETÉS ORGANIQUES — SPECTROMÉTRIE INFRA-ROUGE	23
3.4 — RÉSULTATS	23
4 — ÉTABLISSEMENT DES CARTES DE FLUX ET 1 ^{er} ESSAI D'INTERPRÉTATION	24
4.1 — APPAREILLAGE EXPÉRIMENTAL	24
4.1.1 — <i>Montage</i>	24
4.1.2 — <i>Ensemble de détection</i>	25
4.2 — MESURES	25
4.2.1 — <i>Étalonnage et dérive des compteurs à BF₃</i>	25
4.2.2 — <i>Corrections de niveau</i>	25
4.2.3 — <i>Corrections de température</i>	26
4.2.4 — <i>Cartes de flux</i>	26
4.3 — INTERPRÉTATION DES RÉSULTATS	27
4.3.1 — <i>Aspect des cartes de flux</i>	27
4.3.2 — <i>Variation du taux de comptage en fonction de la teneur en hydrogène</i>	28
4.3.3 — <i>Expression du flux de neutrons en fonction des concentrations en hydrogène, en carbone et en oxygène</i>	28
4.3.4 — <i>Recherche des conditions géométriques optimales pour l'obtention d'une relation linéaire entre le flux de neutrons thermiques et les concentrations en hydrogène, carbone et oxygène</i>	29
5 — REPRÉSENTATION THÉORIQUE DES RÉSULTATS EXPÉRIMENTAUX	30
5.1 — REPRÉSENTATION DU FLUX MESURÉ PAR UNE FONCTION	31
5.1.1 — <i>Intérêt d'une fonction représentative</i>	31
5.1.2 — <i>Paramètres intervenant dans la fonction flux</i>	31
5.2 — PRINCIPE DE DÉTERMINATION DE LA FONCTION F	32
5.2.1 — <i>Mécanisme du ralentissement</i>	32
5.2.2 — <i>Mécanisme de la diffusion</i>	32
5.2.3 — <i>Équation du flux</i>	33
5.3 — DÉTERMINATION DE F PAR LA MÉTHODE DE L'ÂGE DE FERMI	34
5.3.1 — <i>Principe du calcul</i>	34
5.3.2 — <i>Valeurs numériques et validité de la méthode</i>	34
5.4 — DÉTERMINATION DE F PAR LA MÉTHODE DE MONTE CARLO	35
5.5 — DÉTERMINATION DE F PAR LA MÉTHODE DES GROUPES	36
5.5.1 — <i>Principes généraux</i>	36
a) <i>Équation du flux dans le milieu expérimental</i>	36
b) <i>Diffusion des neutrons thermiques</i>	37
c) <i>Ralentissement des neutrons rapides</i>	39
5.5.2 — <i>Application de la méthode du premier choc</i>	40
a) <i>Mode de calcul</i>	41
b) <i>Résultats</i>	42
5.6 — APPLICATION À LA RECHERCHE D'UNE FORME ANALYTIQUE SIMPLE DE F	43
5.6.1 — <i>Essais d'une relation linéaire</i>	43

	Page
5.6.2 — Généralisation	45
5.7 — CONCLUSION	45
6 — ATTÉNUATION EXPONENTIELLE D'UN RAYONNEMENT GAMMA DANS LES HYDRO-CARBURES - APPAREILLAGE EXPÉRIMENTAL	45
6.1 — REMARQUES GÉNÉRALES SUR LES JAUGES γ	46
6.1.1 — Principe de la mesure	46
6.1.2 — Généralités sur les jauges gamma	46
6.1.3 — Calcul des caractéristiques géométriques de la jauge	47
6.2 — MONTAGE EXPÉRIMENTAL	47
6.3 — MESURES	48
7 — INTERPRÉTATION DES MESURES ET PRÉCISION.	50
7.1 — PRÉCISION LORSQUE LA MESURE GAMMA EST ASSOCIÉE À UNE MESURE NEUTRONIQUE ASSIMILÉE À UNE LOI LINÉAIRE.	51
7.1.1 — Principe de la mesure	51
7.1.2 — Erreur théorique due à la dispersion fondamentale des résultats de calculs neutroniques	51
7.1.3 — Erreur introduite dans la mesure dans le cas d'un étalonnage à partir des résultats de calculs neutroniques	52
7.1.4 — Erreur introduite dans la mesure lors de l'étalonnage expérimental	53
7.2 — PRÉCISION LORSQUE LA MESURE GAMMA EST ASSOCIÉE À LA MESURE NEUTRONIQUE AU MOYEN D'UNE ABAQUE	53
7.2.1 — Système de représentation utilisé	53
7.2.2 — Correspondance avec les résultats expérimentaux	53
7.2.3 — Méthode d'étalonnage préconisée	54
7.2.4 — Précision	54
7.3 — CONCLUSIONS	55
RÉFÉRENCES BIBLIOGRAPHIQUES	66



INTRODUCTION *

Si la mécanisation et la télécommande sont depuis longtemps généralisées dans l'industrie chimique, le problème du contrôle de la fabrication n'a pas été jusqu'ici complètement résolu. En effet, dans un certain nombre d'industries, même dans l'industrie pétrolière, le contrôle des produits élaborés s'effectue encore généralement par prélèvements d'échantillons et examens de laboratoire dont les temps de réponse proscrivent le développement de l'automatisation et l'optimisation des unités de production.

Les techniques de mesures basées sur l'emploi des radioéléments ont déjà apporté une solution à quelques problèmes d'automatisation de contrôle: mesures de teneur en soufre, mesures de densité (Réf. 1, 2). Mais bien souvent le fonctionnement des appareils basés sur la diffusion et l'absorption de rayonnements bêta ou gamma est perturbé par des phénomènes parasites telle l'influence de la composition chimique du milieu.

En ce qui concerne les hydrocarbures, tout signal, quelle qu'en soit sa nature, sera affecté, à la fois par la densité volumique en hydrogène et par la densité volumique en carbone. L'obtention d'une caractéristique physicochimique d'un hydrocarbure nécessite, par conséquent, au moins deux informations globales indépendantes dont la résolution seule pourra conduire au résultat recherché.

Dans le cas du rayonnement électromagnétique, la seule région, proche de 18 KeV, où les coefficients d'absorption massique du carbone μ_C et de l'hydrogène μ_H ont des valeurs identiques ne pouvait constituer un domaine de mesure satisfaisant, en raison de la faible pénétration du rayonnement. Aux énergies supérieures, le rapport μ_C/μ_H devenant rapidement constant, on ne pouvait espérer obtenir deux informations indépendantes même en se calant à des énergies très différentes comme par exemple celles du cobalt 60 et du césium 137.

Bon nombre d'expérimentateurs (Réf. 3, 4, 5), ont pensé à l'utilisation des neutrons pour obtenir une seconde information. Le comportement du rayonnement neutronique constitué de particules neutres de masse voisine de celle du noyau d'hydrogène est très sensible à la présence de cet élément. Les neutrons, émis avec une énergie de plusieurs MeV, se ralentissent préférentiellement sur les noyaux d'hydrogène par chocs mécaniques. Lorsque l'énergie cinétique atteint le niveau de l'énergie d'agitation thermique des molécules, les neutrons sont très facilement absorbés par les noyaux d'hydrogène.

Trois procédés semblent devoir s'appliquer aux mesures neutroniques:

- a) L'absorption exponentielle d'un faisceau collimaté de neutrons pré-ralentis. Cette solution a été présentée par W.E. Mott et D.F. Rhodes (Réf. 6). Mais elle conduit à l'utilisation de canaux de mesure très fins, de 0,5 cm d'épaisseur, trop rapidement colmatés.
- b) L'atténuation exponentielle par ralentissement et diffusion d'un faisceau collimaté de neutrons rapides. De trop grandes difficultés de collimation semblent devoir faire rejeter cette méthode.
- c) Le ralentissement et la diffusion dans un échantillon de grand volume (quelques dizaines de décimètres cubes) afin d'éliminer les effets de parois, de neutrons rapides émis par une source isotopique. Ce procédé offre en outre l'avantage de supprimer les dangers de colmatage des cellules de mesure dans les applications industrielles.

C'est le choix de ce dernier procédé qui nous a amenés à étudier les lois de la diffusion et de l'absorption des neutrons dans différents milieux hydrogénés. Pour des raisons inhérentes

* Manuscrit reçu le 20 juin 1967.

aux difficultés de détection des neutrons rapides, nos investigations se sont bornées à l'emploi des neutrons thermiques. D'autre part, la complexité des lois de ralentissement et de diffusion des neutrons thermiques conduisent, suivant l'exemple d'autres chercheurs (Réf. 4, 5, 3), à rechercher empiriquement une relation simple entre l'intensité du flux de neutrons détecté et les concentrations volumiques en hydrogène et en carbone.

A priori, la relation recherchée peut dépendre des configurations relatives de la source et du détecteur. Aussi, les essais comportent-ils une cartographie complète du flux dans différents milieux. Pour maîtriser plus rigoureusement les variations du paramètre choisi, on a utilisé des détecteurs et une source quasi ponctuels. Cette solution permet à la fois d'entreprendre une étude théorique du dispositif choisi et de passer aisément du montage expérimental à un appareillage industriel.

L'interprétation des cartes de flux a d'abord porté sur la recherche d'une loi linéaire reliant les résultats de comptage, pour une distance donnée, aux teneurs en hydrogène, carbone et même oxygène pour certains milieux. Pour une distance privilégiée, une relation quasi linéaire a pu être mise en évidence. Mais la dispersion des résultats expérimentaux dépasse trop largement les erreurs de mesure pour que cette relation ait un sens physique. Des essais de regroupement par familles chimiques n'ayant pas apporté une explication satisfaisante à la dispersion évoquée, l'interprétation doit être recherchée dans les mécanismes de ralentissement, diffusion et absorption des neutrons. En fait, aucune formule analytique générale ne relie simplement flux et composition du milieu. Il est donc nécessaire de calculer pour chaque milieu la répartition du flux. On peut évaluer à partir de ces valeurs, l'évolution de l'intensité du flux thermique en fonction de la teneur en hydrogène de milieux dont la teneur en carbone demeurerait constante. Il est alors possible de représenter graphiquement l'évolution des taux de comptage lorsqu'un seul paramètre varie. Cette méthode permet de rendre compte de la dispersion des points expérimentaux lorsque les teneurs en carbone et en hydrogène varient simultanément. Naturellement, seuls les milieux ne comportant que deux paramètres, hydrogène et carbone, sont susceptibles d'une représentation simple dans un plan. La mise au point d'un système d'abaques à double entrée permettant d'introduire les résultats des mesures gamma et neutroniques, donne une solution graphique du problème à deux paramètres. Cette solution théorique explique de façon satisfaisante les résultats expérimentaux, et les seules dispersions constatées ne proviennent plus que des erreurs statistiques de mesure. La précision des mesures de teneurs en hydrogène et en carbone, dans les meilleures conditions de stabilité de comptage, avoisine alors le pour mille.

La mise au point des essais et des calculs ayant permis d'aboutir à ces conclusions, représentent une longue étude dont seuls les principes généraux sont présentés ici. Les compléments d'information figurant dans l'étude complète, pourront être fournies par le Bureau Eurisotop d'Euratom.

1 — ÉTUDE COMPARATIVE DE DIFFÉRENTS TYPES DE DÉTECTEURS DE NEUTRONS THERMIQUES

Afin de réaliser des cartes de flux, on s'est proposé d'expérimenter différents types de détecteurs présentant un volume utile suffisamment faible pour fournir des informations quasi-ponctuelles. Trois modes de détection ont été retenus et ont fait l'objet d'une étude approfondie:

- détection par activation au moyen de disques d'indium de diamètre 2,5 cm et d'épaisseur de l'ordre du dixième de mm.
- détection par compteur gazeux à BF_3 de 1 cm de diamètre et de 3 cm de longueur utile.
- détection par scintillateur plastique dopé au bore de 8 mm de diamètre et de 2 mm d'épaisseur.

Dans chacun des cas on s'est efforcé de limiter la perturbation du flux en choisissant des supports de détecteurs de faibles dimensions et peu absorbants (film polyéthylène dans le premier cas, tube extra mince en acier inox dans les autres cas).

Les mesures obtenues ont été comparées entre elles du point de vue de la sensibilité, de la précision et de la facilité de mise en œuvre.

On a montré que la mesure ponctuelle recherchée pouvait être pratiquement réalisée au moyen d'un petit compteur à BF_3 qui présente, sur les autres types de détecteurs, les avantages d'une meilleure sensibilité et d'une mise en œuvre aisée.

En outre, contrairement aux autres modes de détection, la sensibilité aux neutrons épithermiques du détecteur à BF_3 reste, en définitive, négligeable, ce qui permet d'escompter des mesures plus spécifiques.

Ces mesures préliminaires ont été effectuées dans une cuve en polychlorure de vinyle de 400 mm de diamètre et de 420 mm de haut. Cette cuve était remplie d'eau permutée.

1.1 — Sources de neutrons

Les sources utilisées, $\text{Am}^{241}\text{-Be}$, d'une activité nominale de 100 mCi et de 300 mCi, proviennent du Centre d'Amersham où leurs flux neutroniques ont été évalués respectivement à $2,75 \cdot 10^5$ et $8,2 \cdot 10^5$ neutrons par seconde dans 4π .

L'allure du spectre est comparable à celle d'un spectre de source de Po-Be avec un maximum d'intensité entre 3 et 5 Mev. L'énergie maximale du spectre se situe vers 11,5 Mev. Le spectre d'émission neutronique des sources Am-Be a été étudié par N. Thompson et M.E. Anderson (Réf. 7, 8). Les énergies des gamma émis sont, dans l'ordre d'abondance décroissante: 60, 17 et 13 Kev, les doses de rayonnement résultantes demeurent assez faibles (Réf. 9).

Livrées scellées dans deux cylindres concentriques en acier soudé de 0,8 mm d'épaisseur, ces sources ont un encombrement de 17,4 mm hors tout, pour le diamètre, et 19,4 mm pour la hauteur. Chaque source est logée à l'extrémité d'un tube d'acier d'un diamètre intérieur de 19 mm, d'épaisseur 5/10 mm et de longueur 800 mm; elle repose sur le fond soudé par l'intermédiaire d'une cale de plexiglass de 1 mm d'épaisseur. Une barre de plexiglass de 18 mm de diamètre et de 800 mm de long, assure par clavetage le blocage de l'ensemble (voir planche 1.4.3).

Cette disposition a été adoptée pour atténuer la perturbation du flux au voisinage du support. En effet, la barre de plexiglass (méthacrylate de méthyle - $\text{C}_5\text{H}_8\text{O}_2$) a une composition chimique très proche de celle des liquides organiques devant être contenus dans la cuve de mesure.

1.2 — Mesures par activation

Parmi les éléments couramment utilisés en dosimétrie par activation, l'indium se caractérise par une section efficace aux neutrons lents très élevée et une période suffisamment courte permettant de limiter à une journée le cycle de mesures: activation, comptage, désactivation. Un autre avantage de l'indium, matériau extrêmement ductile, réside dans la simplicité relative de son façonnage.

La section efficace de l'indium présente, en fonction de l'énergie, un pic de résonance caractéristique à 1,44 eV et l'activité totale de l'indium résulte de la juxtaposition des réponses thermique et résonnante. La méthode du filtre de cadmium, élément qui absorbe les neutrons d'énergie inférieure à 0,4 eV permet de distinguer l'activité due aux neutrons épithermiques et, par différence avec la réponse globale, d'établir la valeur de la réponse thermique. Ces différentes grandeurs figurent dans l'expression du « Rapport Cadmium ».

$$R = \frac{\text{Réponse de l'indium}}{\text{Réponse de l'indium gainé de cadmium}}$$

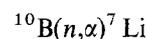
$$R = \frac{\text{Réponse thermique} + \text{Réponse résonnante}}{\text{Réponse résonnante}}$$

Les caractéristiques géométriques de l'échantillon activé agissent à la fois sur l'activation (formation d'une dépression de flux) et sur le comptage bêta lors de la mesure de l'activité. Un examen exhaustif des corrections intervenant dans les mesures, figure dans les travaux de C.W. Tittle (Réf. 10) ou les ouvrages de Friedlander et Kennedy (Réf. 9) et de Sharpe et Taylor (Réf. 11).

Cette méthode de mesure est très éloignée d'une application industrielle en raison des difficultés de manipulation. Elle n'a servi qu'à une préétude destinée à vérifier, puisqu'il est théoriquement possible de travailler avec des échantillons aussi petits que possible, si les cartographies effectuées avec des petits compteurs au trifluorure de bore traduisent bien la réalité physique (planche 1.5.3).

1.3 — Détection par scintillateur au bore

La détection des neutrons repose sur la réaction nucléaire:



Les alpha excitent l'agent fluorescent (ZnS) incorporé au borax enrichi en bore 10. L'émission lumineuse est recueillie sur la face sensible d'un photomultiplicateur qui amplifie le signal électronique issu de la photocathode.

Afin de perturber le moins possible le flux neutronique au voisinage du point de mesure, les dimensions du scintillateur utilisé ont été réduites: diamètre 8 mm, épaisseur 2 mm. De plus, le couplage du scintillateur à la photocathode est assuré par un guide de lumière en « plexiglass » d'un diamètre de 8 mm et d'une longueur de 102 cm recouvert latéralement d'une feuille réfléchissante d'aluminium. Ce dispositif permet de placer le photomultiplicateur hors du liquide étudié.

Le guide de lumière ne semble pas détecter des neutrons rapides par protons de recul, mais il engendre un bruit de fond en parachevant la thermalisation d'un certain nombre de neutrons déjà ralentis dans le milieu.

Ce procédé n'apporte pas une plus grande précision dans le tracé des cartes de flux et en raison de la grande instabilité du gain des photomultiplicateurs; en outre, son emploi ne constitue pas une simplification technologique.

1.4 — Détection par tubes compteurs à trifluorure de bore enrichi

1.4.1. Ensemble de détection

La détection des neutrons thermiques par les compteurs gazeux à BF_3 repose sur la réaction nucléaire $^{10}\text{B}(n,\alpha)^7\text{Li}$. L'énergie cinétique totale des produits de cette réaction (particule alpha et noyau de lithium) atteint 2,8 MeV. Ces particules libèrent sur leur trajectoire des électrons et des ions positifs. Si la tension anode-cathode est suffisamment élevée (régime proportionnel), des électrons considérablement accélérés, ionisent à leur tour d'autres molécules gazeuses suivant un processus en avalanche entraînant une multiplication des charges collectées aux électrodes. A l'anode, on recueille aux bornes d'une résistance de charge de 0,5 à 4 M Ω des impulsions de tension de l'ordre d'une dizaine de mV.

Les électrons résultant des interactions du rayonnement gamma étant notablement moins ionisants que les alpha provenant des réactions nucléaires, les impulsions correspondantes seront d'amplitude plus faible que les précédentes. Il est donc possible de fixer, après amplification, le seuil du discriminateur à une valeur telle que seules les impulsions dues aux neutrons soient comptées.

La tension d'alimentation des tubes est comprise, selon les modèles, entre 1400 et 2200 V.

Les faibles impulsions recueillies nécessitent une préamplification dès la sortie du tube. A l'aval de ce préamplificateur de gain 10 (BPF 1), l'amplitude de ces impulsions est, selon le type de compteur utilisé, comprise entre 20 mV et 140 mV.

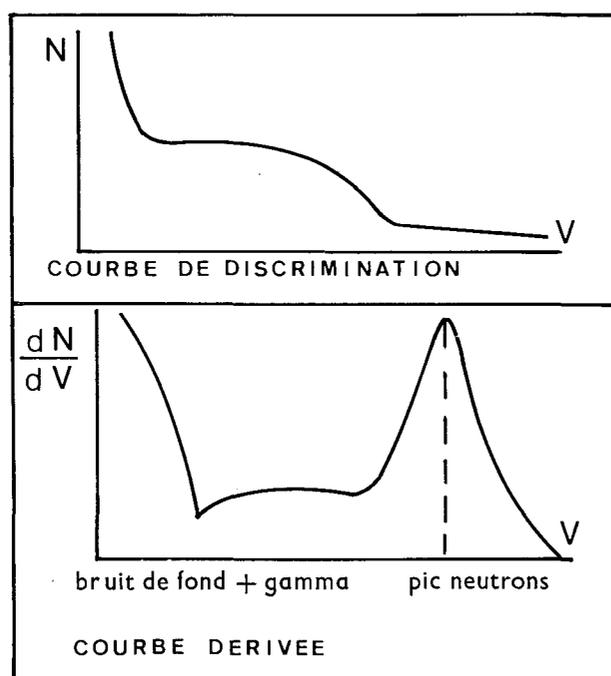
Le discriminateur (TU 2) admettant des impulsions de 2 à 100 V, il est nécessaire d'insérer dans cette chaîne un amplificateur (TAP 10000) dont le taux d'amplification puisse être compris entre 500 et 2000

1.4.2. Performances des compteurs à BF_3 utilisés dans les mesures de flux

Comme on l'a souligné en (1.4.1), au-dessus d'une certaine valeur de la tension seuil (V), pour une haute tension donnée (THT), les impulsions comptées (N) ne proviennent que des neutrons détectés. La tension moyenne de ces impulsions étant très supérieure à celle des impulsions parasites, le taux de comptage cesse pratiquement de diminuer tant que la tension du pic « neutrons » n'est pas atteinte.

Cette dernière valeur peut être éventuellement précisée en traçant la courbe dérivée

$$\frac{dN}{dV} = f(V)$$



Le point de fonctionnement optimal d'un détecteur à BF_3 ne peut être obtenu qu'en traçant un réseau complet de courbes de discrimination $N = f(V)$ pour différentes hauteurs tensions d'alimentation (THT).

On remarque sur ce réseau (planche 1.4.2) un domaine (N, V) où les variations de tension ont une faible importance. En effet, les courbes de comptage à seuil constant présentent une

portion rectiligne à pente faible qui caractérise la sensibilité du compteur aux fluctuations de THT.

Compte tenu de la difficulté d'obtenir des hautes tensions stabilisées, on aura avantage à se fixer le seuil pour lequel la pente est la plus faible et une valeur moyenne de haute tension telle que le point de fonctionnement soit situé au milieu de cette portion rectiligne de la courbe.

Les compteurs au trifluorure de bore utilisés sont de fabrication LCT. Compte tenu de la nécessité de procéder à des mesures « ponctuelles », seuls pouvaient être retenus des compteurs du type NE 3/1 (dimensions utiles: longueur 3 cm, diamètre 1 cm). Deux séries de détecteurs de ce type ont été expérimentés:

0,1 NE 3/1

0,2 NE 3/1

Les nombres 0,1, 0,2 indiquent la sensibilité des compteurs de chaque série sous un flux de 1 n/cm^2 . La série 0,1 présentant sur la série 0,2 l'avantage d'une meilleure stabilité, c'est la série 0,1 qui a été adoptée pour les mesures.

Les courbes de discrimination permettent de situer la tension optimale de seuil entre 10 et 14 V (se reporter à l'exemple de la planche 1.4.2). Les courbes obtenues en fixant cette fois la tension seuil à l'intérieur du domaine précédemment défini et en faisant varier la tension d'alimentation (courbes de comptage à seuil constant) présentent des « paliers » caractéristiques.

Les performances de différents compteurs appartenant à la série 0,1 NE 3/1 se sont révélées extrêmement proches, et le point de fonctionnement recherché est le même pour tous les exemplaires examinés, à savoir:

tension seuil	12 V
THT	1600 V

La variation du taux de comptage reste linéaire entre 1500 et 1700 V, la variation du taux de comptage (« pente ») étant de l'ordre de 4 à 5 % pour 100 volts. Cette valeur est notablement supérieure à celle indiquée par le constructeur (2 à 3 %).

1.4.3. Montage

Le détecteur, de longueur hors tout 75 mm et de diamètre 10 mm, est logé à l'extrémité d'un tube d'acier inox de diamètre 12×14 mm et de longueur 800 mm.

Le tube porte-source et le tube porte-détecteur sont plaqués contre des rainures de guidage fraisées, la première dans une potence fixe, la seconde dans une potence solidaire d'un chariot mobile coulissant le long du châssis commun.

Le guidage rigoureux du chariot mobile est assuré dans le sens longitudinal par deux cavaliers de centrage reposant sur l'une des barres du support, l'appui sur la seconde barre conservant deux degrés de liberté.

La distance source-détecteur est lue directement sur une réglette fixée sur le châssis (planche 1.4.3).

Compte tenu de l'encombrement du préamplificateur BPF1, il a été nécessaire de le relier au détecteur par un câble coaxial d'une longueur totale de 100 cm.

Le tiroir préamplificateur est du type TAP 10000.

Le tiroir discriminateur du type TU 2.

L'échelle de comptage est munie d'un chronomètre électrique, les mesures s'effectuant avec « prétemps ».

L'alimentation haute tension stabilisée est du type APN.

1.4.4. Mesures

Si N est le nombre d'impulsions recueillies pendant la durée d'un comptage, l'erreur statistique moyenne (écart moyen) est égal à \sqrt{N}

$$\frac{\Delta N}{N} = \frac{\sqrt{N}}{N} = N^{-1/2}$$

L'augmentation de N permet par conséquent d'augmenter la précision de la mesure. On peut y parvenir soit en augmentant l'activité de la source, soit en prolongeant la durée des comptages.

Une fréquence de comptage supérieure à 300 c/s risque d'introduire des pertes de comptages élevées, supérieures à 1 %, et incompatibles avec une mesure précise. (Réf. 12).

Comme d'autre part la durée de comptage en mesures de routine ne saurait excéder 500 secondes, la valeur maximale du comptage peut être fixée à 150000 coups

$$\frac{\Delta N}{N} = (150\ 000)^{-1/2} = 2,5 \cdot 10^{-3}$$

Ces mesures ont été effectuées source et détecteur complètement immergés, leur distance horizontale étant de 20 mm.

La variation du taux de comptage en fonction du décalage vertical passe par un maximum. Le tracé de la courbe dérivée met en évidence l'allure parabolique de cette variation et permet de situer avec précision la cote du détecteur pour laquelle le taux de comptage est maximal. Les indications fournies par le constructeur ont permis de constater que le maximum du taux de comptage était effectivement obtenu lorsque le plan médian du détecteur (partie utile) est confondu avec le plan médian de la source (planche 1.4.3). La parfaite symétrie de la courbe dérivée montre que la perturbation du flux neutronique par la partie supérieure du tube porte-détecteur et le câble coaxial d'alimentation qu'elle contient est absolument négligeable.

1.4.5. Résultats

La dispersion des résultats n'est pas supérieure aux fluctuations statistiques de comptage, or les comptages réalisés dépassant 10^4 impulsions, la dispersion est bien inférieure à ± 2 %, même dans les cas les plus défavorables (distances source-détecteur importantes).

Pour la détection des neutrons épithermiques (BF_3 gainé de cadmium), on s'est satisfait d'une plus faible précision (± 5 %) pour éviter des durées de comptages trop grandes.

A partir des courbes de flux de la planche 1.4.5.1, on a successivement examiné la variation de r et de R en fonction de la distance source-détecteur.

$$r = \frac{\text{réponse résonnante}}{\text{réponse thermique}} = \frac{1}{R - 1}$$

Contrairement aux résultats des mesures par activation, la variation de r (BF_3) n'est pas linéaire. Par contre, R (BF_3) augmente linéairement avec la distance source-détecteur dans le domaine 0 — 10 cm (voir planche 1.4.5.2).

1.5 — Conclusions

Le bilan des résultats donnés par les trois méthodes de détection utilisées: analyse par activation, compteurs à scintillation, compteur à BF_3 , peut être établi en les comparant selon

les critères:

- réponse spectrale en énergie,
- sensibilité des détecteurs,
- reproductibilité des mesures,
- allure des cartes de flux.

1.5.1. Réponse spectrale en énergie

Il est à priori important que le détecteur utilisé soit surtout sensible aux neutrons thermiques puisque ce sont les plus nombreux. La présence d'une forte section efficace de détection par résonance à une énergie supérieure, épithermique, ne simplifierait d'ailleurs pas l'interprétation car il est vraisemblable que la répartition énergétique des neutrons aux basses énergies, varie notablement avec la nature du milieu.

On compare habituellement les réponses des détecteurs en définissant le rapport

$$r = \frac{\text{réponse résonnante}}{\text{réponse thermique}}$$

rappelons que ce terme se relie au « Rapport Cadmium » R défini plus haut (1.2) par la relation

$$r = \frac{1}{R - 1} \quad (1.4.5.)$$

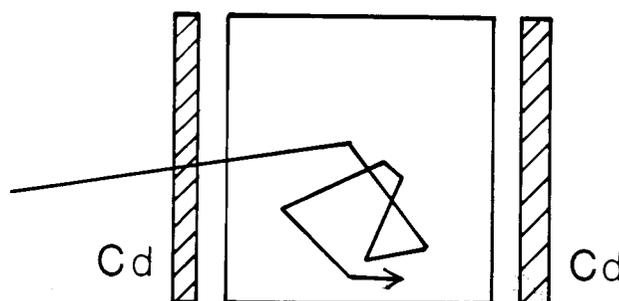
Le rapport r relatif à chaque détecteur peut être calculé à partir des sections efficaces d'absorption du bore, de l'indium, etc... entrant dans la composition du détecteur, en supposant que la section efficace de diffusion est constante dans le domaine épithermique où ont lieu les résonances. La méthode de calcul et son support mathématique, intégrale de résonance, sont rappelées dans les ouvrages spécialisés (Réf. 13, 21). Dans le cas présent, le calcul donne pour un détecteur résonnant (indium) et un détecteur thermique (bore).

$$\frac{r \text{ indium}}{r \text{ bore}} = \frac{14,7}{0,5} \sim 30$$

En fait, les valeurs expérimentales (planche 1.5.1) sont assez éloignées du rapport théorique et on obtient seulement:

$$\frac{r \text{ indium}}{r \text{ BF}_3} \sim 10 \text{ à } 12 \quad \text{et} \quad \frac{r \text{ indium}}{r \text{ scintill.}} \sim 5 \text{ à } 6$$

L'excès de sensibilité apparente aux neutrons épithermiques du scintillateur sur le BF_3 (facteur 2) d'une part, et du BF_3 sur l'indium (facteur 2,5) d'autre part, peut être attribué à la thermalisation, au sein même du détecteur, de neutrons rapides ayant franchi l'écran de cadmium (voir schéma ci-dessous).



Thermalisation d'un neutron rapide dans le détecteur.

1.5.2. Sensibilité des détecteurs

Pour les trois types de détecteurs étudiés, on a porté dans le tableau ci-dessous les réponses totales dans l'eau pour une distance source détecteur de 2 cm :

Nature du détecteur	Nombre d'impulsions	Durée de comptage	Activité de la source
Indium	$4 \cdot 10^4$	600 s.	100 mCi
BF ₃	$1 \cdot 10^5$	500 s.	100 mCi
Scintillateur	$5 \cdot 10^4$	500 s.	300 mCi

Ainsi, si on attribue arbitrairement au BF₃ la sensibilité 1, celle de l'indium est approximativement égale à 1/3 et celle du scintillateur à 1/6.

Reproductibilité des mesures

Pour les trois types de détecteurs étudiés, on a exprimé l'écart maximal à la valeur moyenne du flux total relevé pour des distances source-détecteur faibles (taux de comptage élevés). Cet écart est exprimé en fonction de σ écart quadratique moyen.

BF ₃	2σ
Indium	20σ
Scintillateur	7σ

L'étude détaillée de la reproductibilité des mesures obtenues par BF₃ est reportée dans la troisième partie.

1.5.3. Allure des cartes de flux

Les courbes de flux obtenues par les trois types de détecteurs étudiés (réponses totales du BF₃ et du scintillateur, réponse thermique de l'indium) ne diffèrent pas notablement pour des distances source-détecteur supérieures à 6 cm.

(Les courbes correspondantes de la planche 1.5.3 sont normalisées pour la distance source-détecteur: 9 cm).

Remarque

La comparaison entre la réponse thermique de l'indium et les réponses globales du BF₃ et du scintillateur se justifie car les réponses épithermiques de ces deux derniers types de détecteurs sont presque négligeables (voir 1.5.1).

Pour les faibles distances, la réponse thermique de l'indium se distingue très nettement des réponses du BF₃ et du scintillateur, l'écart maximal se produit à proximité immédiate de la source où sa valeur est de l'ordre de 12 %.

On ne peut attribuer ce phénomène à des facteurs géométriques (effet de parallaxe ou perturbation du flux neutronique résultant de l'encombrement relatif du BF₃, par exemple) puisque les réponses du BF₃ et du scintillateur, pratiquement ponctuel, sont identiques.

Cette distinction établie, on constate qu'il est relativement aisé de passer d'un mode de détection à un autre et que la mesure ponctuelle recherchée peut être pratiquement réalisée au

moyen d'un petit compteur à BF_3 qui présente, sur les autres types de détecteurs, les avantages d'une meilleure sensibilité, d'une meilleure stabilité et d'une mise en œuvre aisée. En outre, contrairement aux autres modes de détection, la sensibilité aux neutrons épithermiques du détecteur à BF_3 reste en définitive négligeable.

Ces considérations jointes aux considérations technologiques déjà signalées lors de l'étude détaillée des méthodes de mesures (1.4.2) et (1.4.5), permettent d'opter définitivement pour la détection par compteur BF_3 .

1.5.4. Bibliographie

Un certain nombre de publications font état de mesures analogues dans l'eau. La plupart de ces mesures ont été effectuées par activation de l'indium.

Pour faciliter la comparaison entre ces divers résultats et les valeurs obtenues dans la première partie de notre étude (1.2), on a considéré l'atténuation du flux entre deux points d'abscisse différente et appelé « taux d'aplatissement » le quotient des flux correspondants.

Quelques valeurs de ce « taux d'aplatissement » ont été collationnées sur le tableau ci-dessous et exprimées en pourcentage des taux correspondants relevés sur les cartes de flux effectuées avec In et In + Cd.

Intervalle de mesure (cm)	Taux d'aplatissement exprimé en % du taux obtenu dans les conditions définies en 1.2.		Réf.	Remarques
	flux thermique	flux épitherm.		
6 - 18	128	91	22	Géométrie $\sim 3\pi$
5 - 15		118	14	
4 - 12	92	76	23	

La dispersion de ces valeurs est importante et, en l'absence d'indications sur les conditions expérimentales, il est difficile d'en justifier la cause. En ce qui concerne nos mesures, l'excellente concordance des résultats obtenus par trois procédés différents, garantit leur validité.

2 — INFLUENCE DE LA TEMPÉRATURE SUR LA DÉTECTION DES NEUTRONS THERMIQUES PAR COMPTEURS PROPORTIONNELS AU BF_3

On s'est proposé d'examiner l'influence de la température sur la détection des neutrons.

Il était nécessaire de distinguer dans cette étude l'influence de la température sur le détecteur proprement dit, de l'influence de la température sur l'énergie des neutrons, donc sur leur interaction avec le détecteur.

Cette distinction s'avère indispensable si on souhaite étendre l'application de ces résultats à tous les types de mesure neutroniques industriels. En effet, on peut concevoir des montages où le dispositif de détection soit accolé à une canalisation ou une chambre de mesure.

Dans certaines circonstances, la température de la canalisation peut être à peu près constante, c'est le cas des canalisations de gaz liquéfiés. Par contre, l'appareil de détection extérieur peut être soumis à des variations de température.

Dans d'autres cas, c'est celui du montage étudié dans notre contrat et décrit dans la première partie, la sonde est immergée dans le fluide à étudier et subit ses variations de température.

Compte tenu de la multiplicité des phénomènes mis en jeu, l'influence de la température sur le détecteur ne pouvait être étudiée qu'empiriquement au moyen d'un dispositif assez complexe.

Les résultats obtenus à la suite de plusieurs cycles thermiques dans la gamme $-70^{\circ}\text{C} + 90^{\circ}\text{C}$ font apparaître un faible hystérésis du détecteur. La variation du taux de comptage en fonction de la température est pratiquement linéaire.

Elle correspond à une diminution de l'ordre de 5.10^{-4} par degré centigrade sur toute la gamme de température.

On a tenté d'évaluer par le calcul l'influence de la température sur les divers paramètres intervenant dans le processus de détection, sans parvenir à établir de corrélation entre les résultats expérimentaux et les modèles examinés.

L'influence de la température des neutrons sur le taux de comptage d'un détecteur fonctionnant à température constante est plus simplement évaluée à partir des tables classiques de variation de section efficace en fonction de l'énergie de la particule.

La faible importance de cette dérive permet d'envisager une correction automatique simultanée au moyen d'un dispositif peu coûteux asservi à un couple thermoélectrique. Un tel résultat justifie l'emploi des détecteurs à BF_3 et devrait en faciliter, à l'avenir, l'utilisation.

2.1 — Étude de l'influence des variations de température du détecteur sur le taux de comptage

2.1.1. Appareillage

a) Montage expérimental

Il importe de dissocier l'incidence des variations de température sur le milieu thermalisant de celle de ces mêmes variations sur le détecteur, donc d'isoler thermiquement ces deux éléments. Par ailleurs, le coefficient de dilatation linéaire de la paraffine, choisie comme milieu thermalisant, est suffisamment élevé pour justifier des précautions particulières de montage.

Le milieu thermalisant et le détecteur ont été désolidarisés au moyen d'une gaine isolante garnie de polyéthylène expansé dont l'incidence sur la diffusion des neutrons peut être considérée comme négligeable.

On a veillé à se préserver d'éventuels phénomènes de condensation en isolant de façon rigoureusement étanche cette enceinte de l'air ambiant (planche 2.1.1).

Dans un montage perfectionné, cette enceinte a été remplacée par un vase Dewar en quartz non argenté de section efficace négligeable pour les neutrons thermiques.

b) Régulation de température et contrôle

La mise en température du détecteur était assurée par un doigt de gant en cuivre électrolytique. Ce doigt de gant était manchonné dans un rond de même métal plongeant dans un vase Dewar alimenté à niveau constant en azote liquide. La température minimale atteinte au moyen de ce dispositif a été de -80°C .

La température du détecteur était en outre régulée au moyen d'une résistance chauffante disposée à mi-hauteur du mandrin. Les températures maximales expérimentées ont été limitées par la technologie des détecteurs à une centaine de degrés conformément aux spécifications des constructeurs.

La température était enregistrée à partir des indications de thermocouples. L'un d'entre eux, dont on a retenu les indications, était logé entre le détecteur et la paroi intérieure du doigt de gant.

c) Principe de la mesure

Le flux de neutrons thermalisés à température ambiante n'est pratiquement pas affecté par les variations de température du manchon de cuivre entourant le détecteur, en effet la proportion de neutrons rapides thermalisés ou de neutrons thermiques refroidis reste faible, compte tenu de la faible section efficace de diffusion du cuivre et de la faible épaisseur de matériau traversée.

La réponse du détecteur en fonction de la température, a été établie à partir de comptages de longue durée en s'assurant, par enregistrement continu, de la constance de celle-ci.

2.1.2. Résultats

On a fait varier la température entre -70°C et $+90^{\circ}\text{C}$ (température maximale supportée par les BF_3) — spécifications du constructeur — Cette gamme de températures couvre celle des températures courantes dans l'industrie tout en restant supérieure à la température de liquéfaction du trifluorure de bore.

a) Cyclage thermique d'un détecteur à BF_3

On a pu faire subir sans dommage au détecteur un certain nombre de cyclages thermiques entre les deux températures extrêmes définies ci-dessus. On a jalonné l'un d'entre eux de comptages. Chaque palier de température a pu être stabilisé par régulation manuelle, à mieux de 2 degrés près grâce à l'enregistrement en continu de la température. Dans tous les cas où une faible dérive de température se manifestait, on a pu en tenir compte en moyennant celle-ci.

Compte tenu de la durée des opérations de stabilisation et de comptage, les variations de température représentées sur la planche 2.1.2.1, n'ont jamais été extrêmement rapides. Il n'en résulte pas moins une sorte d'hystérésis qui peut atteindre dans les cas les plus défavorables une amplitude de 2 % du signal.

Quoi qu'il en soit, la variation du taux de comptage est monotone, le taux de comptage variant en sens inverse de la température.

b) Influence de la température sur les courbes caractéristiques d'un détecteur

On a tracé (planche 2.1.2.2) les courbes caractéristiques d'un détecteur à BF_3 pour trois températures différentes:

-70°C
 $+22,5^{\circ}\text{C}$
 $+51^{\circ}\text{C}$

Ces mesures ont nécessité une stabilisation rigoureuse de la température pendant plusieurs heures de comptage.

Les résultats obtenus en confirmant les précédents, montrent que la longueur du palier varie peu avec la température:

environ 100 V à $+51^{\circ}\text{C}$
120 V à -70°C

On peut aussi constater que l'abaissement de la température s'accompagne d'un très léger déplacement de ces paliers vers des tensions d'alimentation inférieures

2000 V — 2100 V à $+51^{\circ}\text{C}$
1960 V — 2080 V à -70°C

2.1.3. Essai d'interprétation

Les caractéristiques des compteurs affectées par la température sont essentiellement :

- La section efficace de capture du bore
- La pression du gaz de remplissage
- La géométrie.

a) Influence de la section efficace de capture du bore

Les sections efficaces de capture ne varient qu'avec l'énergie des neutrons lorsque l'énergie d'agitation thermique des noyaux cibles de bore est constante. Mais elles dépendent ici à la fois de l'énergie d'agitation thermique des molécules de BF_3 et du spectre énergétique des neutrons. Le spectre énergétique des neutrons est pratiquement constant dans ces essais. Par contre, l'énergie d'agitation thermique du gaz BF_3 diminue avec la température. A priori, l'énergie relative d'un neutron par rapport à un noyau de bore est augmentée par l'agitation des atomes de bore. En conséquence, le taux de comptage devrait s'accroître lorsque l'agitation thermique des molécules de BF_3 diminue puisque la section efficace de la réaction de capture croît vers les faibles énergies (voir planche 2.2). Malheureusement, les calculs relatifs à ces variations de section efficaces sont très complexes et il est difficile d'estimer la variation de taux de comptage résultant de ce phénomène. (Réf. 13, 14).

b) Influence de la pression du gaz de remplissage

Son influence se manifeste sur le facteur de multiplication de l'avalanche électronique. Un électron libéré par ionisation sur la trajectoire des fragments du noyau de bore 10, produit par chocs n électrons dits « primaires ». Chacun de ces n électrons crée en moyenne k électrons secondaires ($k \ll 1$), par des réactions secondaires sur des atomes (Réf. 15). Les kn électrons secondaires vont être accélérés à leur tour, et engendrer chacun n électrons primaires et k réactions secondaires. Cette première génération d'électrons secondaires amènera kn^2 électrons sur le fil. Chaque génération d'électrons secondaires amenant des électrons à la cathode, le nombre total d'électrons créés par la paire d'ions initiale est :

$$A = n + kn^2 + \dots k^p n^{p+1}$$

soit pour $nk < 1$, ce qui est le cas dans un compteur proportionnel.

$$A = \frac{n}{1 - kn}$$

Il est difficile d'exprimer analytiquement A en fonction de la pression et de la température, d'autant plus que n dépend du champ électrique et k de la nature du gaz de remplissage. Cependant, une augmentation du libre-parcours moyen λ entre deux chocs doit accroître l'énergie cinétique gagnée par cet électron au cours de ce trajet. C'est-à-dire avoir le même effet qu'un accroissement du champ, donc augmenter n et par conséquent A . Or, un accroissement de λ peut être la conséquence d'une diminution de l'agitation thermique des molécules de gaz BF_3 , c'est-à-dire d'une diminution de la température. Normalement A devrait s'accroître lorsque la température du gaz baisse. C'est bien ce qu'ont constaté certains auteurs comme Mac Cutchen qui a mesuré le gradient thermique du coefficient d'amplification A d'un compteur rempli d'Argon et de CO_2 et a montré, qu'à pression constante, le taux de variation de A était de 1,4 % par degré (Réf. 16).

D'autres auteurs Lokwood, Woods et Bennet d'une part, et Goodwin et Iona de l'autre (Réf. 17, 18), ont étudié directement le comportement thermique de compteurs BF_3 entre 10°C et 60°C. Ils ont constaté une nette diminution du taux de comptage lorsque la température

s'élève, diminution d'ailleurs variable d'un compteur à l'autre, et en ont déduit que la variation de température agit directement en modifiant la composition du gaz présent dans le compteur.

Le trifluorure de bore provoque la formation d'un peu de tétrafluorure de silicium en réagissant sur le verre. Une couche monomoléculaire se formerait sur la paroi (Réf. 19). Pour chaque température un équilibre existerait entre la quantité de gaz fixée et celle mêlée au BF_3 gazeux. Le trifluorure de silicium est électronégatif, sa présence diminue le coefficient de multiplication A . Tout accroissement de température augmente la proportion de trifluorure de silicium dans le BF_3 , d'où diminution du facteur A .

Ces interprétations difficilement chiffrables, conduisent bien toutes au même résultat: une diminution de température augmente le nombre d'électrons collectés, donc la hauteur des impulsions, c'est-à-dire, dans une certaine mesure, le nombre d'impulsions détectées.

En fait, même une connaissance exacte de la variation du nombre d'électrons collectés en fonction de la température ne serait pas fiable directement à la variation de taux de comptage puisque celle-ci dépend de la forme du spectre et de la position du seuil électronique.

c) Influence de la géométrie

Comme le précise Blanc (Réf. 15), outre les différentes incidences d'origine dimensionnelles sur:

- l'intensité du champ électrique,
- la capacité du système anode-cathode,
- le volume de collection,

il faut considérer la variation du coefficient d'amplification attribuable à la dilatation thermique de l'anode. Ce phénomène agit sur le coefficient d'amplification A selon la formule de Rose et Korff (Réf. 20) dont la différentiation permet d'écrire:

$$\frac{dA}{A} = \frac{1}{2} \text{Log } A \cdot \alpha dT$$

Pour une valeur maximale de A équivalente à 10^4 et pour une valeur du coefficient α de dilatation linéaire du fil d'anode de $4 \cdot 10^{-6}/^\circ\text{C}$, on a par degré centigrade:

$$\frac{dA}{A} = 2 \cdot 10^{-5}$$

Ce phénomène est à rapprocher de ceux exposés dans le paragraphe précédent, bien qu'il agisse en sens inverse.

2.2 — Influence de la température du milieu à étudier sur le taux de comptage

Cette influence résulte de deux facteurs: la variation de section efficace du bore en fonction de la vitesse des neutrons et la variation du nombre de neutrons thermiques présents par cm^3 de milieu thermalisant.

L'influence du premier paramètre peut s'évaluer simplement. En effet, définissons successivement:

- $\phi(E) = n(E) \cdot v(E)$ le flux ayant l'énergie E ;
- $n(E) dE$ le nombre de neutrons d'énergie E présents par volume unitaire de milieu thermalisant
- $N = \int_0^{E_{\text{max}}} n(E) dE$ le nombre total de neutrons thermiques présents par volume unitaire de milieu thermalisant;

- $\Sigma_a(E)$ la section efficace macroscopique du bore 10 dans le compteur;
- V le volume du compteur.

Le nombre de captures dans le détecteur est donné par la relation:

$$C = V \int_0^{E_{\max}} \phi(E) \cdot \Sigma_a(E) dE$$

Sachant (voir figure 2.2) que la section efficace de capture est du type

$$\Sigma_a(E) = \frac{\Sigma_a(E_0)v(E_0)}{v(E)}$$

Il vient:

$$C = V \cdot \Sigma_a(E_0) \cdot v(E_0) \int_0^{E_{\max}} n(E) \cdot v(E) \cdot \frac{1}{v(E)} dE$$

$$C = V \cdot \Sigma_a(E_0) \cdot v(E_0) \cdot N$$

Dans la mesure où le nombre N est constant, le taux de comptage est invariant lors des changements de température.

C'est l'influence de la température sur ce deuxième paramètre qu'il faut examiner.

Normalement les variations de N seraient dues seulement à des modifications du taux de captures des noyaux du milieu thermalisant puisque l'alimentation en neutrons est due à une source isotopique dont l'activité est insensible à la température. Or, les captures proviennent de l'hydrogène dont la section efficace de capture suit une loi en $1/v(E)$, tout comme le bore 10. Le nombre de neutrons capturés par l'hydrogène du milieu thermalisant doit donc être constant quelle que soit la température du thermalisant.

Bien qu'une étude expérimentale plus complète du phénomène soit nécessaire, pour vérifier le bien-fondé du raisonnement ci-dessus, il semble, au moins qualitativement, que les variations de taux de comptage enregistrées durant les essais à température variable, aient peu de chance d'être liées à un phénomène purement neutronique.

3 — CONTRÔLE DE LA PURETÉ DES PRODUITS ORGANIQUES ÉTUDIÉS

Tous les produits organiques utilisés, à l'exception de l'isooctane, sont des produits sélectionnés en qualité « Pur » ou « Ordinaire » et il est nécessaire d'en contrôler les caractéristiques. Un certain nombre de contrôles partiels portant sur les propriétés physiques (densité), les teneurs en Na, Cl, Ca et Mn (analyse par activation), en noyaux aromatiques et chaînes saturées (spectrométrie infrarouge), ont permis d'apprécier le degré de pureté de chacun de ces produits et de rejeter ou de classer dans une catégorie douteuse ceux dont on a pu suspecter la qualité.

3.1 — Densité

La variation de densité en fonction de la température est, pour la majorité des liquides organiques, comprise entre $6 \cdot 10^{-4}$ et $11 \cdot 10^{-4}$ par degré centigrade dans la gamme de température 20°C - 30°C (Réf. 24). Une grande précision sur les mesures de densité exige l'utilisation de bain thermostaté ou une excellente correction de température.

Deux techniques ont été utilisées:

La picnométrie dont la précision, compte tenu de différents facteurs, hystérésis du verre, variation d'enfoncement des rodages, évaporation des liquides, laisse subsister une erreur relative de l'ordre de 10^{-3} .

La balance de Mohr réalisée au moyen d'une balance Mettler au $100^{\text{ème}}$ de mg, soutenant un peson de pyrex plongé dans le liquide étudié. Un bain thermostaté à 25°C et réglé au $5/100^{\text{ème}}$ de degré, entoure l'échantillon de liquide. Ce dispositif ne laisse subsister que les erreurs liées aux modifications de poussée du liquide sur le fil (par suite de l'évaporation entraînant un abaissement du niveau) et aux différences de tension superficielle entre l'eau et les liquides étudiés. L'erreur relative peut alors être considérée comme inférieure à 10^{-4} .

3.2 — Teneur en impuretés minérales — Analyse par activation

3.2.1. Section efficace d'absorption d'un liquide organique et teneurs maximales admissibles en impuretés

A l'exception des tout premiers éléments du tableau de Mendeleïff, le pouvoir de ralentissement des noyaux est pratiquement négligeable, aussi la perturbation de flux provoquée par la présence d'impuretés dans un milieu donné ne peut dépendre que de leur section efficace d'absorption.

L'hydrogène ayant une section efficace d'absorption (0,33 barn) largement supérieure à celle du carbone ($3,2 \cdot 10^{-3}$ barn) et de l'oxygène ($0,2 \cdot 10^{-3}$ barn), la section efficace d'absorption d'un liquide organique est pratiquement égale à celle de l'hydrogène qu'il renferme.

On peut estimer qu'une variation relative de section efficace d'absorption inférieure à 10^{-3} ne perturbe pas de façon appréciable le flux neutronique.

La concentration en hydrogène variant entre 130 g et 60 g par litre, la section efficace d'absorption du liquide organique le moins hydrogéné est de l'ordre de $20 \times 6 \cdot 10^{23}$ barn par litre, et la contribution maximale des impuretés devra être par conséquent inférieure à $0,02 \times 6 \cdot 10^{23}$ barn par litre.

Si on désigne par x la teneur maximale admissible en g/l d'une impureté de masse atomique A et de section efficace σ , on a évidemment:

$$x \frac{\sigma \cdot 6 \cdot 10^{23}}{A} = 0,02 \cdot 6 \cdot 10^{23}$$
$$x \text{ (g/l)} = 0,02 \frac{A}{\sigma}$$

3.2.2. Principe de la mesure

a) Éléments dosés par analyse rapide

L'analyse pratiquement exhaustive des impuretés minérales est réalisable mais c'est une entreprise longue, coûteuse et délicate. L'analyse rapide mise au point au Centre d'Études Nucléaires de Grenoble (S.A.R.) par G. Aubouin (Analyse par activation d'impuretés minérales dans les terphényles et leur dosage par spectrométrie gamma — travail réalisé en exécution d'un contrat de recherches passé par la Commission d'Euratom dans le cadre du projet Orgel), permet de connaître directement, avec une grande précision, les teneurs en Cl, Mn, Cu et Na.

On peut estimer qu'une telle analyse même limitée à ces quatre éléments fournit néanmoins une information sur le degré de pollution des liquides étudiés; en effet, le chlore, le sodium et les métaux du milieu du tableau de Mendeleïff, constituent les impuretés les plus courantes

des produits organiques. Notons en outre, que les principaux absorbants des neutrons, à savoir: In, Cd, Eu, Gd, ont des probabilités extrêmement faibles d'être rencontrés dans les hydrocarbures.

b) Réactions nucléaires d'activation et de décroissance

On a rassemblé dans le tableau ci-après les principales émissions de décroissance des noyaux instables obtenus par activation des isotopes naturels du sodium, du chlore, du manganèse et du cuivre.

Isotope naturel (abondance isotopique)	Noyau excité	Période	Emission (énergie en MeV)
Na 23 (100 %)	Na 24	15 h	$\gamma_1 = 1,38$ $\gamma_2 = 2,75$
Cl 35 (75 %) Cl 37 (25 %)	Cl 36 Cl 38	3.10 ⁵ ans 37,5 min	pas de gamma $\gamma_1 = 2,15$ $\gamma_2 = 1,60$
Mn 55 (100 %)	Mn 56	2,6 h	$\gamma_1 = 0,845$ $\gamma_2 = 1,81$ $\gamma_3 = 2,13$ $\gamma_4 = 2,65$
Cu 63 (69 %) Cu 65 (31 %)	Cu 64 Cu 66	12,8 h 5,2 min	$\beta^- . \beta^+$ γ négligeable $\gamma = 1,04$ faible

Pour chacun des quatre éléments analysés, la teneur maximale tolérable, en supposant la présence d'une unique impureté, est:

$$\text{Na} : x = 920 \text{ ppm}$$

$$\text{Cl} : x = 23 \text{ ppm}$$

$$\text{Mn} : x = 83 \text{ ppm}$$

$$\text{Cu} : x = 340 \text{ ppm}$$

3.2.3. Résultats des analyses

Les résultats de l'analyse par activation, sont collationnés sur le tableau 1.

3.3 — Teneur en impuretés organiques. Spectrométrie infra-rouge

L'ensemble des analyses qui permettent de distinguer la présence de noyaux aromatiques et de chaînes saturées, ont été effectuées par les soins du Laboratoire de Spectrométrie de Masse du Centre d'Études Nucléaires de Grenoble. Le tableau 1 résume les résultats de cette étude.

3.4 — Résultats

A partir des mesures de densité, d'analyse par activation et de spectrométrie infra-rouge dont les résultats figurent dans le tableau 1, il est possible de répartir les corps étudiés en quatre classes de qualité:

Produits de très bonne qualité (T.B.)

Eau — Alcool Éthylique — Acide Acétique — Isooctane — Toluène Antar — Toluène Prolabo — Xylène Antar.

Produits de bonne qualité (B.)

Alcool Méthylique — Glycérine — Cumène — Benzène — Éthylbenzène — Acétone.

Produits d'assez bonne qualité (A.B.)

Pentane — Cyclohexane — Cyclohexanol — Cyclohexanone.

Produits de médiocre qualité (M.)

Glycol — Hexane — Heptane — Alpha Méthylstyrène — Xylène Prolabo — Tétraline.

Produits de pureté inconnue (?)

« Gilotherm » — Huile de vaseline — Décaline — « Thermipe ».

4 — ÉTABLISSEMENT DES CARTES DE FLUX ET 1^{er} ESSAI D'INTERPRÉTATION

On examine dans cette partie, l'appareillage expérimental destiné à l'établissement des cartes de flux ainsi que l'incidence de différents paramètres (température, niveau des liquides dans la cuve, dérive de l'électronique) sur la précision de ces mesures.

La régulation thermique de l'appareillage, la correction des taux de comptage en fonction du niveau de remplissage et l'étalonnage du compteur ont permis de limiter aux seules fluctuations statistiques de comptage, l'incertitude sur la mesure.

L'examen des cartes de flux de 26 liquides organiques a confirmé la possibilité de relier par une loi simple la composition chimique de ces liquides aux taux de comptage.

Dans certaines conditions géométriques qu'on a définies empiriquement par l'exploitation systématique des données numériques au moyen d'un ordinateur, le taux de comptage est directement proportionnel aux concentrations en hydrogène, en carbone et en oxygène. Cette relation est linéaire.

4.1 — Appareillage expérimental

4.1.1. Montage

La diminution considérable du flux avec l'éloignement de la source justifie l'emploi d'une cuve de faibles dimensions; nous n'avons donc pas modifié les caractéristiques géométriques de la cuve utilisée dans la première partie de l'étude. Par contre, pour éviter une trop importante dépression de flux au contact des parois, le chlorure de vinyle a été remplacé par de l'acier inox (Planche 4.1.1).

On a pu voir dans la troisième partie de l'étude (3.1) que la densité des produits organiques variait dans une notable proportion avec la température. On a montré dans la première partie que le taux de comptage d'un détecteur à BF_3 varie lui aussi avec la température du détecteur.

Il était par conséquent nécessaire de thermostatier avec soin la cuve de mesure. Nous y sommes parvenus en la suspendant dans une cuve d'eau à circulation forcée, la régulation thermique étant assurée au moyen de deux pompes chauffantes d'une puissance thermique unitaire de 2 KW. La température du liquide contenu dans la cuve de mesure a pu être ainsi régulée à moins d'un demi-degré près (Planche 4.1.1).

La présence d'une chemise d'eau d'une dizaine de centimètres d'épaisseur a eu, par ailleurs, l'avantage d'atténuer les effets d'albédo et de valider les comptages les plus éloignés de la source.

En raison de la toxicité et des risques d'inflammabilité de certains produits étudiés, la cuve de mesure et sa gaine ont été disposées dans un bac susceptible de recueillir en cas d'accident la totalité des liquides dangereux.

L'ensemble du montage était lui-même logé dans un abri métallique équipé d'une hotte d'aspiration. Pour des raisons de sécurité, l'accès de l'abri était réservé aux seuls opérateurs.

Toutes ces mesures ont été effectuées dans un bâtiment isolé réservé aux manipulations dangereuses.

Le tube porte-source, le tube porte-détecteur ainsi que leur dispositif de positionnement ont été décrits en 1.4.3 (Planche 1.4.3).

4.1.2. Ensemble de détection

Le détecteur utilisé est un BF_3 du type 0,1 NE 3/1 de LCT, on en a justifié le choix en 1.5 et décrit les caractéristiques en 1.4.2.

L'électronique qui lui est associée est décrite en 1.4.1 et 1.4.3.

4.2 — Mesures

4.2.1. Étalonnage et dérive des compteurs à BF_3

Entre chaque carte de flux ont été intercalées des séries de comptages dans l'eau permutée, dans des conditions de température et de géométrie identiques. A plusieurs reprises, on a effectué à titre de vérification des cartographies complètes de l'eau.

A l'examen des 28 séries de comptages ainsi obtenus, on a décelé une évolution sensible du taux de comptage dans le temps. Grâce à un certain nombre de cartographies complètes de l'eau (une dizaine), on s'est assuré que la variation du taux de comptage affectait d'un facteur constant tous les points de la courbe de flux ce qui a permis de définir, pour chaque journée de la campagne de mesure, c'est-à-dire pour chaque cartographie, un facteur moyen de correction.

Au cours de la campagne de mesure, d'une durée d'un mois et demi, la variation du taux de comptage est restée monotone et la dérive totale a atteint une amplitude de l'ordre de 2 %. La dérive maximale en 24 heures n'a pas dépassé $1,5 \cdot 10^{-3}$ (Planche 4.2.1).

4.2.2. Corrections de niveau

Le niveau de remplissage de la cuve a été fixé au début des expériences à 42,5 cm. Toutefois, des difficultés d'approvisionnement de certains produits organiques n'ont pas toujours permis d'atteindre cette cote. Ainsi, la hauteur du Toluène Prolabo, de l'Éthylbenzène et du Xylène Prolabo dans la cuve n'atteignait que 39 cm.

Il a donc fallu étudier l'influence des variations de niveau sur le taux de comptage. Ces mesures ont été effectuées sur le benzène qui présente des caractéristiques proches de celles des liquides considérés.

On a fait varier le niveau entre 29 et 44 cm, plage de mesure recouvrant largement celle des écarts réels, et observé la variation du taux de comptage à 2, 10 et 19 cm (Planche 4.2.2).

On peut vérifier sur ces courbes qu'un abaissement de niveau de 1,5 cm entraîne pour les trois distances source-détecteur, une diminution du taux de comptage de l'ordre de 10^{-3} ; une variation de niveau de 5 cm, une diminution du taux de comptage de l'ordre de 10^{-2} .

La diminution du taux de comptage est pratiquement indépendante de la distance source-détecteur.

Compte tenu du fait que les mesures partielles obtenues avec l'éthylbenzène donnent des résultats comparables, on peut donc ici encore, multiplier par un coefficient de correction constant les taux de comptage obtenus pour des produits ne remplissant pas complètement la cuve de mesure.

4.2.3. Corrections de température

La variation du taux de comptage en fonction de la température (voir deuxième partie de l'étude) est de l'ordre de $2 \cdot 10^{-3}$ par degré centigrade.

Dans certains cas, les premiers comptages des cartes de flux ont été effectués avant complète stabilisation de la température. Ces écarts de température ne concernent qu'un nombre restreint de mesures et leur amplitude n'a jamais dépassé un demi degré centigrade; on s'est néanmoins efforcé d'en tenir compte en procédant aux corrections correspondantes.

On notera toutefois que la variation de température s'accompagne d'une variation de densité du liquide et qu'il est difficile d'évaluer l'incidence de cette dernière variation sur le taux de comptage.

4.2.4. Cartes de flux

Pour pouvoir réaliser une carte de flux complète par jour, il s'est avéré nécessaire de limiter la durée du comptage à 500 secondes. Dans les cas où la mauvaise conductibilité thermique ou la viscosité élevée de certains produits risquait de retarder la stabilisation en température, on a dû procéder au remplissage de la cuve la veille de l'expérimentation.

Erreur statistique

Pour une durée de comptage constante (500 secondes), l'écart type moyen croît avec la distance source-détecteur.

Pour les 5 premiers centimètres, le taux de comptage est supérieur à 100 000 impulsions et l'écart type est de l'ordre de $3 \cdot 10^{-3}$.

Vers 10 cm, le nombre d'impulsions avoisine 40 000 et l'écart type $5 \cdot 10^{-3}$.

A 18 cm, le taux de comptage tombe à 10 000 impulsions et l'écart type atteint 10^{-2} .

Erreur sur la température

Une augmentation de température de un degré centigrade entraîne une diminution du taux de comptage du détecteur de $2 \cdot 10^{-3}$ (voir 4.2.3).

La même augmentation de température s'accompagne d'une diminution de densité comprise entre $6 \cdot 10^{-4}$ et $11 \cdot 10^{-4}$; et affecte dans les mêmes proportions, comme il est légitime de le supposer en première approximation, le taux de comptage. Ces erreurs se compensant en partie, l'erreur résultante ne peut être supérieure à 10^{-3} . Comme l'incertitude sur la température est inférieure à 0,5 degré centigrade, on peut estimer à $5 \cdot 10^{-4}$ l'erreur qui lui est imputable.

Dérive de l'appareillage

La dérive maximale de l'appareillage est de $1,5 \cdot 10^{-3}$ en 24 heures, c'est-à-dire de $0,5 \cdot 10^{-3}$ en 8 heures, durée nécessaire à l'établissement d'une carte de flux.

Impuretés chimiques

Pour les produits sélectionnés dans la troisième partie de l'étude, la teneur en impuretés est telle qu'elle n'affecte que d'un taux largement inférieur à 10^{-3} le flux de neutrons.

Compte tenu de la faible probabilité des autres sources d'erreur la précision de la mesure est en pratique uniquement affectée par l'erreur statistique.

L'ensemble des cartographies obtenues, est présenté sur les planches:

- 4.2.4.a.
 - 1. Eau permutée
 - 2. Alcool éthylique
 - 3. Alcool méthylique
 - 4. Ethylène glycol
 - 5. Glycerine
 - 6. Acétone
 - 7. Acide acétique

- 4.2.4.b.
 - 1. Eau permutée
 - 8. Pentane
 - 9. Hexane
 - 10. Heptane
 - 11. Iso-octane
 - 12. Huile de vaseline

- 4.2.4.c.
 - 1. Eau permutée
 - 13. Benzène
 - 14. Toluène Antar
 - 15. Toluène Prolabo
 - 19. Xylène Antar
 - 20. Xylène Prolabo

- 4.2.4.d.
 - 1. Eau permutée
 - 16. Ethylbenzène
 - 17. Cumène (isopropylbenzène)
 - 18. α Méthylstyrène (isopropenylbenzène)

- 4.2.4.e.
 - 1. Eau permutée
 - 21. Cyclohexane
 - 22. Tétraline
 - 23. Décaline

- 4.2.4.f.
 - 1. Eau permutée
 - 24. Cyclohexanol
 - 25. Cyclohexanone
 - 26. « Gilotherm »

4.3 — Interprétation des résultats

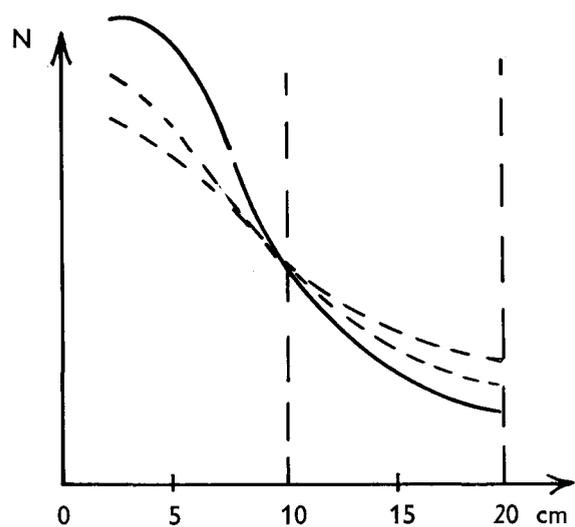
4.3.1. *Aspect des cartes de flux*

La sensibilité maximale se situe entre 3 et 4 cm. Si on ne considère que les hydrocarbures, le contraste maximal dans cette zone apparaît, comme prévu, entre le benzène (hydrocarbure renfermant le moins d'hydrogène) et l'huile de vaseline (oléfine à forte teneur en hydrogène).

Le rapport des taux de comptage extrêmes est de l'ordre de 1,7.

La zone de contraste minimal s'étend entre 9 et 12 cm, dans cette région, le taux de comptage est approximativement indépendant de la composition du liquide.

Au-delà, la disposition des courbes est inversée. A 18 cm, on peut relever un contraste important (supérieur à 2) que les fluctuations statistiques atteignant 1,5 %, n'ont pas permis d'exploiter.

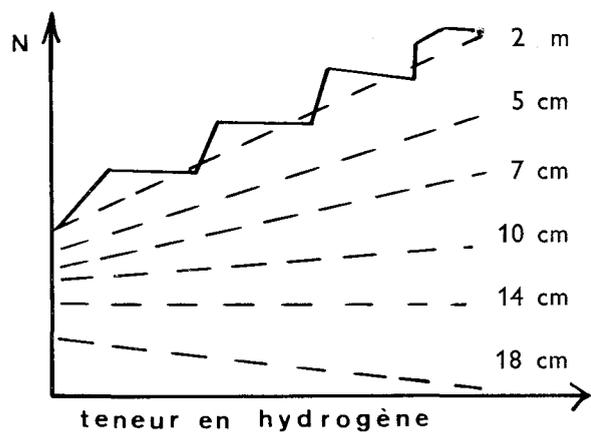


4.3.2. Variation du taux de comptage en fonction de la teneur en hydrogène

Si on représente la variation du taux de comptage en fonction de la concentration en hydrogène, et ceci pour différentes distances source-détecteur, on obtient un réseau de courbes en « stores » se présentant grosso modo sous forme de droites de pente différente; la distribution des valeurs discrètes s'écartant peu des droites moyennes.

On retrouve, sous une forme différente, les résultats de 4.3.1, à savoir:

- sensibilité et contraste élevés à proximité de la source
- contraste nul à distance moyenne (droite horizontale)
- contraste « négatif » à grande distance.



4.3.3. Expression du flux de neutrons en fonction des concentrations en hydrogène, en carbone et en oxygène

La section efficace d'absorption du carbone est négligeable par rapport à celle de l'hydrogène, par contre, sa section efficace de diffusion est importante et la concentration en carbone a une incidence non négligeable dans la diffusion des neutrons. Ce dernier phénomène peut

être globalement représenté par une fonction de deux variables:

$$N = f([H],[C])$$

[H] et [C] étant les concentrations respectives en hydrogène et en carbone.

On peut, pour le moins, assurer, grâce à la représentation graphique du paragraphe 4.3.2, que la deuxième variable joue un rôle de second ordre dans le processus de diffusion. Compte tenu de l'allure rectiligne des courbes en « stores » (4.3.2), on peut faire l'approximation suivante:

$$N = A[H] + B + \varepsilon$$

On est en droit de supposer que ε est une fonction à la fois de [C] et de la liaison chimique.

On a obtenu un alignement satisfaisant des points représentatifs des différents hydrocarbures utilisés, et ceci pour différentes distances source-détecteur, en portant $N/[C]$ en fonction de $[H] / [C]$.

L'équation du réseau de courbes serait alors:

$$N/[C] = A[H]/[C] + B \quad (1)$$

soit:

$$N = A[H] + B[C] \quad (2)$$

Ces résultats corroborent ceux de Martinelli et Ricci (Réf. 3) et ceux de Tornau (Réf. 4).

Il est possible d'assimiler l'oxygène au carbone en remplaçant le second terme de la relation (2) par:

$$B([O] + [C])$$

Les points représentatifs des liquides organiques contenant de l'oxygène ne s'éloignent pas de ceux des hydrocarbures.

Cependant, compte tenu des différences notables entre les sections efficaces de diffusion et d'absorption du carbone et de l'oxygène:

Carbone	$\sigma_a = 3,2 \text{ mb}$	$\sigma_a = 4,8 \text{ b}$
Oxygène	$\sigma_a = 0,2 \text{ mb}$	$\sigma_a = 4,2 \text{ b}$

il a été jugé préférable d'affecter à la concentration en oxygène [O], un coefficient indépendant C et d'ajuster les résultats expérimentaux à une relation linéaire de la forme:

$$N = A[H] + B[C] + C[O]$$

4.3.4. Recherche des conditions géométriques optimales pour l'obtention d'une relation linéaire entre le flux de neutrons thermiques et les concentrations en hydrogène, carbone et oxygène

Le traitement des résultats a été effectué à l'ordinateur CAB 500, il a donné des résultats qui corroborent l'évaluation graphique (4.3.2). Les coefficients de la droite de régression obtenue avec les données numériques provenant de la totalité des corps examinés sont représentés, en fonction de la distance source-détecteur, par les courbes de la planche 4.3.4.1. On peut vérifier que les coefficients B et C relatifs au carbone et à l'oxygène ont, comme on l'avait estimé en 4.3.3, des valeurs très proches (planche 4.3.4.1).

Les courbes représentant la variation des écarts type relatifs $\Delta A/A$, $\Delta B/B$, $\Delta C/C$ en fonction de la distance source-détecteur, présentent chacune un minimum assez marqué pour les distances source-détecteur avoisinant 5 cm, c'est évidemment pour cette géométrie que la linéarité de la loi d'absorption est la meilleure.

Lorsqu'on fait intervenir, dans le calcul, les données numériques provenant des 26 corps étudiés, l'importance de ces écarts atteint plusieurs pour cent (planche 4.3.4.2).

Il se trouve que les corps contribuant le plus à cette dispersion sont ceux pour lesquels on avait été amené à formuler des réserves sur leur pureté (3.4). On a donc éliminé les corps suivants:

Éthylène Glycol Heptane Xylène Prolabo Tétraline

qui figuraient sur la liste des produits de qualité médiocre (3.4) ainsi que:

Huile de vaseline et Décaline

dont la pureté n'avait pu être appréciée (ibidem).

Les résultats établis à partir de la liste réduite à 20 corps ne diffèrent pas qualitativement des précédents (Planche 4.3.4.3), par contre la dispersion des valeurs est bien moindre et l'écart type sur le coefficient A atteint seulement 1,4 % pour la distance source-détecteur 6 cm.

Si on adopte la distance, source-détecteur de 6 cm qui correspond à la précision maximale, la relation recherchée s'écrit:

$$kN = 5,42[H] + 0,40[C] + 0,27[O]$$

ou encore:

$$kN = 13,5[H] + [C] + 0,7[O]$$

Pour la distance source-détecteur 5 cm, où la précision reste du même ordre de grandeur la relation s'écrit:

$$kN = 17,5[H] + [C] + 0,7[O]$$

La représentation graphique de cette relation est comparée aux résultats expérimentaux et théoriques correspondants (voir cinquième partie, planche 5.6.1.2).

5 — REPRÉSENTATION THÉORIQUE DES RÉSULTATS EXPÉRIMENTAUX

Les cartographies de flux thermiques dans différents liquides organiques ont été réalisées afin d'établir une relation entre les taux de comptages N et les concentrations volumiques en hydrogène $[H]$ et en carbone $[C]$.

Une relation $N = F([H], [C])$ associée à l'équation

$$\frac{1}{X} \text{Log} \frac{I_o}{I} = \mu_H[H] + \mu_C[C]$$

donnée par la mesure d'absorption du rayonnement gamma, constitue un système de deux équations à deux inconnues qu'il est possible de résoudre si la première relation est explicitée.

On a vu dans la quatrième partie, que la relation entre les taux de comptages et les concentrations en hydrogène et en carbone (le cas échéant, en oxygène) était quasi linéaire dans certaines géométries source-détecteur.

On s'est proposé dans cette cinquième partie, d'établir un modèle mathématique de calcul pour la diffusion et l'absorption des neutrons qui soit capable, non seulement de confirmer les résultats expérimentaux, mais aussi d'extrapoler ceux-ci à des milieux non encore étudiés.

On a successivement exposé dans cette étude les différents mécanismes fondamentaux de ralentissement et d'absorption, puis les différentes méthodes de traitement mathématique applicables à ces phénomènes :

- Méthode de l'Âge de Fermi
- Méthode de Monte Carlo
- Méthode des groupes.

C'est ce dernier modèle de calcul qui s'est montré le plus fructueux, tant du point de vue de la mise en œuvre, que de celui de la précision.

En effet, tous les calculs effectués sur un petit ordinateur (CAB 500) ont abouti à des résultats exprimés sous la forme de cartes de flux théoriques extrêmement proches des résultats expérimentaux.

A partir de ces valeurs, on a recherché, par approximation, une forme analytique simple de la fonction F , confirmé la relation linéaire obtenue expérimentalement, et apprécié l'écart à la linéarité.

La méthode de calcul ainsi établie permet désormais de calculer avec une bonne précision les flux thermiques dans tout milieu organique, sans recourir à des mesures expérimentales.

5.1 — Représentation du flux mesuré par une fonction

Les intensités de flux mesurées sont liées au mécanisme de ralentissement, diffusion et absorption des neutrons par les noyaux du milieu, donc aux caractéristiques et au nombre de noyaux par unité de volume.

5.1.1. Intérêt d'une fonction représentative

Les rôles respectifs du carbone et de l'hydrogène dans la thermalisation et l'absorption des neutrons sont d'autant plus faciles à déterminer expérimentalement que leur pourcentage dans la composition du milieu varie dans une large gamme. Il est même souhaitable de pouvoir étudier les répartitions de flux dans de l'hydrogène pur, du carbone pur et divers mélanges de ces corps.

En fait, les hydrocarbures assez purs, qu'il est possible de procurer en quantités suffisantes à des prix acceptables, ne couvrent qu'une faible échelle des gammes souhaitables. En principe $[C]$ s'étend de 0,5 à 0,9 g/cm³ et $[H]$ de 0,06 à 0,12 g/cm³.

Aussi une représentation mathématique de l'ensemble des phénomènes de ralentissement, diffusion et absorption des neutrons, peut-elle faciliter la recherche de la relation $N = F([H], [C])$. S'il est possible de constituer une fonction $F([H], [C])$ représentant le comportement des neutrons dans un hydrocarbure de teneurs $[H]$ et $[C]$ en hydrogène et carbone, il sera facile d'obtenir les flux correspondant à toutes les combinaisons souhaitables de ces deux variables. De plus, l'introduction de la variable r , distance source-détecteur, dans la fonction F permettra de rechercher la distance optimale pour laquelle la relation $N = F([H], [C])$ sera la plus simple possible.

5.1.2. Paramètres intervenant dans la fonction flux $F([H], [C], r)$

Les mesures ne portent que sur les neutrons de faible énergie, la fonction devra donner le flux à ce niveau. Cependant, elle doit tenir compte du comportement des neutrons aux diffé-

rentes énergies intermédiaires, ainsi que de l'intensité et du spectre de la source initiale. Le comportement des neutrons se traduit, en première approximation, par deux paramètres: l'un σ_d caractérise les chocs mécaniques du neutron contre les noyaux, l'autre σ_a les interactions dues aux forces de liaison nucléaire et intervient dans la capture du neutron.

Ces paramètres varient avec l'énergie du neutron et une représentation tenant compte de toute « l'histoire » du neutron, jusqu'aux basses énergies, devra être de la forme: $F([H], [C], r, \sigma_{d1}, \sigma_{a1}, E_1, \sigma_{d2}, \sigma_{a2}, E_2 \dots \sigma_{dm}, \sigma_{am}, E_m)$, E_i correspond à l'énergie du neutron ayant les paramètres σ_{di} et σ_{ai} .

5.2 — Principe de détermination de la fonction F

Déterminer F revient à choisir un modèle de calcul de flux. Ce choix implique le rappel de quelques notions sur le ralentissement et la diffusion des neutrons.

5.2.1. Mécanisme du ralentissement

Certains éléments comme l'aluminium et l'oxygène peuvent absorber des neutrons rapides (énergie supérieure à 1 MeV) et les réémettre à une énergie beaucoup plus basse (Réf. 25). La différence d'énergie est ensuite restituée sous forme de rayons γ par le noyau excité (Réf. 31). Cette réaction appelée ralentissement par diffusion inélastique concerne essentiellement les éléments légers, l'hydrogène excepté. Elle n'est toutefois qu'assez peu efficace car sa probabilité demeure faible, section efficace de quelques millibarns.

La principale cause du ralentissement réside dans la diffusion élastique qui se borne à des échanges d'énergie entre noyaux et neutrons par chocs mécaniques. L'hydrogène de masse équivalente au neutron joue alors un rôle privilégié. Un seul choc d'un neutron rapide sur un noyau d'hydrogène peut suffire à l'arrêter complètement; le noyau d'hydrogène emportant toute l'énergie. Ce phénomène est toutefois assez rare et l'échange d'énergie entre neutrons et noyaux est beaucoup plus graduel.

Les ouvrages spécialisés (Réf. 26) démontrent les lois réglant le ralentissement des neutrons. Deux notions sont fréquemment utilisées:

- la perte logarithmique moyenne d'énergie ξ , qui relie le nombre moyen de chocs n que subit un neutron rapide dans un modérateur donné avant d'être thermalisé à ses énergies initiale et finale suivant la relation:

$$n \xi = \text{Log} \frac{E \text{ rapide}}{E \text{ thermique}}$$

- la densité de ralentissement qui est par définition la quantité $q(E)$ nombre de neutrons qui par cm^3 et par seconde franchissent le niveau E d'énergie au cours de leur ralentissement.

5.2.2. Mécanisme de la diffusion

Deux grandeurs: la section efficace et le libre parcours moyen caractérisent la diffusion des neutrons.

Les sections efficaces de diffusion Σ_d et d'absorption Σ_a sont les plus habituellement utilisées.

Elles sont définies pour un faisceau parallèle de neutrons monoénergétiques, d'intensité initiale I_0 et tombant perpendiculairement sur un écran d'épaisseur dX , par les relations:

$$\begin{aligned} dI_d &= -I_0 \Sigma_d dX \\ dI_a &= -I_0 \Sigma_a dX \end{aligned} \quad (5.2.2.a.)$$

dI_d représente la partie diffusée du faisceau initial

dI_a représente la partie absorbée par les noyaux du milieu.

Ces relations permettent de mesurer Σ_d et Σ_a pour des écrans de natures différentes (Réf. 27). Bien que définies dans le cas d'un faisceau parallèle, ces grandeurs gardent leur sens pour des neutrons diffusant dans toutes les directions. Il est toujours possible de décomposer un tel nuage de neutrons en groupes ayant des vitesses parallèles. Naturellement Σ_d et Σ_a représentent les sommes des sections efficaces élémentaires de diffusion et d'absorption de chaque atome de l'unité de volume du milieu considéré.

Le libre parcours moyen représente l'épaisseur de matière à l'issue de laquelle un faisceau parallèle de neutrons voit son intensité initiale réduite d'un facteur e . Il est possible de définir un libre parcours moyen de diffusion $\lambda_d = 1/\Sigma_d$ et un libre parcours moyen d'absorption $\lambda_a = 1/\Sigma_a$. La consultation d'ouvrages spécialisés (Réf. 14, 27) permettra de mieux comprendre le mécanisme de la diffusion et la notion d'autres paramètres comme le libre parcours moyen de transport λT ou trajet moyen parcouru dans une direction.

Les sections efficaces élémentaires, dont dépendent finalement toutes les quantités définies ci-dessus, varient avec l'énergie du neutron. Faibles aux hautes énergies, de l'ordre du barn (1 barn = 10^{-24} cm²) pour des neutrons de 1 à 10 MeV, elles s'accroissent jusqu'à 5 ou 10 barns vers les énergies thermiques (0,026 eV). L'hydrogène joue un rôle privilégié puisque sa section efficace de diffusion atteint même jusqu'à 20 ou 80 barns suivant la nature de la molécule qui contient cet atome.

5.2.3. Équation du flux

Le flux se définit comme le nombre de neutrons qui franchissent par seconde une surface de 1 cm² quelle que soit la direction et le sens de leur vitesse par rapport à cette surface. Si n est le nombre de neutrons d'énergie E présents par cm³, v leur vitesse, le flux à l'énergie E s'écrit:

$$\phi(E) = n \cdot v.$$

Le flux total pour plusieurs énergies E_i sera:

$$\phi = \sum_i n_i v_i$$

Un flux ϕ de neutrons d'énergie E se comporte dans un milieu homogène un peu comme un gaz raréfié en milieu poreux. Son équation de diffusion s'établit en écrivant que la variation en un temps dt du nombre de neutrons présents dans un volume dV est:

$$\frac{\partial n}{\partial t} dV = (\text{Production} - \text{Perte par diffusion} - \text{Absorption}) dV$$

D'où, si le milieu est multiplicateur, au rythme de S neutrons par seconde et par cm³, l'équation de diffusion:

$$\frac{\partial n}{\partial t} = S + \frac{\lambda T}{3} \nabla^2 \phi - \Sigma_a \phi \quad (5.2.3.)$$

L'établissement détaillé de cette formule peut être trouvé dans des ouvrages spécialisés (Réf. 21).

L'intégration de l'équation de diffusion permet de suivre l'évolution d'un flux de neutrons et sa répartition dans l'espace. Pratiquement elle fournit une fonction correspondant à la fonction $F([H], [C], r, E_i, \sigma_{ai}, \sigma_{ai} \dots)$ recherchée plus haut.

Il est possible de dégager trois méthodes pour établir le flux sans faire appel à un formalisme mathématique trop complexe:

- la méthode de l'Âge de Fermi
- la méthode de Monte Carlo
- la méthode des groupes.

Les autres méthodes semblent peu applicables avec les seules données acquises ici et surtout elles aboutissent à des équations de flux très longues à intégrer numériquement (Réf. 14).

5.3 — Détermination de F par la méthode de l'Âge de Fermi

La plupart des auteurs qui se sont intéressés au comportement des neutrons en milieux hydrogénés, pour des mesures d'humidité ou de rapport $[C]/[H]$ ont utilisé cette méthode (Réf. 28, 29). Ils spécifient toutefois que, peu applicable dans le cas de modérateurs hydrogénés, elle ne donne que des approximations grossières.

5.3.1. Principe du calcul

Le calcul ne porte que sur les neutrons en cours de ralentissement. La diffusion et l'absorption des neutrons ayant atteint une énergie en équilibre avec les noyaux du milieu (neutrons thermiques) doivent être traitées directement par l'équation générale de diffusion (5.2.3).

La méthode de l'Âge donne par intégration de l'équation ci-dessous, comme terme source dans la relation (5.2.3) la densité de ralentissement $q(x, y, z)$ correspondant à cette énergie.

L'établissement de l'équation ci-dessous, ou équation de l'Âge de Fermi, se trouve dans les ouvrages spécialisés (Réf. 11, 26).

$$\boxed{\frac{\partial q}{\partial \tau} = \nabla^2 q} \quad (5.3.1.)$$

Cette intégration suppose que λ_T et λ_a sont des constantes et que l'énergie E varie suffisamment peu à chaque choc pour donner un sens à l'intégration.

τ a la dimension d'une surface mais, plus E , l'énergie finale, diffère de E_0 , plus τ est grand. En supposant qu'un neutron a une énergie E d'autant plus faible qu'il existe depuis plus longtemps, ce qui est vrai pendant le ralentissement, τ croîtra en même temps que l'existence du neutron s'allongera; d'où la notion d'âge.

5.3.2. Valeurs numériques et validité de la méthode

Chaque corps est caractérisé par un Âge de Fermi différent. La définition de cet âge implique un ralentissement continu du neutron. Il faut en moyenne 115 chocs pour thermaliser un neutron d'énergie initiale de 2 MeV dans le graphite et seulement 18 chocs dans l'hydrogène de l'eau (Réf. 27). De plus, un seul choc sur un noyau d'hydrogène peut suffire à la thermalisation. Cette rapidité de thermalisation laisse craindre l'apparition de graves écarts entre les âges

calculés et les âges expérimentaux dans les corps riches en hydrogène. Les âges expérimentaux sont obtenus à partir des flux mesurés (Réf. 31); les âges calculés à partir de la relation

$$\tau = \frac{\lambda_a \lambda_T}{3\xi} \text{Log} \frac{E_o}{E_{th}} \quad (\text{Réf. 26}),$$

conduisent, pour des neutrons d'énergies initiale 5 MeV et finale 0,026 eV, aux valeurs théoriques du tableau ci-dessous. Les valeurs expérimentales obtenues à partir de mesures de flux dans les milieux considérés diffèrent sensiblement dès que l'hydrogène est présent en quantités importantes:

Milieux	λ_a	λ_T	ξ	τ calculé	τ expérimental
Graphite	3,33 cm	3,53 cm	0,158	420 cm ²	350 cm ²
Béryllium	1,19 cm	1,28 cm	0,2	43 cm ²	98 cm ²
Eau lourde	2,2 cm	2,4 cm	$\xi \Sigma_a = 0,18$	75 cm ²	120 cm ²
Eau	0,16 cm	0,43 cm	$\xi \Sigma_a = 1,53$	1,6 cm ²	40 cm ²
* C ₅ H ₄ O ₂ (Furfural)	1,25	2,5	0,9	17 cm ²	134 cm ²

* Donné par SEMMLER à la résonance de l'In (1,44 eV) (Réf. 32).

Les flux théoriques dans l'eau ont été déterminés pour deux âges thermiques $\tau = 33 \text{ cm}^2$ et $\tau = 46 \text{ cm}^2$, valeurs les plus couramment utilisées bien que, suivant les auteurs, les valeurs possibles varient entre 27 cm^2 et 56 cm^2 (Réf. 33, 34). Les flux expérimentaux et théoriques sont normalisés à la distance source-détecteur 9 cm. Cependant, les écarts au voisinage de la source dépassent 25 %. Ces résultats figurent sur la planche (5.3.2) et montrent largement le peu d'intérêt de cette méthode dans notre cas.

5.4 — Détermination de F par la méthode de Monte Carlo

La méthode de l'« âge » donne de mauvais résultats dans le problème étudié parce que le calcul est basé sur un principe de ralentissement continu différant beaucoup du processus réel. Une méthode suivant les étapes successives du ralentissement des neutrons un à un par calculs numériques doit permettre d'approcher beaucoup plus la réalité. Un tel principe est utilisé pour étudier les diffusions et absorptions des photons γ dans la matière. C'est la méthode de « Monte Carlo » basée sur l'étude complète de la « vie » d'un certain nombre de particules d'un flux. Elle permet d'en tirer le comportement de ce flux à toutes les énergies (Réf. 35).

Il faut, pour que la précision soit bonne, que le nombre de particules étudiées soit assez grand. Par analogie avec la mesure d'un flux par comptage, l'erreur absolue sur le flux calculé sera égale à la racine carrée du nombre de particules étudiées. Pour obtenir une précision de 1 % il faut étudier dix mille particules. Or chaque vie peut comporter de vingt à cent interactions. Le traitement de chaque interaction nécessite l'introduction de cinq à huit paramètres, perte d'énergie, angle de diffusion, probabilités d'interactions, positions, etc... Chacun de ces paramètres varie selon les lois du hasard. Ceci entraîne la mise au point des fonctions de répartition aléatoires de ces paramètres.

L'application d'une telle méthode est longue. Le calcul entraîne l'utilisation d'un ordinateur durant plusieurs heures. Or, il faudrait envisager de traiter, pour notre problème, les cas des vingt-six corps étudiés, plus un certain nombre d'extrapolations.

D'autre part, cette méthode ne peut donner plus de précision que n'en ont les paramètres utilisés. Or, les sections efficaces ne sont pas toujours très exactement définies pour chaque énergie. Les courbes classiques (Réf. 25) donnent en général la section efficace totale $\sigma_T = \sigma_a + \sigma_d$ plus aisées à mesurer. Il reste à séparer les deux sections efficaces d'absorption et de diffusion.

Pratiquement, il serait nécessaire de modifier légèrement les sections efficaces pour obtenir un bon accord avec les résultats expérimentaux. Un tel procédé implique de longs tâtonnements compte tenu du nombre de paramètres susceptibles d'intervenir. Étant donnés les moyens dont nous disposons, la méthode de Monte Carlo ne pouvait qu'être rejetée.

5.5 — Détermination de F par la méthode des groupes

Une méthode de calcul entraînant des hypothèses sur le mode de ralentissement donne des résultats peu compatibles avec l'expérience. Un modèle décrivant fidèlement les phénomènes ne peut convenir, tant à cause de la difficulté des calculs que de l'imprécision des données. Il faut, par conséquent, formuler une solution intermédiaire consistant à suivre la diffusion des neutrons aux diverses étapes de leur ralentissement sans faire cependant d'hypothèses restrictives sur leur passage d'un niveau d'énergie à un autre. Le mécanisme exact du ralentissement sera ignoré puisqu'il est difficile de le décrire, seule importera la forme finale du flux. Les quelques paramètres intervenant dans la fonction représentative pourront être optimisés de telle sorte que les résultats expérimentaux et théoriques s'accordent au mieux. Une telle méthode, la méthode des groupes d'énergie, est d'ailleurs largement utilisée par les neutroniciens (Réf. 26, 27).

5.5.1. Principes généraux

La diffusion des neutrons est étudiée dans chaque groupe en les supposant monoénergétiques. Dans un groupe, les différentes sections efficaces intervenant dans les formules sont supposées constantes, elles seront déterminées de telle façon que le flux thermique coïncide avec les mesures. L'équation générale de la diffusion (5.2.3) s'applique dans chaque groupe. Le terme source comprend les neutrons venant des groupes d'énergie supérieure et le terme absorption les neutrons passant aux groupes inférieurs. Afin de simplifier, il est possible de supposer que tout neutron d'un groupe i subissant une diffusion passe dans le groupe $i + 1$. S'il n'y a que deux groupes d'énergie, un rapide et un thermique, le terme absorption du groupe rapide sera $\Sigma_{ar} \phi_r$ égal au terme source du groupe thermique. Le terme absorption du groupe thermique sera alors $\Sigma_a \phi_{th}$, valeur classique.

a) Équation du flux dans le milieu expérimental

Les milieux hydrogénés examinés peuvent être considérés de dimensions infinies pour le calcul des flux; les longueurs de diffusion n'excèdent guère 3 cm tandis que le rayon de la cuve est de 20 cm. Enfin, le bain thermostaté, une gaine d'eau de 10 cm, constitue un excellent réflecteur de neutrons, de nature voisine des hydrocarbures.

Tous les problèmes se traitent en système infini de géométrie sphérique, le milieu étant homogène et isotrope, ce qui simplifie les équations. Le régime stationnaire est supposé atteint $\partial n / \partial t = 0$, ce qui transforme l'équation (5.2.3.) en:

$$\frac{\lambda_T}{3} \nabla^2 \phi - \Sigma_a \phi + S = 0 \quad (5.5.1.a.1)$$

En coordonnées sphériques, elle devient:

$$\frac{\lambda_T}{3} \frac{d^2\phi}{dr^2} + \frac{\lambda_T}{3} \frac{2}{r} \frac{d\phi}{dr} - \Sigma_a \phi + S = 0 \quad (5.5.1.a.2)$$

En posant $K^2 = \frac{3}{\lambda_a \lambda_T}$ la relation s'écrit:

$$\frac{d^2\phi}{dr^2} + \frac{2}{r} \frac{d\phi}{dr} - K^2 \phi = - \frac{3S}{\lambda_T} \quad (5.5.1.a.3)$$

Un changement de variable $\phi = u/r$ permet d'obtenir l'intégrale générale de l'équation sans second membre (Réf. 21):

$$\phi = A_1 \frac{e^{-Kr}}{r} + A_2 \frac{e^{+Kr}}{r} \quad (5.5.1.a.4)$$

La solution particulière de l'équation avec second membre dépend de la forme de S . La définition de A_1 et A_2 est liée aux conditions, aux limites, au voisinage de la source essentiellement.

b) Diffusion des neutrons thermiques

Les neutrons thermiques proviennent exclusivement du groupe rapide. En raison de sa symétrie sphérique, le milieu peut être divisé en coquilles, sources de neutrons thermiques. Chaque coquille de rayon r' , centrée sur la source de neutrons rapides, émet par seconde uniformément sur ses deux faces un nombre total de Q neutrons thermiques. L'émission sur une seule face par cm^2 est $Q/8\pi r'^2$ (Réf. 30).

La détermination des constantes A_1 et A_2 de (5.5.1.a.4) se fait en supposant que l'unique source de neutrons thermiques est une coquille de rayon r' . Le flux total est obtenu en sommant sur toutes les coquilles.

Deux cas se présentent selon que la source de neutrons rapides est absorbante ou non. Une source absorbante annule le flux à une distance r'' du centre.

b) a. Source non absorbante

La solution se décompose en deux:

$\alpha)$ $r < r'$

Le flux doit s'annuler si r tend vers l'infini. Donc: $A_2 = 0$, il reste:

$$\phi_1 = A_1 \frac{e^{-Kr}}{r}$$

$\beta)$ $r > r'$

Le flux doit demeurer fini lorsque r tend vers zéro.

Il vient (Réf. 30):

$$\phi_2 = A_1 \left[\frac{e^{-Kr}}{r} - \frac{e^{+Kr}}{r} \right]$$

$\gamma)$ $r = r'$

Le flux est continu, pour $r = r'$, $\phi_1(r') = \phi_2(r')$, il vient:

$$B_1 = A_1 (1 - e^{2Kr'})$$

Les flux s'expriment en fonction de A_1 et de $e^{Kr'}$:

$$\phi_1 = A_1 \left[\frac{e^{-Kr}}{r} - \frac{e^{K(2r'-r)}}{r} \right] \quad (r > r')$$

$$\phi_2 = A_1 \left[\frac{e^{-Kr}}{r} - \frac{e^{+Kr}}{r} \right] \quad (r < r')$$

δ) Densité de courant au voisinage de la coquille source

La coquille source donne Q neutrons par seconde, la somme des courants de neutrons J_1 et J_2 sur la coquille r' est égale à:

$$\frac{Q}{4\pi r'^2}$$

J_1 et J_2 sont comptés positivement dans le sens des rayons croissants, tels que $J_1 - J_2 = \frac{Q}{4\pi r'^2}$ (Réf. 26).

$$J_1 = -\frac{\lambda_T}{3} \frac{d\phi_1}{dr} = \frac{\lambda_T}{3} \times A_1 \left[\frac{e^{-Kr}}{r} \left(K + \frac{1}{r} \right) - \frac{e^{K(2r'-r)}}{r} \left(K + \frac{1}{r} \right) \right]$$

$$J_2 = -\frac{\lambda_T}{3} \frac{d\phi_2}{dr} = \frac{\lambda_T}{3} \times A_1 \left[\frac{e^{-Kr}}{r} \left(K + \frac{1}{r} \right) + \frac{e^{Kr}}{r} \left(K - \frac{1}{r} \right) \right]$$

$$J_1 - J_2 = -\frac{\lambda_T}{3} \times A_1 \left[\frac{e^{Kr}}{r} \left(K - \frac{1}{r} \right) + \frac{e^{K(2r'-r)}}{r} \left(K + \frac{1}{r} \right) \right] = \frac{Q}{4\pi r'^2}$$

Si r tend vers r' , il vient:

$$-\frac{\lambda_T}{3} \times A_1 \left[\frac{e^{Kr'}}{r'} (2K) \right] = \frac{Q}{4\pi r'^2}$$

$$A_1 = \frac{-3Q \times e^{-Kr'}}{8K\lambda_T r' \pi}$$

D'où les équations du flux:

$$\phi_1 = \frac{3Q}{8\pi r r' K \lambda_T} [-e^{-K(r+r')} + e^{-K(r-r')}] \quad (r > r')$$

$$\phi_2 = \frac{3Q}{8\pi r r' K \lambda_T} [-e^{-K(r+r')} + e^{-K(r'-r)}] \quad (r < r')$$

Ce qui peut se regrouper en une seule équation (Réf. 30):

$$\phi = \frac{3Q}{8\pi r r' K \lambda_T} [-e^{-K(r+r')} + e^{-K|r'-r|}] \quad (5.5.1.c.)$$

b) b. Source absorbante

Le calcul est identique, il suffit de poser $\phi_2 = 0$ pour $r = r''$, rayon où le flux s'annule:

$$A_1 \frac{e^{-Kr''}}{r''} + A_2 \frac{e^{Kr''}}{r''} = 0$$

$$\phi_2 = A_1 \left[\frac{e^{-Kr}}{r} - \frac{e^{K(r-2r'')}}{r} \right]$$

L'introduction de l'exponentielle $e^{-2Kr''}$ entraîne si $K = \sqrt{\frac{3}{\lambda_a \lambda_T}}$:

$$\phi(r) = \frac{Q\sqrt{3\Sigma_T}}{8\pi r r' \sqrt{\Sigma_a}} [-e^{-K(r+r'-2r'')} + e^{-K|r'-r|}] \quad (5.5.1.d.)$$

La relation (5.5.1.c.) devient un cas particulier, $r'' = 0$ de (5.5.1.d.).

b) c. Choix des sections efficaces

Les sections efficaces utilisées dans la littérature sont prises comme valeurs approchées pour les calculs de flux. La diffusion des neutrons thermiques dépend de la section efficace d'absorption par Σ_a et K et de la section efficace de diffusion par Σ_T et K dans la relation (5.5.1.d.).

Les sections efficaces d'absorption semblent assez bien définies. Les différents auteurs donnent des valeurs voisines (Réf. 14, 36). Elles seront introduites dans les calculs sans modification.

$$\begin{aligned} \sigma_a \text{ hydrogène} &= 0,333 \text{ barn} \\ \sigma_a \text{ oxygène} &= 0,0002 \text{ barn} \\ \sigma_a \text{ carbone} &= 0,0032 \text{ barn} \end{aligned}$$

Les sections efficaces de diffusion varient beaucoup selon les auteurs. Celle de l'hydrogène est comprise entre 80 barns et 30 barns (Réf. 22). Les premiers calculs seront traités avec:

$$\begin{aligned} \sigma_d \text{ hydrogène} &= 40 \text{ barns} \\ \sigma_d \text{ carbone} &= 4,5 \text{ barns} \\ \sigma_d \text{ oxygène} &= 3,5 \text{ barns} \end{aligned}$$

c) Ralentissement des neutrons rapides

Le traitement du groupe rapide peut se faire par l'équation de diffusion, mais il est possible de faire une hypothèse simplificatrice dans le cas d'un milieu fortement hydrogéné. Le ralentissement discontinu qui constitue un handicap pour le calcul par l'Âge de Fermi peut devenir un avantage. Au cours d'un choc sur un noyau d'hydrogène un neutron peut perdre toute son énergie. S'il n'en perd qu'une partie, cette fraction sera importante. Comme la section efficace de l'hydrogène s'accroît fortement à partir de 200 KeV le neutron ayant atteint cette énergie en un seul choc ne pourra guère s'éloigner avant d'en subir un autre (Réf. 14).

En moyenne, sans sortir d'une sphère de 2 cm de rayon, centrée sur le lieu du premier choc, le neutron se trouve thermalisé. La fonction représentant la probabilité d'un premier choc ne diffère guère de la fonction source de neutrons thermiques.

c) a. Répartition des sources de neutrons thermiques

Le milieu entourant la source rapide est homogène et isotrope. Il peut être découpé en n couches i , contiguës, limitées chacune par des sphères de rayon R_i et P_i (avec $R_i < P_i$ et $R_i + 1 = P_i$). Soit N_0 le nombre total de neutrons rapides sortant de la source par unité de temps, $\bar{\Sigma}_d$ la section efficace macroscopique moyenne de diffusion du milieu pour les neutrons rapides. Il entre dans la $i^{\text{ème}}$ couche $N_0 e^{-\bar{\Sigma}_d R_i}$ neutrons qui n'ont pas encore subi de chocs et il en ressort:

$$N_0 e^{-\bar{\Sigma}_d P_i}$$

Au cours de la traversée N_i neutrons ont subi un choc:

$$N_i = N_0 [e^{-\bar{\Sigma}_d R_i} - e^{-\bar{\Sigma}_d P_i}] \quad (5.5.1.c.a.)$$

Si la couche est assez épaisse, de l'ordre du libre parcours moyen de diffusion, la plupart de ces N_i neutrons subissent plusieurs chocs dans cette couche et n'en ressortent qu'à l'état thermique. (Le libre parcours moyen de diffusion λ_d peut être de 1 à 2 cm dans l'eau pour des neutrons déjà fortement ralentis).

Les dimensions du milieu sont grandes devant l'épaisseur d'une couche, les neutrons thermiques de la $i^{\text{ème}}$ couche paraissent tous venir d'une coquille source sphérique de rayon:

$$r' = Q_i = \frac{R_i + P_i}{2}$$

Le terme source Q utilisé dans l'équation de diffusion devient N_i . Il donne un flux partiel ϕ_i et le flux total est $\phi = \sum_i \phi_i$.

c) b. Choix des sections efficaces

La section efficace adoptée est une section efficace moyenne tenant compte de toute la répartition spectrale des neutrons rapides. Il est difficile d'obtenir avec précision des valeurs exactes par intégration des courbes de sections efficaces en raison des raies de résonance (Réf. 25). De plus, la forme du spectre de la source n'est pas connue avec précision. Les valeurs suivantes approximatives des sections efficaces de diffusion élémentaires ont été retenues:

$$\begin{aligned} \sigma_d \text{ hydrogène} &= 1,5 \text{ barn} \\ \sigma_d \text{ carbone} &= 1,8 \text{ barn} \\ \sigma_d \text{ oxygène} &= 1,9 \text{ barn} \end{aligned}$$

Elles pourront être éventuellement modifiées à la suite de calculs d'approximation.

5.5.2. Application de la méthode du premier choc

Le flux élémentaire ϕ_i provenant de la seule coquille source de rayon $r' = Q_i$ est donné par la relation:

$$\phi_i(r) = \frac{N_o (e^{-\bar{\Sigma}_d R_i} - e^{-\bar{\Sigma}_d P_i}) \sqrt{3\Sigma_T}}{8\pi r Q_i \sqrt{\Sigma_a}} [e^{-K|Q_i-r|} - e^{-K(r+Q_i-2r')}] \quad (5.5.2.1.)$$

La thermalisation étant un phénomène continu il est possible d'assimiler à

$$N_i = N_o [e^{-\bar{\Sigma}_d R_i} - e^{-\bar{\Sigma}_d P_i}]$$

l'élément différentiel

$$dN = N_o \bar{\Sigma}_d e^{-\bar{\Sigma}_d R} dR$$

Le flux total est donné par:

$$\phi(r) = \int_{R=0}^{R=\infty} \frac{\sqrt{3\Sigma_T} N_o \bar{\Sigma}_d e^{-\bar{\Sigma}_d R}}{8\pi r R \sqrt{\Sigma_a}} [e^{-K(R-r)} - e^{-K(r+R-2r')}] dR$$

L'intégration de $\int_{\sigma}^{\infty} \frac{e^{-K|R-r|}}{R} dR$ ne semble pas possible analytiquement.

La fonction F recherchée n'aura donc pas plus de représentation analytique dans cette méthode que dans la méthode de l'âge. Mais il est possible d'obtenir par intégration numérique les valeurs du flux thermique pour chaque distance source-détecteur.

a) Mode de calcul

L'intégration numérique nécessite le choix des rayons des couches de ralentissement et des coquilles sources et la programmation du cheminement du calcul.

Afin de tenir compte du pouvoir réflecteur non nul du bain thermostaté, l'épaisseur du milieu ralentisseur est prise égale à 25 cm. Expérimentalement elle est de 19 cm puisque la cuve a 40 cm de diamètre et la source 1 cm de rayon. Mais les 10 cm d'épaisseur du bain thermostaté, d'une teneur en hydrogène voisine des corps étudiés, renforce le flux au voisinage des limites de la cuve.

Ces 25 cm de modérateur sont découpés en 11 couches d'épaisseur variable. Soit en partant de la source: 4 couches de 1 cm, 4 couches de 2 cm, 2 couches de 4 cm et 1 de 6 cm. Les couches voisines de la source sont les plus minces puisque le gradient de flux y est plus élevé. Chaque couche ralentisseuse contient une coquille source centrale. Les rayons de ces coquilles Q_i sont 1,5 - 2,5 - 3,5 - 4,5 - 6 - 8 - 10 - 12 - 15 - 19 - 24 cm.

Les flux sont calculés en onze points différents d'abscisse r , séparés par des intervalles de 1 cm au voisinage de la source. Les distances r choisies sont: 2 - 3 - 4 - 5 - 6 - 7 - 9 - 11 - 13 - 15 - 17 cm. Au-delà de 17 cm le flux risque d'être trop perturbé par l'effet de bord.

b) Résultats

Chronologiquement, les premiers résultats ont porté sur la source non absorbante, l'équation de diffusion ayant d'abord été établie pour cette dernière.

- l'aplatissement (AP) du flux qui est le rapport de l'intensité pour une distance source-détecteur de 3 cm à l'intensité correspondante pour 17 cm. Pour les résultats expérimentaux ces aplatissements varient de 4,65 pour le benzène à 13,4 pour la glycérine en passant par 10,8 pour l'eau. Les corps de faible densité, contenant peu d'hydrogène comme le benzène, ont un flux plus aplati que les corps denses et riches en hydrogène comme la glycérine. Cela s'explique par la forte section efficace de diffusion de l'hydrogène qui empêche les neutrons de s'éloigner beaucoup de la source. Les flux calculés devront présenter des aplatissements voisins des aplatissements des flux expérimentaux.
- le facteur de proportionnalité (PO) qui représente le rapport de l'intensité du flux calculé, normalisé, à l'intensité du flux expérimental pour la distance 9 cm. Le flux calculé est normalisé par un facteur K qui est le rapport des flux expérimental et calculé de l'eau à la distance 9 cm.

L'eau est choisie comme référence puisqu'elle peut être obtenue très pure, et que sa teneur en hydrogène correspond à la moyenne des corps étudiés. La distance de 9 cm est à peu près à mi-chemin de la source et du bord de la cuve, au centre de gravité des courbes de flux.

Les calculs seront considérés comme valables si le rapport PO est voisin de 1 pour tous les corps. Si, alors, les aplatissements AP sont identiques pour les résultats calculés et expérimentaux, les flux théoriques normalisés et expérimentaux, doivent s'identifier.

L'utilisation des sections efficaces définies en (5.5.1.b.c.) ne donne pas nécessairement les meilleurs résultats. Il est intéressant d'essayer d'autres sections efficaces. Pour contrôler ce choix, il n'est pas nécessaire de calculer les flux de tous les corps. Certains corps très voisins ont des cartes de flux identiques. Pratiquement, les contrôles portent sur dix corps: l'eau, le benzène peu dense et pauvre en hydrogène, la glycérine dense et hydrogénée, la décaline, le pentane et le cyclohexanol. Les calculs n'ont lieu que pour les distances 3 cm, 9 cm et 17 cm nécessaires au calcul des coefficients AP , PO , K . Cette réduction du nombre de calculs permet l'essai d'un nombre assez grand de sections efficaces. Pratiquement, ce sont surtout les sections efficaces de diffusion de l'hydrogène qui vont devoir varier.

b) a. Source non absorbante

Les flux sont calculés selon la formule:

$$\phi(r) = \sum_i \frac{N_0(e^{-\bar{\Sigma}_a R_i} - e^{-\bar{\Sigma}_a P_i}) \sqrt{3\Sigma_T}}{8\pi r Q_i \sqrt{\Sigma_a}} [e^{-K|Q_i-r|} - e^{-K(r+Q_i)}] \quad (5.5.2.2.)$$

Les flux calculés diffèrent beaucoup des résultats expérimentaux. Le tableau I résume les principaux essais effectués. Les facteurs de proportionnalité PO ne sont pas trop différents de 1, les écarts ne dépassent pas 20 %. Les facteurs d'aplatissement AP sont en moyenne 4 fois plus importants que dans les résultats expérimentaux.

Il n'y a guère de chance d'obtenir un meilleur accord des résultats avec d'autres sections efficaces. Le large éventail expérimenté et présenté sur le tableau 2 ne montre aucune valeur intéressante. Il est préférable d'essayer le modèle à source absorbante.

b) b. Source absorbante

Ce modèle de calcul a l'avantage de rendre compte de la dépression de flux au voisinage de la source constatée dans les résultats expérimentaux. Il traduit d'ailleurs une réalité physique puisque l'Amercium 241 présente une forte section efficace de capture pour les neutrons thermiques (environ 600 barns).

Deux calculs ont été effectués. Le premier avec la relation (5.5.1.d.) obtenue par intégration de l'équation de diffusion (5.5.1.a.3). Son inconvénient réside dans l'atténuation du flux en fonction de la distance source-détecteur de la forme (voir la relation 5.5.2.1):

$$\phi_i(r) = \frac{H(r)}{r Q_i \sqrt{\Sigma_a}}$$

Dans cette relation Q_i est le rayon de la $i^{\text{ème}}$ coquille source (rayon appelé aussi r') de neutrons thermiques, Σ_a la section efficace d'absorption du milieu. Les grandes valeurs de r et Q_i atténuent trop fortement le flux loin de la source. L'aplatissement AP risque d'être trop élevé. Dans les calculs par la méthode de l'Âge de Fermi les flux sont de la forme $H(r)/r$ (voir la relation 5.3.2). Une relation de ce type peut être utilisée.

Le deuxième calcul essaie de réduire l'aplatissement AP trop important en utilisant une formule semi-empirique dont le mérite essentiel est de donner des résultats plus conformes à la réalité. Pour atténuer l'affaiblissement du flux aux grandes distances source-détecteur le deuxième calcul remplace:

$$\phi_i(r) = \frac{H(r)}{r Q_i \sqrt{\Sigma_a}} \text{ par } \phi_i(r) = \frac{H}{\sqrt{r Q_i \sqrt{\Sigma_a}}}$$

Le tableau 3 traduit les principaux résultats du premier calcul. Pour certains groupes de valeurs des sections efficaces, les facteurs de proportionnalité PO se rapprochent à moins de 10 % de la valeur 1. Les facteurs d'aplatissement AP conservent encore des valeurs trois fois trop grandes. Les rapprocher des valeurs expérimentales nécessiterait le choix de valeurs trop arbitraires des sections efficaces. En particulier, la section efficace de diffusion de l'hydrogène pour les neutrons thermiques serait de l'ordre du barn.

Les essais du deuxième calcul résumés dans le tableau 4 sont beaucoup plus satisfaisants. Les facteurs d'aplatissement AP sont de l'ordre de grandeur de ceux obtenus dans les résultats expérimentaux. Les facteurs de proportionnalité PO sont plus voisins de l'unité. La fonction servant au calcul n'est plus une solution exacte de l'équation de diffusion, mais elle représente

mieux les résultats expérimentaux, ce qui est finalement le but recherché. C'est donc cette deuxième fonction qui est adoptée pour les calculs de flux.

Il a été décidé de retenir comme section efficace de diffusion par atome:

— pour les neutrons rapides:

$$\sigma_{dH} = 1,64 \text{ b} \quad \sigma_{dC} = 1,5 \text{ b} \quad \sigma_{dO} = 1,7 \text{ b}$$

— pour les neutrons thermiques:

$$\sigma_{dH} = 60 \text{ b} \quad \sigma_{dC} = 4,8 \text{ b} \quad \sigma_{dO} = 3,72 \text{ b.}$$

Ces valeurs sont portées dans la seconde fonction flux:

$$\phi(r) = \sum_i \frac{N_0(e^{-\bar{\Sigma}_a R_i} - e^{-\bar{\Sigma}_a P_i})\sqrt{3\Sigma_T}}{8\pi\sqrt{rQ_i}\sqrt{\Sigma_a}} [e^{-K|Q_i-r|} - e^{-K(r+Q_i-2r')}] \quad (5.5.2.c.)$$

elles permettent d'obtenir des flux calculés assez semblables aux résultats expérimentaux. Les figures (5.5.2.1) et (5.5.2.2) représentent les flux calculés du benzène et de la glycérine d'une part et du Pentane et de la Décaline d'autre part, après normalisation par le facteur $K = 1,406$.

Ce sont ces corps qui présentaient les plus grands écarts entre résultats théoriques et résultats expérimentaux. La figure 5.6.1.2 résume, pour les distances d'alignement optimales, la dispersion entre résultats théoriques et expérimentaux sur l'ensemble des produits traités. Les écarts demeurent inférieurs à 10 % et dans la plupart des cas ne dépassent guère quelques pour cent.

En résumé, bien que la méthode de calcul soit encore approximative, les résultats sont bien supérieurs à ceux obtenus par la méthode de l'Âge de Fermi où les écarts atteignaient déjà 30 % avec l'eau. La dispersion résiduelle entre résultats théoriques et expérimentaux provient d'ailleurs peut-être de l'influence des liaisons chimiques sur la diffusion des neutrons thermiques. La section efficace de diffusion de l'hydrogène pour les neutrons thermiques varie beaucoup selon la nature de la molécule renfermant les atomes d'hydrogène. Il n'a pu être tenu compte de cette variation dans les calculs.

5.6 — Application à la recherche d'une forme analytique simple de F

La relation 5.5.2.c. ne montre pas directement l'influence de la composition du milieu sur la répartition du flux. Il est donc nécessaire de calculer les flux relatifs à chaque corps pour différentes distances et de leur appliquer les méthodes de lissage utilisées avec les résultats expérimentaux.

5.6.1. Essais d'une relation linéaire

Une relation du type $N = A[H] + B[C] + C[O]$ a directement été recherchée. Une méthode de moindres carrés a permis d'obtenir les coefficients A , B , C relatifs à chaque distance source-détecteur. Le tableau 5 compare ces coefficients aux coefficients relatifs aux résultats expérimentaux.

Les coefficients expérimentaux et calculés relatifs à une distance ne sont dans des rapports voisins que pour les distances sources-détecteurs comprises entre 5 et 13 cm. La dispersion des rapports aux deux extrémités de cet intervalle peut éventuellement être attribuée:

- à la géométrie non ponctuelle du détecteur BF_3 inconvénient très sensible au voisinage de la source où le gradient de flux est élevé.
- au manque de définition des coefficients A , B , C au-delà de 13 cm.

Les courbes représentatives des écarts types relatifs $\Delta A/A$, $\Delta B/B$, $\Delta C/C$ ont des minima très marqués vers 2,5 cm; mais ces écarts types relatifs dépassent l'unité au-delà de 13 cm (voir figure 5.6.1.1).

La figure 5.6.1.2 compare les résultats théoriques et expérimentaux mis sous la forme linéaire:

$$\frac{N}{[C] + \frac{C}{B}[O]} = \frac{A \cdot [H]}{[C] + \frac{C}{B}[O]} + B$$

La distance source-point de mesure a été choisie comme valeur moyenne puisque les résultats théoriques ont leur maximum de linéarité à 2,5 cm et les résultats expérimentaux à 6 cm (voir tableau 5 — la liste des produits correspondant à chaque N°).

Il convient d'éliminer les quelques corps de pureté douteuse, tels que:

- Éthylène Glycol (4)
- Huile de vaseline (12)
- Décane (23)

L'accord entre les deux résultats devient alors acceptable, bien que la glycérine (5), le pentane (8), le cyclohexanol (24) présentent des dispersions relatives de l'ordre de 5 % à 10 %.

Remarque

Dans la zone de linéarité maximale la relation expérimentale peut se mettre sous la forme:

$$N = K [17,5[H] + [C] + 0,7[O]]$$

La relation 5.5.2.c. peut fournir une explication approximative à ce résultat. Les milieux diffuseurs sont riches en hydrogène, donc les neutrons thermiques ne diffusent jamais très loin de leur lieu d'apparition. (La longueur de diffusion est en général inférieure à 3 cm). La forme du flux est surtout influencée par le pouvoir ralentisseur des différents milieux. Ce sont finalement les termes en $e^{-\bar{\Sigma}_d R_i}$ qui vont donner la forme du flux. Il sera possible d'écrire:

$$\phi \sim \sum_i A_i [e^{-\Sigma_d R_i} - e^{-\Sigma_d P_i}]$$

En développant en série de Taylor autour de $\bar{\Sigma}_d = 0,24$ (valeur moyenne observée pour les différents corps), il vient après sommation:

$$\phi \sim K \bar{\Sigma}_d$$

Or:

$$K \bar{\Sigma}_d = K [N_H \bar{\sigma}_{dH} + N_C \bar{\sigma}_{dC} + N_O \bar{\sigma}_{dO}]$$

en posant:

$$N_H = B[H], \quad N_C = \frac{B}{12}[C], \quad N_O = \frac{B}{16}[O]$$

il vient:

$$\phi \sim KB \left[[H] \bar{\sigma}_{dH} + [C] \frac{\bar{\sigma}_{dC}}{12} + [O] \frac{\bar{\sigma}_{dO}}{16} \right]$$

soit, avec les valeurs choisies en 5.5.2.c.:

$$\phi = N = k [13[H] + [C] + 0,85[O]]$$

relation très analogue à la relation expérimentale.

5.6.2. Généralisation

La relation linéaire n'est qu'approximative. Dans les résultats expérimentaux il est possible d'incriminer les erreurs de mesure: fluctuations statistiques, analyses du milieu, positionnements des détecteurs, ou influence des liaisons chimiques. Ici la précision des calculs dépasse de beaucoup les écarts constatés (voir figure 5.6.1.2) et les liaisons chimiques n'ont pas été introduites dans le calcul.

Il semble que les coefficients A , B , C , soient eux-mêmes des fonctions de $[H]$, $[C]$, $[O]$, ces termes n'intervenant toutefois qu'au second ordre. Un essai de détermination de ces coefficients a pu être effectué. Des calculs de flux sur des hydrocarbures fictifs, où $[H]$ varie sur une large gamme pour plusieurs valeurs de $[C]$, ont permis de tracer les courbes de la figure 5.6.2.1. Dans la mesure où ces calculs sont encore valables sur les plages de variation de $[H]$ et de $[C]$, il apparaît que la pseudo-droite trouvée plus haut est en réalité formée d'un faisceau d'arcs de courbes à grands rayons.

Dans la zone de $[H]/[C]$ correspondant aux hydrocarbures réels, ces arcs se recourent (voir figure 5.6.2.2). Ce résultat semble important car il exclut toute éventualité d'obtenir une relation linéaire parfaite, valable pour des corps très divers.

Si la dispersion expérimentale constatée n'était due qu'aux erreurs de mesure ou au défaut de pureté des produits d'étalonnage, il serait possible de la réduire indéfiniment.

S'il apparaît que la dispersion résiduelle ne peut être éliminée qu'après détermination de la nature du produit utilisé (détermination du paramètre $[C]$ par exemple), les mesures seront entachées d'une erreur fondamentale.

5.7 — Conclusions

La méthode du premier choc donne un mode de calcul des flux thermiques valable dans un milieu hydrogéné. La fonction F recherchée primitivement n'est pas déterminée analytiquement, mais par approximation, cependant les solutions numériques de l'équation de flux sont aisées à trouver.

Il devient possible de calculer les flux thermiques dans des milieux fictifs. Ces résultats permettent de tracer des courbes représentant la variation du flux à une distance donnée de la source, en fonction de la teneur en hydrogène, les teneurs en carbone et en oxygène servant de paramètres. L'analyse des familles de courbes obtenues permet l'interprétation des résultats expérimentaux et donne un ordre de grandeur de la précision maximale que peut atteindre un appareil de mesure de densité par rayonnement $n - \gamma$.

6 — ATTÉNUATION EXPONENTIELLE D'UN RAYONNEMENT GAMMA DANS LES HYDROCARBURES — APPAREILLAGE EXPÉRIMENTAL

La mesure du flux de neutrons thermiques assurant une des deux mesures nécessaires à la détermination des deux paramètres: teneur en hydrogène et teneur en carbone, le signal complémentaire peut être fourni par l'absorption exponentielle d'un faisceau fin de rayons gamma. L'emploi d'un « densimètre » existant comme par exemple le densimètre SAIP n'a pas été retenu pour des raisons d'ordre expérimental; il aurait été nécessaire d'en examiner la géométrie et, le cas échéant, d'en remanier la collimation selon les règles énoncées dans cette étude. Il nous a paru aussi simple d'associer à nos mesures neutroniques une mesure gamma obtenue avec un détecteur à scintillation dont la stabilité serait convenablement assurée.

6.1 — Remarques générales sur les jauges γ

6.1.1. Principe de la mesure

La loi de Beer-Lambert

$$I = I_0 e^{-\mu x}$$

où I_0 est l'intensité initiale d'un faisceau
 I l'intensité finale
 μ le coefficient d'absorption linéaire
 x l'épaisseur de matériau traversée

avec

$$\mu = m\rho$$

m étant le coefficient d'absorption massique
 ρ la densité

s'applique à tout faisceau suffisamment collimaté à l'exclusion des phénomènes secondaires.

Si la géométrie est grossière, la loi d'absorption n'est plus exponentielle et devient impossible à définir par un étalonnage simple; d'autre part, l'existence de rayonnements dégradés rend la mesure sensible aux impuretés (Réf. 52).

Dans le cas d'hydrocarbures, le coefficient μ s'exprime en fonction des teneurs en hydrogène et carbone par la relation:

$$\mu = \mu_H \cdot [H] + \mu_C \cdot [C]$$

Les termes μ_H et μ_C désignant les coefficients d'absorption linéaires spécifiques de l'hydrogène et du carbone.

6.1.2. Généralités sur les jauges gamma

Un densimètre à radiation gamma comprend trois éléments de base:

- un émetteur de rayons gamma constitué d'une source scellée le plus fréquemment de Cs^{137} ou de Co^{60} ,
- un détecteur (scintillateur associé à un photomultiplicateur, ou chambre à ionisation),
- un ensemble électronique de comptage.

Deux causes d'erreurs interviennent dans les mesures et le choix du rayonnement et de l'épaisseur de l'échantillon s'établit de façon à minimiser ces erreurs:

- La cause d'erreur prépondérante provient des fluctuations statistiques: $\Delta I = \pm \sqrt{I}$
Dans ce cas, l'erreur relative sur le terme X dans la relation générale $I = I_0 e^{-\mu X}$ s'écrit:

$$\frac{dX}{X} = \frac{1}{\mu X} \frac{\Delta I}{I} = \frac{1}{\sqrt{I_0}} \cdot \frac{e^{-\frac{\mu X}{2}}}{\mu X}$$

L'erreur devient minimale pour un I_0 donné pour $X = 2$.

- La cause d'erreur prépondérante provient des dérives de l'appareil de détection

$$\frac{dX}{X} = \frac{e^{\mu X}}{\mu X} \times \frac{\Delta I}{I_0}$$

L'erreur devient minimale pour un I_0 donné, pour $\mu X = 1$.

Dans le cas général où les erreurs proviennent à la fois des deux causes, il suffit de choisir le rayonnement et l'épaisseur de l'échantillon pour que

$$1 < \mu X < 2 \quad (\text{Réf. 39})$$

Naturellement, la source étant choisie, il faudra tenir compte de sa décroissance pour modifier périodiquement les valeurs de I_0 . Dans le cas présent le Cs^{137} ayant été sélectionné, cette décroissance est de 0,175 % par mois, ce qui n'entraîne qu'une correction hebdomadaire.

6.1.3. Calcul des caractéristiques géométriques de la jauge

Les coefficients μ_C et μ_H des formules précédentes sont:

- Pour une source de césium: $\mu_H = 0,148$ $\mu_C = 0,072$
- Pour une source de cobalt: $\mu_H = 0,117$ $\mu_C = 0,059$

L'association de ces valeurs avec les compositions chimiques des corps que l'on étudie, conduisent au tableau ci-dessous. Le benzène C_6H_6 et l'isooctane C_8H_{18} représentent les valeurs extrêmes des concentrations relatives C/H.

	ρ (g/cm ³)	m (cm ² /g)		$\mu_X = \mu_H - [H] + \mu_C \cdot [C]$	
		Co^{60}	Cs^{137}	Co^{60}	Cs^{137}
C_6H_6	0,879	0,143	0,179	0,126.X	0,157.X
C_8H_{18}	0,70	0,235	0,295	0,164.X	0,206.X

L'optimum de fonctionnement est atteint pour des épaisseurs de l'ordre de 10 cm avec le Cs^{137} , de 12 à 15 cm avec le Co^{60} .

6.2 — Montage expérimental

Le détecteur est un photomultiplicateur (53 AVP) associé à un scintillateur I Na de 2,2 cm de rayon et de 5 cm de longueur. Il est thermostaté par une chemise d'eau. Un cylindre de plomb protège l'ensemble des rayonnements parasites tandis qu'un écran de plomb de 5 cm d'épaisseur percé d'un trou de 1,8 mm de diamètre, assure la collimation. Un ensemble d'électronique classique compte les impulsions venant des détecteurs.

La cellule contenant le liquide dont on veut mesurer la densité est constituée d'un tube en acier inoxydable d'un diamètre d'environ 10 cm, de longueur 30 cm, fermé à ses deux extrémités par des joues en acier inoxydable munies d'ajutages pour permettre la circulation du liquide à l'intérieur. Cette cuve est soigneusement calorifugée avec du polystyrène expansé.

Le liquide qui circule à l'intérieur est maintenu à température constante grâce à un système auxiliaire, et la circulation d'eau se fait au moyen d'une pompe péristaltique. Ce système auxiliaire comprend une petite cuve contenant le liquide étudié, prévue pour recevoir la jauge à neutrons nécessaire à la mesure complémentaire. Cette cuve est immergée dans un bain d'eau thermostatée au moyen de deux pompes chauffantes.

6.3 — Mesures

Les recherches classiques d'un palier de comptage à partir des courbes de discrimination obtenues pour plusieurs HT de fonctionnement du P.M. ont permis de fixer cette HT à 1 650 Volts pour des conditions de travail optimales. Le seuil de discrimination des comptages est fixé à 0,2 Volt. Dans ces conditions, le taux de comptage est de l'ordre de 2 000 c/s et le mouvement propre de la sonde de 4 c/s.

L'erreur de mesure dépasse rarement $\pm 2\sigma$ mais des fluctuations irrégulières peuvent provenir des variations de tensions du secteur. Par conséquent, il est nécessaire de faire avant chaque mesure un comptage sur cale étalon pour établir des corrections.

L'atténuation exponentielle, donc la bonne collimation, du faisceau a été vérifiée en disposant entre source et détecteur des échantillons de graphite de 8, 7, 6 et 5 cm d'épaisseur.

La détermination exacte de l'épaisseur de liquide traversée peut se faire en remplissant la cellule de mesure d'eau permutée. La température de cette eau permet de calculer son coefficient d'absorption linéaire pour le rayonnement du Cs¹³⁷.

$$\mu_e = 0,0857 \cdot \rho$$

D'où l'épaisseur d'eau traversée:

$$Y = \frac{1}{\mu_e} \cdot \text{Log} \frac{N_0}{N}$$

N_0 et N étant les intensités mesurées respectivement cellule vide et remplie d'eau.

L'erreur maximale sur Y peut être calculée simplement à partir de la relation ci-dessous:

$$\frac{\Delta Y}{Y} = \frac{\Delta \mu_e}{\mu_e} + \frac{\Delta \rho}{\rho} + \sqrt{\frac{1}{N_0} + \frac{1}{N}}$$

Pratiquement $\frac{\Delta \mu_e}{\mu_e} = 10^{-3}$. Précision généralement admise dans la littérature (Ref. 38).

Il vient alors:

$$\frac{\Delta Y}{Y} = 2 \cdot 10^{-3}$$

L'erreur est plus grande que celle prévue initialement en partie parce que l'on a donné ici l'erreur maximale et non l'écart type et qu'il y a une erreur de 1 ‰ provenant des valeurs données des μ_e . Une détermination plus précise de μ_e , à partir cette fois d'une cuve rectangulaire dont l'épaisseur serait connue avec une grande exactitude, abaisserait l'erreur $\Delta \mu_e / \mu_e$ à quelques fractions de pour mille.

Des mesures de la densité de l'eau à des températures différentes ont été effectuées pour vérifier le bon fonctionnement de la jauge (dérive, reproductibilité) et déterminer l'erreur expérimentale que l'on peut commettre sur une mesure de densité. Si μ_e est le coefficient d'absorption massique de l'eau, que nous avons pris égal à:

$$\mu_e = 0,0857 \pm 0,0001$$

l'erreur maximale sur la densité devient:

$$\frac{\Delta \rho}{\rho} = \frac{\Delta \mu_e}{\mu_e} + \frac{\Delta Y}{Y} + \frac{\alpha}{\alpha \text{Log} \alpha}$$

En fait, puisque nous avons calculé l'épaisseur y à partir d'une valeur bien déterminée de μ_e , quand on mesure la densité de l'eau à une température différente, on effectue des mesures

relatives. L'erreur sur le produit $\mu_e Y$ qui reste évidemment invariable, peut être prise égale à zéro. Donc:

$$\frac{\Delta\rho}{\rho} = 10^{-3}$$

toujours à condition d'effectuer des comptages de l'ordre:

$$N_1 = 3.10^6 \text{ impulsions}$$

$$N_2 = 10^6 \text{ impulsions}$$

Les mesures de densité ont été effectuées sur de l'eau à 39,8°C, puis à 12,8°C.

1° Eau à 39,8°C

Les tables donnent: $\rho_{39,8} \text{ } ^\circ\text{C} = 0,992289$

Densité mesurée ρ'	$ \rho_{\text{moyen}} - \rho' = \Delta\rho$
0,9931	0,001
0,9918	0,002
0,9956	0,002
0,9947	0,001
0,9941	0
$\rho_{\text{moyen}} = 0,994$	$\Delta\rho_{\text{max}} = 0,002$

$$\rho = 0,994 \pm 0,002$$

L'erreur relative sur la mesure de densité est donc:

$$\frac{\Delta\rho}{\rho} = 2.10^{-3}$$

2° Eau à 12,8°C

Les tables donnent: $\rho_{12,8} \text{ } ^\circ\text{C} = 0,999402$

Densité mesurée ρ'	$ \rho_{\text{moyen}} - \rho' = \Delta\rho$
0,9992	0,0002
0,99975	0,0008
0,9986	0,0004
0,9995	0,0005
0,9982	0,0008
$\rho_{\text{moyen}} = 0,99905$	$\Delta\rho_{\text{max}} = 0,0008$

$$\rho = 0,999 \pm 0,001$$

L'erreur expérimentale est donc:

$$\frac{\Delta\rho}{\rho} = 10^{-3}$$

Si l'on tient compte de la dilatation du récipient contenant le liquide dont on mesure la densité, pour un écart de température de 40°C à $26^{\circ}\text{C} = 14^{\circ}\text{C}$, on a un accroissement Δ_Y , de l'épaisseur Y du liquide:

$$\Delta_Y = 10 \times 10^{-6} \times 14 = 0,014 \text{ mm}$$

car le coefficient de dilatation linéaire de l'acier est de l'ordre de 10×10^{-6} . La variation de comptage qui en résulte est:

$$\Delta N = \mu_c N \Delta_Y$$

Pour un comptage de l'ordre de 10^6 :

$$\Delta N \sim 0,086 \times 0,014 \times 10^6$$

$$\Delta N \sim 1200 \text{ cp}$$

$$2\sigma = 2\sqrt{N} = 2000 \text{ cp}$$

On peut donc, en première approximation, pour les calculs négliger l'influence de cette dilatation, puisqu'on ne veut que mesurer l'erreur due à la mesure. Mais ceci montre l'importance des fluctuations de température sur les mesures de densité.

7 — INTERPRÉTATION DES MESURES ET PRÉCISION

Il convient de tirer des conclusions sur les possibilités de la méthode neutron-gamma et d'examiner la précision qu'elle autorise dans les mesures de teneurs en hydrogène et en carbone. A la lumière du chapitre 5.6 il apparaît nettement que les résultats des mesures neutroniques dans les hydrocarbures se présentent comme des fonctions des deux paramètres, teneurs en hydrogène et teneurs en carbone. Associées à des mesures par absorption gamma, dépendant elles-mêmes de ces deux paramètres, les mesures neutroniques peuvent apporter la solution du problème à deux inconnues qu'est la mesure de densité d'hydrocarbures purs.

Les résultats neutroniques peuvent s'associer de deux façons avec les mesures par absorption gamma:

- en assimilant à une loi linéaire la relation obtenue entre taux de comptage neutronique et teneurs en hydrogène et en carbone,
- en traçant un système d'abaques permettant de faire correspondre parfaitement chaque hydrocarbure à un groupe de résultats comprenant une mesure gamma et une mesure neutronique.

Le premier procédé ne peut être précis si la relation linéaire n'est qu'approximative, mais offre l'avantage d'une grande simplicité. Le second qui cerne de plus près la réalité, présente des problèmes d'étalonnage et de traitement complexes.

L'étalonnage de systèmes d'abaques reposant sur ces deux procédés permet de vérifier quelle erreur l'utilisation de chacun d'eux apporterait dans des mesures réelles. De plus, la possibilité d'avoir à la fois des résultats expérimentaux et théoriques, permet d'apprécier quelles sont les parts de la dispersion statistique et de la dispersion naturelle dans chacun des types

de représentation utilisés. Elle permet de déterminer la précision maximale qu'autoriserait la méthode avec un système d'abaques dépourvu d'erreurs.

7.1 — Précision lorsque la mesure gamma est associée à une mesure neutronique assimilée à une loi linéaire

7.1.1. Principe de la mesure

La détermination de $[H]$ et de $[C]$ dans les hydrocarbures ne contenant pas d'oxygène ou d'impuretés s'effectue à partir des deux relations:

— La relation donnée par la mesure gamma

$$\frac{1}{x} \text{Log} \frac{I_o}{I} = \mu_H[H] + \mu_C[C]$$

— La relation donnée par la mesure neutronique

$$N = A \cdot [H] + B \cdot [C]$$

Les résultats s'écrivent après résolution du système sous la forme

$$\begin{aligned} [H] &= a \cdot N + b \cdot \text{Log} \frac{I_o}{I} \\ [C] &= \alpha \cdot N + \beta \text{Log} \frac{I_o}{I} \end{aligned} \quad (7.1.1.)$$

D'après ce qui a été vu en 5.6.2 les coefficients a , b , α , β , ne sont pas rigoureusement des constantes mais des fonctions du second ordre de $[H]$ et $[C]$. Il en résulte une dispersion des résultats autour de la représentation linéaire et une erreur fondamentale dans l'étalonnage. Il est possible d'évaluer cette erreur. Il suffit de supposer que la méthode de calcul de flux mise au point donne des résultats correspondant assez bien au phénomène réel, ce qui semble vérifié, et d'effectuer un calcul d'erreur sur ces résultats. Ces calculs d'erreur se rapportent à un écart type.

7.1.2. Erreur théorique due à la dispersion fondamentale des résultats de calculs neutroniques

En supposant les mesures gamma idéalement précises (fluctuations statistiques négligeables, loi exponentielle d'absorption gamma rigoureusement observée), il devient possible de déterminer, comme dans le cas d'un étalonnage, a , b , α , β à partir des valeurs $[H]$ et $[C]$ des différents hydrocarbures. Il suffit de résoudre le système formé des équations:

$$[H]_i = a N_i + b \text{Log} \frac{I_o}{I_i} \quad (7.1.2.)$$

Chacune de ces équations correspond à l'un des hydrocarbures utilisés. Un système semblable peut être réalisé avec les teneurs en carbone $[C]$.

Les valeurs des N_i et des $\text{Log} \frac{I_o}{I_i}$ sont données par les calculs avec toute la précision désirable. Les résultats obtenus avec les flux théoriques relatifs à 14 hydrocarbures, (voir tableau 7) donnent pour un choix convenable des unités:

$$\begin{aligned} a &= 1,45 \cdot 10^{-4} & b &= -4,71 \\ \Delta a &= 0,82 \cdot 10^{-6} & \Delta b &= 0,22 \\ \alpha &= -0,287 \cdot 10^{-3} & \beta &= 334,0 \\ \Delta \alpha &= 0,12 \cdot 10^{-5} & \Delta \beta &= 0,32 \end{aligned}$$

7.1.3. *Erreur introduite dans la mesure dans le cas d'un étalonnage à partir des résultats de calculs neutroniques*

Les coefficients a , b , α , β étant déterminés avec les précisions données ci-dessus, il reste à examiner comment les erreurs de comptage sur N , I et I_0 influenceront sur les résultats d'une mesure particulière. A partir des relations (7.1.1) il est possible d'écrire :

$$\Delta[H] = \Delta(a \cdot N) + \Delta\left(b \cdot \text{Log} \frac{I_0}{I}\right)$$

avec

$$\Delta(a \cdot N) = a \cdot \Delta N + N \cdot \Delta a$$

et

$$\Delta\left(b \cdot \text{Log} \frac{I_0}{I}\right) = b \left[\frac{\Delta I_0}{I_0} + \frac{\Delta I}{I} \right] + \text{Log} \frac{I_0}{I} \cdot \Delta b$$

Soit dans le cas présent avec $\text{Log} \frac{I_0}{I} \sim 3$ (voir tableau 7)

$$\frac{\Delta I_0}{I_0} = \frac{\Delta I}{I} = 0,1 \%$$

avec $N = 10^6$, les erreurs maximums sur $[H]$ et $[C]$ sont de l'ordre de: $\Delta[H] = 1,6 \text{ g/dm}^3$, $\Delta[C] = 3 \text{ g/dm}^3$.

L'erreur totale sur la densité de l'hydrocarbure devient :

$$\Delta\rho = 4,6 \text{ g/dm}^3 \sim 0,4 \%$$

Remarque

Les N , I_0 et I obtenus ne sont pas seulement entachés de l'erreur liée aux fluctuations statistiques mais de l'erreur venant de la dérive des détecteurs. Cette dérive peut être corrigée par des réétalonnages fréquents. Si N_1 et I_1 sont les mesures brutes, les valeurs à introduire dans les calculs seront $N_2 = kN_1$, $I_2 = KI_1$. Les quantités k et K sont elles-mêmes les quotients de deux comptages d'étalonnage.

$$k = \frac{\mathcal{N}EO}{\mathcal{N}EA} \qquad K = \frac{\mathcal{J}EO}{\mathcal{J}EA}$$

$\mathcal{N}EA$ et $\mathcal{J}EA$ sont les comptages d'étalonnage précédant immédiatement la mesure. $\mathcal{N}EO$ et $\mathcal{J}EO$ les comptages d'étalonnage effectués à l'origine au moment du tarage de l'appareil.

Les erreurs à introduire dans l'appareil deviendraient :

$$\begin{aligned} \Delta N &= \Delta N_2 = \Delta N_1 + \Delta \mathcal{N}EO + \Delta \mathcal{N}EA \\ \Delta I &= \Delta I_2 = \Delta I_1 + \Delta \mathcal{J}EO + \Delta \mathcal{J}EA \end{aligned}$$

Pour que les valeurs $\Delta[H]$ et $\Delta[C]$ déjà assez fortes ne soient pas exagérément accrues, il serait souhaitable que les erreurs statistiques des mesures d'étalonnage soient minimisées. Ceci ne peut être obtenu qu'en accroissant la durée de l'étalonnage. Si la durée de la mesure évaluée à partir des données de l'étude expérimentale, peut être estimée à environ 10 minutes, la durée de l'étalonnage devrait atteindre une demi-heure. Il serait d'ailleurs souhaitable de prévoir un réétalonnage toutes les 3 ou 4 heures surtout si l'appareil est soumis à de fortes variations de température.

7.1.4. Erreur introduite dans la mesure lors de l'étalonnage expérimental

On obtient un ordre de grandeur de l'erreur introduite dans les mesures expérimentales en reprenant le raisonnement des paragraphes 7.1.2 et 7.1.3.

Le tableau 8 rassemble les valeurs expérimentales introduites dans le système d'équations du type (7.1.2).

$$\begin{array}{ll} a = 2,00 \cdot 10^{-4} & b = -2,60 \\ \Delta a = 7,7 \cdot 10^{-6} & \Delta b = 0,22 \\ \alpha = -0,397 \cdot 10^{-3} & \beta = 376,4 \\ \Delta = 0,015 \cdot 10^{-3} & \Delta\beta = 4,1 \end{array}$$

Les mesures sur N ne dépassent pas 0,3 % de précision (à un écart type près). Les mesures gamma sont encore supposées dépourvues d'erreurs. Dans un étalonnage réel, l'erreur qu'elles entraîneraient, serait en partie compensée par un accroissement de précision statistique sur les mesures neutroniques dont l'erreur ne dépasserait pas 0,1 %. En bonne approximation, les erreurs sur $[H]$ et $[C]$ deviennent:

$$\begin{array}{l} \Delta[H] = 8 \text{ g/dm}^3 \\ \Delta[C] = 12,4 \text{ g/dm}^3 \\ \Delta\rho = 20,4 \text{ g/dm}^3 \sim 2 \% \end{array}$$

7.2 — Précision lorsque la mesure gamma est associée à la mesure neutronique au moyen d'un abaque

7.2.1. Système de représentation utilisé

La recherche d'une loi analytique simple reliant mesure neutronique et composition des hydrocarbures étant impossible, il faut se cantonner à une représentation graphique des résultats. Puisque les teneurs en hydrogène et en carbone influent sur les mesures, il est possible d'écrire les deux relations générales: pour les mesures neutroniques: $N = f([H], [C])$; pour les mesures par absorption gamma $I = F([H], [C])$. La seule hypothèse faite sur les fonctions f et F est leur continuité par rapport à $[H]$ et à $[C]$.

Cette continuité est très vraisemblable puisqu'il s'agit de fonction représentant un phénomène physique. Il devient possible, connaissant graphiquement $I = F([H], [C])$, de construire point par point $[H] = U_{[C]}(I)$, la teneur en carbone $[C]$ étant utilisée comme paramètre. En portant ces valeurs de $[H]$ dans la fonction $N = f([H], [C])$ il est possible de construire $N = G_{[C]}(I)$. Autrement dit, dans un système de coordonnées N et I il est possible de construire des courbes reliant la mesure neutronique N à la mesure gamma I . Ces courbes établies pour un appareil donné sont paramétrées en $[C]$. Pour des hydrocarbures ayant une teneur en carbone fixée, la même pour tous, et des teneurs en hydrogène différentes, la mesure neutronique sera liée à la mesure gamma par une seule courbe non analytique. Il est donc possible, avec les résultats obtenus par calcul de tracer tout le réseau des courbes $N = G_{[C]}(I)$ (voir figure 7.2.1.). Le quadrant inférieur renferme les courbes $[H] = U_{[C]}(I)$.

7.2.2. Correspondance avec les résultats expérimentaux

L'expérience ne permet d'obtenir qu'un point d'une courbe $N = G_{[C]}(I)$ puisqu'il n'est en pratique, pas possible de disposer de deux corps ayant la même teneur en carbone et des teneurs en hydrogène différentes. Mais les résultats théoriques donnent avec une bonne précision

la forme des abaques. La figure (7.2.2.1) montre comment se placent les points expérimentaux par rapport aux courbes théoriques. Les valeurs des abscisses $I = I_0 e^{-(\mu_H[H] + \mu_C[C])x}$ sont supposées connues avec une grande précision puisqu'elles dépendent d'une loi bien définie. Il est rappelé que les résultats théoriques et expérimentaux ont été normalisés pour l'eau (voir 5.5.2). Les résultats expérimentaux sont tous décalés par rapport aux résultats théoriques. Ceci peut traduire le fait que nos calculs de flux neutroniques représentent d'autant moins la réalité que les teneurs en carbone sont plus élevées.

Le tableau 6 résume les écarts observés entre flux calculés et flux expérimentaux pour les différents milieux étudiés. Les flux expérimentaux sont mesurés pour une distance source-détecteur de 3 cm. Les flux calculés ont été déterminés pour une distance source-détecteur identique. Ils ont tous été normalisés par le facteur K déjà cité en 5.2.2.

La figure 7.2.2.2 représente les écarts observés entre flux calculés et flux expérimentaux en fonction de la teneur en carbone. On constate que les points expérimentaux (aux erreurs statistiques près) s'alignent bien selon la relation $\Delta N = A[C] + B$, A et B étant des constantes. Cette loi semble minimiser l'influence des liaisons chimiques sur les résultats de mesure. Si ces liaisons avaient un rôle important, les écarts entre théorie et expérience se répartiraient selon les familles chimiques des corps et non proportionnellement à leur teneur en carbone. Naturellement, nos résultats expérimentaux ne sont donnés qu'à 0,3 % près et nous ne pouvons garantir qu'une influence des liaisons chimiques ne s'exerce pas à un niveau plus faible entraînant des écarts de l'ordre de 0,1 % par exemple.

De plus, il se peut que le type de représentation choisie N théorique — N expérimental, en fonction des teneurs en carbone, ait atténué l'effet de la liaison chimique. Une autre représentation N théorique — N expérimental, en fonction des teneurs en hydrogène, sépare bien les résultats en deux familles de points dont l'une rassemble les milieux comportant une double liaison entre atomes de carbone (voir planche 7.2.2.3). Mais la représentation utilisée dans la planche 7.2.2.2, paraît très valable et permet d'utiliser la disposition rencontrée dans la planche 7.2.2.1, à des fins de mesure.

7.2.3. Méthode d'étalonnage préconisée

Pour tirer parti d'un appareil réalisé suivant le principe préconisé, il faudrait recourir simultanément aux calculs et à l'expérimentation pour l'étalonner. Les calculs donnent la forme générale des abaques et permettent des interpolations. En réalisant des mélanges de plusieurs hydrocarbures convenablement choisis il est possible d'obtenir au moins deux milieux ayant une même teneur en carbone et des teneurs en hydrogène différentes. Ceci permettra de tracer la courbe relative à une teneur en carbone. En réalisant cette opération pour deux teneurs en carbone extrêmes $[C] = 500 \text{ g/dm}^3$ et $[C] = 900 \text{ g/dm}^3$ par exemple, il sera possible après interpolation d'avoir un réseau d'abaques satisfaisant. Les courbes intermédiaires s'obtiendront en tenant compte de la courbe de la figure 7.2.2.2.

7.2.4. Précision

En supposant l'étalonnage réalisé convenablement, il est possible de donner un ordre de grandeur des précisions qu'autorisent les abaques. La figure 7.2.2.1 permet de se rendre compte qu'une erreur de 0,1 % sur les mesures gamma et neutroniques aboutit à une erreur de 0,5 g/dm³ sur $[C]$. Cette appréciation peut se faire en supposant les erreurs sur N et $I\gamma$ de 5 % pour faciliter la lecture. L'erreur correspondante sur $[H]$ et $[C]$ est relevée et divisée par 50 pour aboutir au résultat cherché.

La même marge d'erreur reportée sur le quadrant inférieur laisse apparaître une erreur de $0,5 \text{ g/dm}^3$ sur la teneur en hydrogène. La densité est alors affectée d'une erreur $\Delta\rho \sim 1 \text{ g/dm}^3$.

Même en tenant compte du fait que le calcul du paragraphe 7.1.3 concernait l'erreur totale et que l'évaluation présente fait état d'un écart type, il est certain que l'utilisation d'un système d'abaques a, de plus, l'avantage de rendre entièrement compte de la réponse neutronique en fonction de la composition de l'hydrocarbure.

7.3 — Conclusions

L'étude de la diffusion des neutrons dans des milieux hydrogénés débouche sur deux méthodes de mesure des teneurs en hydrogène et en carbone dans les hydrocarbures. La précision des mesures reposant sur ce principe, dépend à la fois de la précision des comptages servant à l'étalonnage, de la précision des comptages de mesure et du modèle représentatif des résultats.

La précision des comptages dépend à la fois des fluctuations statistiques et des dérives de l'appareillage électronique. Le tableau 9 résume l'ensemble des causes d'erreur et leur action sur les mesures définitives. Toutes les erreurs statistiques sont données pour un écart type.

En fait, si d'après le paragraphe 1.4.4 les taux de détection dans les mesures neutroniques ne devaient pas dépasser 300 c/s , les durées des mesures deviendraient prohibitives. Une précision statistique de $0,1 \%$ nécessiterait des comptages de l'ordre de l'heure. Dans les étalonnages, une telle durée est encore concevable, elle ne l'est plus dans les mesures courantes. Aussi, faudrait-il envisager pour assouplir cette exigence, soit admettre l'utilisation de correction de perte de comptage: solution peu technique; soit, envisager de faire étudier par les constructeurs de compteurs à BF_3 un compteur proportionnel sur lequel les pertes de comptage soient plus limitées. La durée des impulsions dans le compteur proportionnel fonction de l'effet capacitif du dispositif (collection de charge sortie d'impulsion), pourrait être réduite.

La source Am-Be et le compteur 0,1 NE 3/1 assurent dans un hydrocarbure ordinaire environ $300 \text{ impulsions/sec}$. Il serait aisé d'augmenter ce chiffre si besoin était. On fabrique des sources Am-Be de 1 Curie et des compteurs à plus haut rendement peuvent être employés. Il devient tout à fait envisageable d'avoir simultanément $0,1 \%$ de précision statistique sur les deux mesures avec des temps de comptage de l'ordre de 500 secondes.

A l'erreur statistique vient s'ajouter l'erreur de correction de dérive. Provenant d'un réétalonnage sur cale cette correction laisse subsister une erreur statistique du même ordre que la précédente (voir 7.1.3).

L'erreur de mesure à introduire sur le système d'abaque (7.2.2.1) dans les meilleures conditions de travail ne sera finalement pas inférieure à $0,2 \%$ sur $I\gamma$ et sur N . Il est donc difficile de limiter les erreurs de densité à des valeurs inférieures à 2 g/dm^3 , même avec un dispositif de mesure technologiquement satisfaisant.

TABLEAU 1 (paragraphe 3.2.3)

Contrôle de la pureté des produits organiques

Produit N° de référence et désignation commerciale	Activation teneurs en Na, Cl, Mn, Cu		Spectrométrie infra-rouge Nature des Impuretés et taux	Densité Écart à la dens. théori- que en 10 ⁻⁵	Appréciation générale de qualité
	Total en ppm	Degré de Pollut. (10 ⁻⁵)			
1 Eau permutée	1,5	2		5	T.B.
2 Alcool éthylique 95-96	4	6		7,0% eau 0*	T.B.
3 Alcool méthylique pur	4,5	< 10		170 présence d'eau ?	B.
4 Ethylène glycol Naphtachimie Techniquement pur	11	10		550	M.
5 Glycerine Blanche pure	6,5	13		100 (0,5% eau) 0*	B.
6 Acétone ordinaire				20	B.
7 Acide acétique pur cristallisable Prolabo				45 (0,2% eau) 0	T.B.
8 Pentane ordinaire Prolabo			<i>n</i> Pentane + Saturés voisins (teneur inférieure à 0,5%)	250	A.B.
9 Hexane ordinaire Prolabo			0,5% de Benzène	1600 1500*	M. présence d'isomères ?
10 Heptane ordinaire Prolabo	< 7	15	94% <i>n</i> Heptane 6% Toluène	3800 1800*	M. présence d'isomères ?
11 Isooctane Etalon Esso	< 5	< 10	100% 2.2.4 triméthyl- pentane	23	T.B.
12 Huile de Vaseline n° 1 codex visqueuse Antar	< 4	< 3	<i>Analyse Antar:</i> carbures naphtaniques 26% carbures paraffiniques 74% carbures arométiques néant [C] = 86,09% [H] = 13,91%		?
13 Benzène Nitration Antar	17	75	0,2% cyclohexane 0,3% saturés paraffinique (Hexane) pas de toluène	150 40*	B.

TABLEAU 1

Produit N° de référence et désignation commerciale	Activation teneurs en Na, Cl, Mn, Cu		Spectrométrie infra-rouge Nature des Impuretés et taux	Densité Écart à la dens. théori- que en 10^{-5}	Appréciation générale de qualité
	Total en ppm	Degré de Pollut. (10^{-5})			
14 Toluène	4,5	15	R. A. S.	1,5	T.B.
15 Toluène nitration Antar	3,5	10	R. A. S.	< 10	T.B.
16 Ethylbenzène ordinaire Prolabo			R. A. S.	70	B.
17 Cumène Progil	< 2,5	< 5	Pic parasite non identifié	72	B.
18 Alpha Méthylstyrène Progil	4	10	pas de spectre de référence	pas de den- sité de réf- érence	M.
19 Xylène purifié Prolabo	18	70	proportions relatives de Méta et de Para: 3/5	> 120	M.
20 Xylène 5° Antar	2	6	10% Toluène 90% Xylène (Méta 70% (Para 20% (Ortho 10%)	6*	T.B.
21 Cyclohexane pur Prolabo			ni aromatiques ni saturés pureté 99,5%	600	A.B.
22 Tétraline Progil	< 5	< 10	Pic parasite non identifié	1400	M.
23 Décaline Progil	1	2	R. A. S.	densité com- prise entre les densités des isomères	?
24 Cyclohexanol Progil				120	A.B.
25 Cyclohexanone Progil	< 8	< 16		250	A.B.
26 Gilotherm 74% Phénylether 26% diphényle	14	70		pas de den- sité de réf- érence	?
27 Thermipe				pas de den- sité de réf- érence	?

TABLEAU 2 (paragraphe 5.2.2)

Sélection des sections efficaces — Source non absorbante

Flux	$\overline{\sigma_{dH}}$	Résultats expérimentaux	1,64		2,00		3,00		1,64		1,50		1,64		1,80		2,00		1,00		1,00		1,20	
			1,50		1,80		2,00		1,20		1,50		1,50		1,50		1,80		1,10		1,80		1,50	
1,70			2,30		2,50		1,70		1,70		1,70		1,70		1,70		1,70		1,20		1,90		1,70	
Flux	$\overline{\sigma_{dH}}$		40		40		40		60		60		60		60		70		80		80		80	
			4,80		3,50		2,00		4,80		4,80		4,80		4,80		3,50		6,00		5,00		6,00	
			3,72		2,80		1,80		3,72		3,72		3,72		3,72		3,72		3,00		7,00		4,00	
		AP	AP	PO																				
Eau		10,8	37,6		44,5		64,7		51,8		47,5		51,8		57,0		72,2		42,4		42,2		49,8	
Benzène		4,65	14,7	1,11	15,7	1,12	18,6	1,18	18,2	1,17	17,6	1,17	18,2	1,18	19,4	1,20	22,2	1,26	17,6	1,17	17,9	1,21	19,4	1,21
Glycerine		13,4	40,4	0,93	47,2	0,92	66,5	0,92	54,1	0,92	50,3	0,92	54,7	0,92	60,2	0,92	75,5	0,92	44,1	0,93	44,9	0,94	52,4	0,93
Décaline		13,1	43,9	0,95	51,7	0,94	75,0	0,93	59,1	0,93	54,9	0,94	60,2	0,94	66,5	0,93	85,0	0,93	46,5	0,95	48,2	0,95	55,6	0,94
Pentane		8,7	31,9	1,05	36,9	1,09	51,9	1,07	43,1	1,06	40,3	1,06	43,6	1,07	47,6	1,07	59,8	1,08	36,1	1,06	36,8	1,06	41,9	1,07
Cyclohexanol		13,1	42,6	0,96	50,1	0,95	72,3	0,94	57,5	0,94	53,3	0,95	58,3	0,95	64,4	0,94	81,7	0,94	45,6	0,95	47	0,96	54,4	0,95

TABLEAU 3 (paragraphe 5.2.2)

Sélection des sections efficaces — Source absorbante

Fonction flux de type: $\frac{H}{rr'\sqrt{A}}$

Flux	$\overline{\sigma_{aH}}$	Résultats expérimentaux																							
	$\overline{\sigma_{aC}}$	1,64		2,50		3,00		2,00		1,80		1,64		1,64		1,64		1,20		1,00		1,00			
Rapide	$\overline{\sigma_{aO}}$	1,50		2,00		2,00		1,80		1,50		1,20		1,50		1,80		1,50		1,50		1,80			
Flux	$\overline{\sigma_{aH}}$	40		40		40		50		60		60		60		60		80		80		80			
Ther-	$\overline{\sigma_{aC}}$	4,80		3,50		2,00		4,00		4,80		4,80		4,80		4,80		6,00		6,00		5,00			
mique	$\overline{\sigma_{aO}}$	3,72		3,00		1,80		3,20		3,72		3,72		3,72		3,72		6,50		7,00		4,00			
		AP	AP	PO																					
Eau		10,8	32,1		48,8		56,3		47,0		48,9		44,5		44,5		44,5		43,1		37,6		36,5		
Benzène		4,65	12,5	1,09	15,2	1,15	16,0	1,16	15,4	1,16	16,4	1,18	15,4	1,14	15,6	1,16	15,8	1,18	16,4	1,18	15,2	1,17	15,2	1,18	
Glycérine		13,4	34,5	0,93	51,6	0,92	57,9	0,92	49,8	0,92	51,7	0,92	46,5	0,92	47,0	0,92	47,5	0,93	45,4	0,93	39,5	0,93	38,9	0,94	
Décaline		13,1	37,6	0,95	56,7	0,94	65,3	0,93	54,8	0,94	57,3	0,94	50,9	0,94	51,8	0,94	52,6	0,94	48,3	0,94	41,5	0,95	41,8	0,96	
Pentane		8,7	27,2	1,05	39,2	1,06	45,0	1,07	38,6	1,06	40,8	1,07	36,9	1,06	37,3	1,06	37,7	1,07	36,1	1,06	31,7	1,06	31,7	1,06	
Cyclohexanol		13,1	36,5	0,96	54,9	0,94	63,0	0,94	53,1	0,95	55,4	0,95	49,4	0,94	50,2	0,95	50,9	0,95	47,2	0,95	40,7	0,96	40,8	0,96	

TABLEAU 4 (paragraphe 5.2.2)

Sélection des sections efficaces — Source absorbante

Fonction flux de type: $\frac{H}{\sqrt{rr'} \sqrt{A}}$

Flux	$\overline{\sigma_{dH}}$	Résultats expérimentaux	1,64		2,00		1,64		1,80		1,64		1,64		1,64		1,64		1,20		1,00				
			Rapide		$\overline{\sigma_{dC}}$		1,50		1,80		1,50		1,50		1,20		1,50		1,80		1,50		1,80		
			$\overline{\sigma_{dO}}$		1,70		2,30		1,70		1,70		1,50		1,70		1,70		1,70		1,70		1,90		
Flux			σ_{dH}		40		40		50		60		60		60		60		70		80		80		
Ther-			σ_{dC}		4,80		3,50		4,80		4,80		4,80		4,80		4,80		4,80		6,00		5,00		
mique			σ_{dO}		3,72		2,80		3,72		3,72		3,72		3,72		3,72		3,72		6,50		4,00		
			AP	AP	PO	AP	PO	AP	PO	AP	PO	AP	PO	AP	PO	AP	PO	AP	PO	AP	PO	AP	PO		
Eau			10,8	7,3		9,0		8,4		10,6		9,4		9,5		9,5		9,5		10,5		8,6		7,3	
Benzène			4,65	3,1	1,00	3,4	1,02	3,4	1,02	3,9	1,07	3,7	1,05	3,7	1,04	3,7	1,05	3,8	1,06	4,0	1,07	3,7	1,05	3,4	1,05
Glycérine			13,4	7,8	0,93	9,5	0,92	8,9	0,92	11,1	0,92	9,9	0,92	9,9	0,92	10,0	0,92	10,1	0,92	11,0	0,92	9,0	0,93	7,7	0,94
Décaline			13,1	8,4	0,96	10,3	0,95	9,7	0,95	12,8	0,95	10,9	0,95	10,7	0,95	10,9	0,95	11,1	0,95	12,0	0,94	9,5	0,95	8,2	0,97
Pentane			8,7	6,3	1,05	7,5	1,05	7,2	1,05	8,9	1,05	8,1	1,05	8,0	1,05	8,1	1,05	8,2	1,05	8,9	1,05	7,3	1,04	6,4	1,04
Cyclohexanol			13,1	8,2	0,96	10	0,96	9,4	0,96	11,8	0,95	10,6	0,96	10,4	0,95	10,6	0,95	10,8	0,96	11,7	0,95	9,3	0,96	8,0	0,97

TABLEAU 5 (paragraphe 5.6.1)

Comparaison des coefficients expérimentaux et théoriques

Distance de Calcul	Résultats théoriques			Distance de Mesure	Résultats expérimentaux			Rapports des coefficients		
	<i>A</i>	<i>B</i>	<i>C</i>		<i>A'</i>	<i>B'</i>	<i>C'</i>	<i>A'/A</i>	<i>B'/B</i>	<i>C'/C</i>
2	722,2	10,2	8,99	2	820,3	33,2	26,0	1,13	3,25	2,88
3	714,8	9,57	6,02	3	816,0	34,6	26,0	1,14	3,61	4,30
4	617,2	17,4	10,6	4	746,5	36,5	26,7	1,21	2,10	2,50
5	500,8	23,3	14,1	5	644,4	39,1	27,2	1,29	1,68	1,92
7	303,5	29,2	17,6	7	409,2	43,3	28,6	1,35	1,48	1,62
9	164,9	29,7	17,9	9	230,9	41,7	26,2	1,40	1,39	1,46
11	77,1	27,7	16,6	11	110,4	37,3	22,5	1,43	1,35	1,35
13,5	15,9	23,3	14,0	13	35,8	31,6	19	2,25	1,35	1,35
17	-137,1	39,3	15,8	17	- 13	18,7	11	0,105	0,48	0,66

TABLEAU 6 (paragraphe 7.2.2.4)

Étude expérimentale de la différence (Flux calculé - Flux expérimental)

$$\text{(Facteur de normalisation } K = \frac{\text{Comptage exp. Eau à 9 cm}}{\text{Comptage calculé Eau à 9 cm}} = \frac{51.406}{36.564} = 1,406)$$

Milieux	Teneur en [C]	Teneur en [H]	N expérim. 3 cm. S.D.	N théorique avant norm.	N théorique après norm.	N théorique N expérim.
Pentane	0,51907	0,10381	97.999	78.920	110.961	+ 12.962
Hexane	0,55753	0,10807	104.177	82.386	115.835	+ 11.658
Heptane	0,59579	0,1098	107.835	84.054	118.180	+ 10.345
Isooctane	0,57931	0,10862	107.182	83.040	116.754	+ 9.572
Huile de Vaseline	0,74365	0,12015	128.400	92.704	130.342	+ 1.942
Benzène	0,80492	0,06751	78.074	55.250	77.681	- 393
Toluène (Antar)	0,7873	0,07498	86.151	60.960	85.709	- 442
Éthylbenzène	0,78068	0,08132	92.199	65.805	92.522	+ 323
Cumène	0,77117	0,08568	96.005	69.001	97.015	+ 1.010
Alpha méthylstyrène	0,82735	0,0766	89.726	62.778	88.266	- 1.460
Xylène (Antar)	0,7795	0,0805	91.853	65.160	91.615	- 238
Cyclohexane	0,66728	0,11121	114.650	85.907	120.785	+ 6.135
Tétraline	0,866	0,0866	104.601	70.966	99.778	- 4.823
Décaline	0,76419	0,11463	125.527	89.389	125.681	+ 154

TABLEAU 7 (paragraphe 7.1.2)

Mesure de densité d'hydrocarbures par rayonnements $\gamma - n$
(cas où ne demeure que l'erreur fondamentale neutronique)

Épaisseur de liquide traversé: 40 cm

Distance source-point de calcul = 3 cm

Énergie γ du Cs^{137} $\mu_H = 0,153$ $\mu_C = 0,077$.

Hydrocarbures	[H]	μ_H [H]	[C]	μ_C [C]	$\mu_H[H] + \mu_C[C]$	$\text{Log } \frac{I_0}{I}$	N
Pentane	0,10381	0,0158829	0,51907	0,0399684	0,0558513	2,23405	789.224
Hexane	0,10807	0,0165347	0,55753	0,0429298	0,0594645	2,37858	823.748
Heptane	0,1098	0,0167994	0,59579	0,0458758	0,0626752	2,50701	840.400
Isooctane	0,10862	0,0166189	0,57931	0,0446069	0,0612258	2,44903	830.272
Huile de Vaseline	0,12015	0,0183829	0,74365	0,0572610	0,0756439	3,02576	926.816
Benzène	0,06751	0,0103290	0,80492	0,0619788	0,0723078	2,89231	553.112
Toluène (Antar)	0,07498	0,0114719	0,7873	0,0606221	0,0720940	2,88376	609.884
Éthylbenzène	0,08132	0,0124420	0,78068	0,0601124	0,0725544	2,90217	658.134
Cumène	0,08568	0,0131090	0,77117	0,0593801	0,0724891	2,89956	690.012
Alpha Méthylstyrène	0,0766	0,0117198	0,82735	0,0637059	0,0754257	3,01702	627.977
Xylène (Antar)	0,0805	0,0123165	0,7795	0,0600215	0,0723380	2,89352	651.679
Cyclohexane	0,11121	0,0170151	0,66728	0,0513806	0,0683957	2,73583	858.899
Tétraline	0,0866	0,0132498	0,866	0,0666820	0,0799318	3,19727	709.583
Décaline	0,11463	0,0175384	0,76419	0,0588426	0,0763810	3,05524	893.663

TABLEAU 8 (paragraphe 7.1.4)

Mesure de densité par rayonnements γ . n

(Utilisation de la formule $\rho = aN + b \text{Log} \frac{I_0}{I}$)

Énergie du Cs^{137} : $\mu_H = 0,153$ $\mu_C = 0,077$.

Épaisseur de liquide traversé = 40 cm

Hydrocarbures	ρ_H	$\mu_H \rho_H$	ρ_C	$\mu_C \rho_C$	$\mu_H \rho_H + \mu_C \rho_C$	$\text{Log} \frac{I_0}{I}$	ρ	N (ther.) 5,8 cm
Hexane	0,10807	0,01653471	0,55753	0,04292981	0,0594645	2,37858	0,66556	0,84.000
Isooctane	0,10862	0,01661886	0,57931	0,04460687	0,06122573	2,44903	0,68793	0,86.200
Benzène	0,06751	0,01032903	0,80492	0,06197884	0,07230787	2,89231	0,87243	0,69.800
Toluène (A)	0,07498	0,01147194	0,7873	0,0606221	0,0720940	2,88376	0,86228	0,74.500
Éthylbenzène	0,08132	0,01244196	0,78068	0,06011236	0,07255432	2,90217	0,86200	0,79.300
Cumène	0,08568	0,01310904	0,77117	0,05938009	0,0724891	2,89956	0,85687	0,82.000
Alpha méthylstyrène	0,07660	0,0117198	0,82735	0,06370595	0,0754257	3,01703	0,90396	0,77.800
Xylène (A)	0,08050	0,0123165	0,7795	0,0600215	0,0723380	2,89352	0,86027	0,78.800

TABLEAU 9 (paragraphe 7.3)

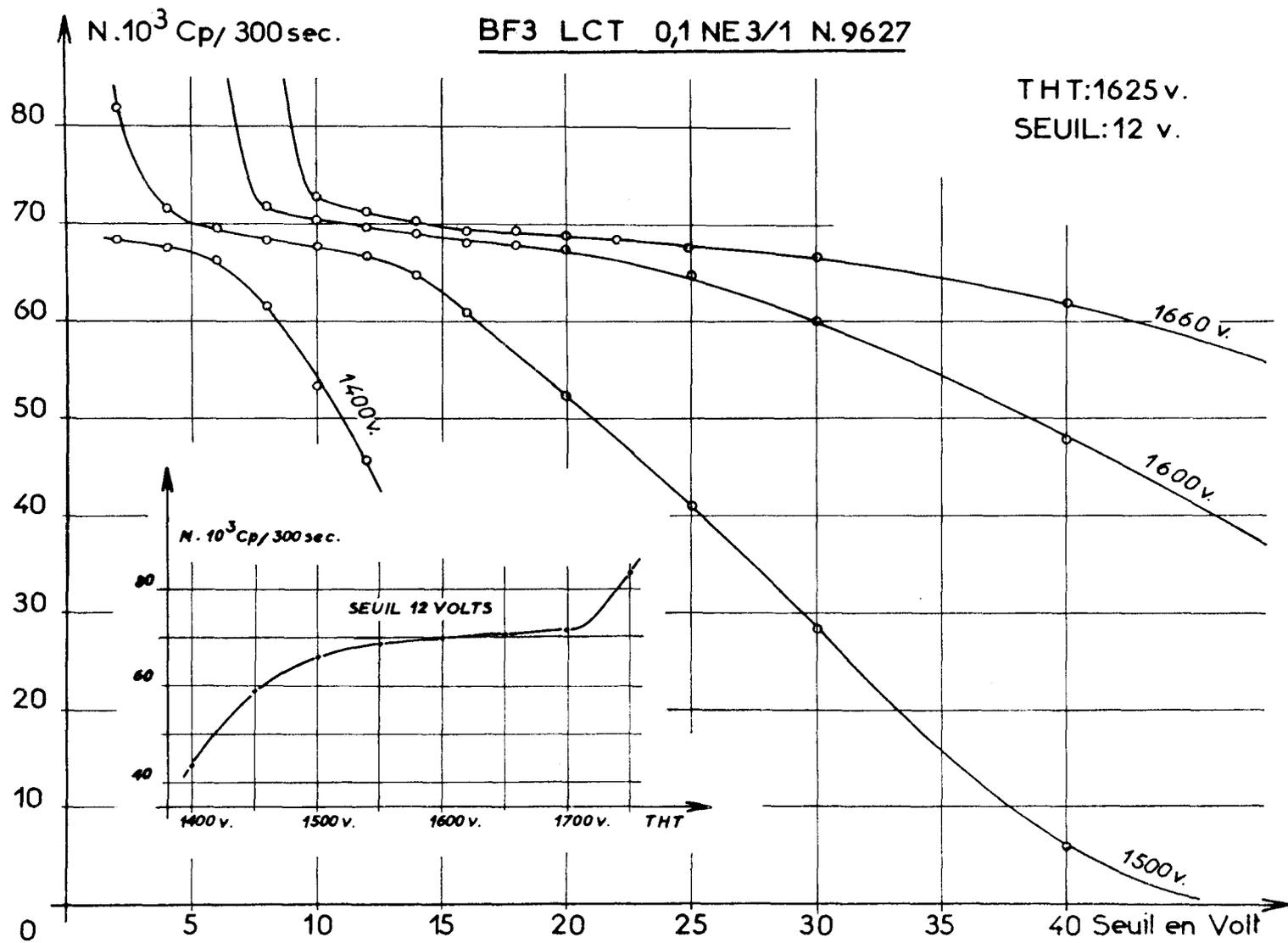
Précision des mesures données par la méthode neutron-gamma
(Valeurs données à titre indicatif)

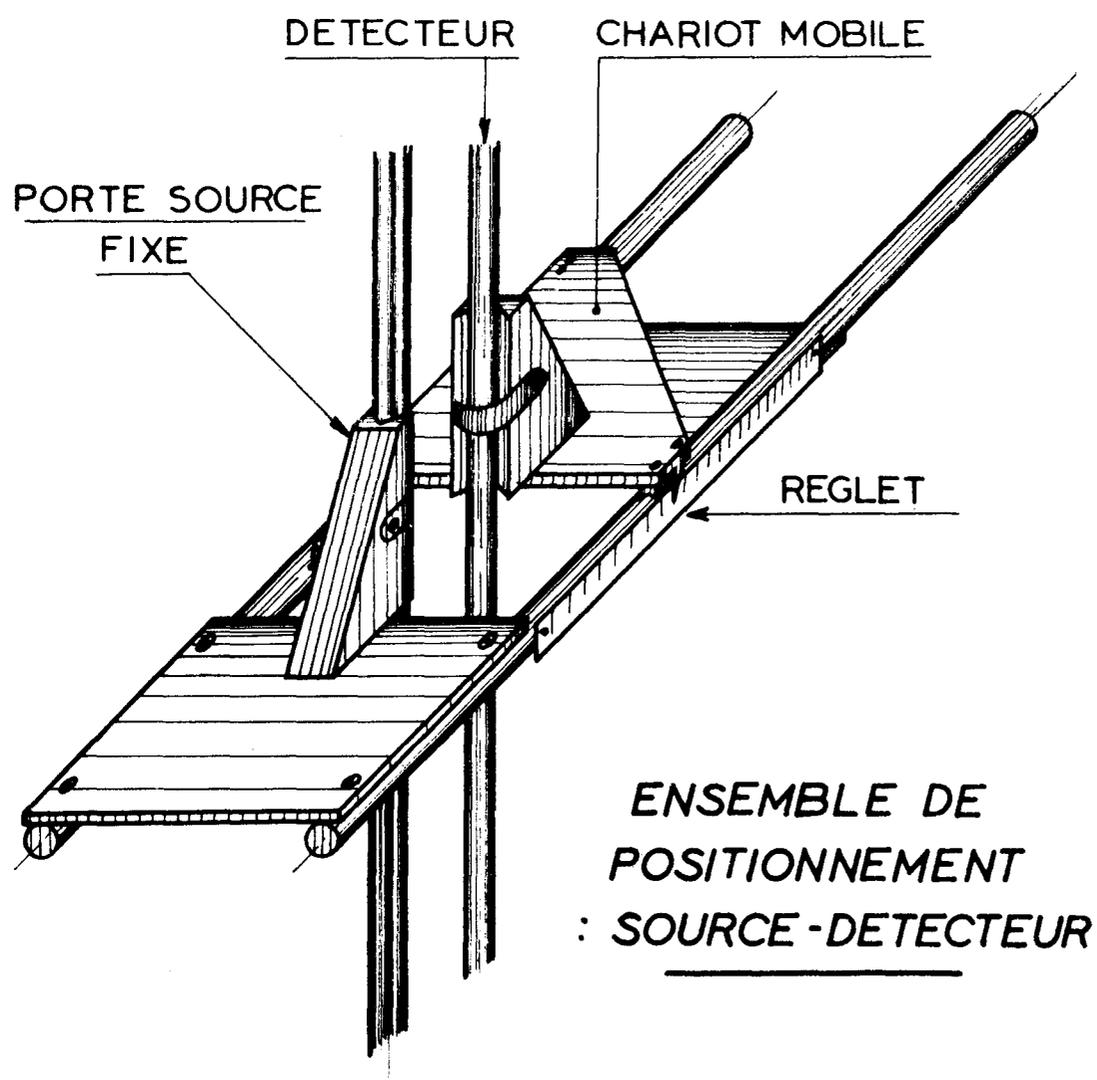
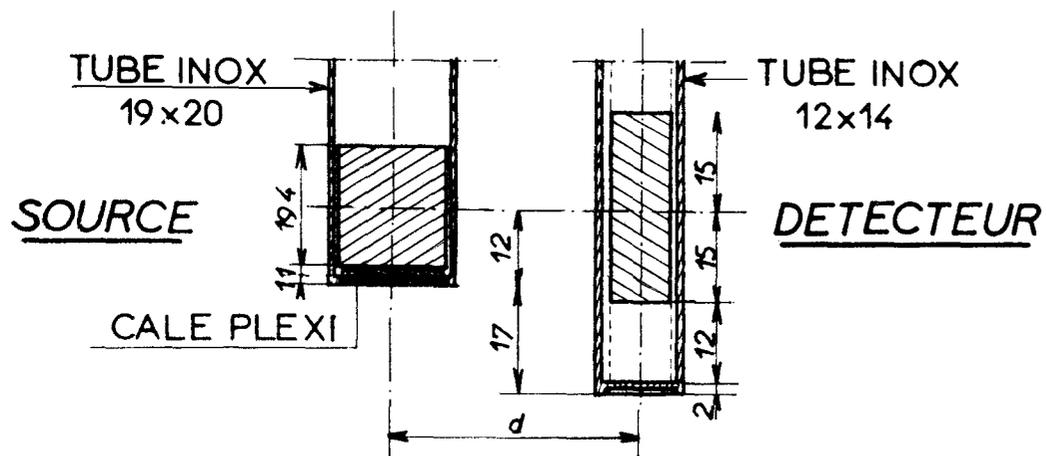
	Étalonnage purement théorique				Étalonnage à partir des résultats expérimentaux			
	Erreur sur les mesures servant à l'étalonnage $\frac{\Delta I}{I} = 0$ $\frac{\Delta N}{N} = 0$	Erreurs de mesures sur un produit inconnu			Erreur sur les mesures servant à l'étalonnage $\frac{\Delta I}{I} = 0$ $\frac{\Delta N}{N} = 0,3\%$	Erreurs de mesures sur un produit inconnu		
		Erreur statistique de comptage	Erreur statistique sur les corrections de dérives	Erreurs finales sur les mesures		Erreurs statistiques de comptage	Erreurs statistiques sur les corrections de dérives	Erreurs finales sur les mesures
Méthode de la droite $H = aN + b \text{ Log } \frac{I_0}{I}$ $C = aN + \beta \text{ Log } \frac{I_0}{I}$	$\frac{\Delta a}{a} = 5.10^{-3}$ $\frac{\Delta b}{b} = 5.10^{-2}$ $\frac{\Delta a}{a} = 5.10^{-3}$ $\frac{\Delta \beta}{\beta} = 10^{-3}$	$\frac{\Delta I}{I} = 0,1\%$ $\frac{\Delta N}{N} = 0,1\%$	Pas prises en considération	$\Delta[H] = 0,16\%$ $\Delta[C] = 0,3\%$ $\Delta\rho = 0,4\%$	$\frac{\Delta a}{a} = 3,8.10^{-2}$ $\frac{\Delta b}{b} = 8.10^{-2}$ $\frac{\Delta a}{a} = 3,5.10^{-2}$ $\frac{\Delta \beta}{\beta} = 10^{-2}$	$\frac{\Delta I}{I} = 0,1\%$ $\frac{\Delta N}{N} = 0,3\%$	Pas prises en considération	$\Delta[H] = 0,8\%$ $\Delta[C] = 1,2\%$ $\Delta\rho = 2\%$
Méthode des Abaques	Nulles puisque basées sur le calcul abaqués à tracé parfait	$\frac{\Delta I}{I} = 0,1\%$ $\frac{\Delta N}{N} = 0,1\%$	$\frac{\Delta I}{I} = 0,1\%$ $\frac{\Delta N}{N} = 0,1\%$	$\Delta[H] = 0,01\%$ $\Delta[C] = 0,08\%$ $\Delta\rho \sim 0,1\%$	Supposées égales à 0,1% $\frac{\Delta I}{I} = 0,1\%$ $\frac{\Delta N}{N} = 0,1\%$	$\frac{\Delta I}{I} = 0,1\%$ $\frac{\Delta N}{N} = 0,3\%$	$\frac{\Delta I}{I} = 0,1\%$ $\frac{\Delta N}{N} = 0,3\%$	$\Delta[H] = 0,05\%$ $\Delta[C] = 0,17\%$ $\Delta\rho = 0,2\%$

RÉFÉRENCES BIBLIOGRAPHIQUES

- [1] PEGG R.E., POLLOCK J.S. Continuous analysis for sulphur in a refinery. I.A.E.A. Conference on the use of radioisotopes in the physical sciences and industry — RICC/11, tome 2, 137-146, *Copenhagen* 6-17 septembre 1960.
- [2] BRUNTON D.C. Measuring the density of liquids in process lines and vessels. *Oil Gas Journ.* **53**, (1954) 79-80.
- [3] MARTINELLI P., RICCI H. Mesure du rapport C/H au moyen de neutrons. Conférence sur l'emploi des radioisotopes dans les sciences physiques et l'industrie — RICC/90, *Copenhagen* 1960. Rapport C.E.A. n° 1785.
- [4] TORNAU R. Détermination du rapport C/H des hydrocarbures à l'aide de neutrons. *Chemie-Ingenieur-Technik* **34**, 1, (1962) 35-38.
- [5] FINSTON H.L., YELLIN E. Détermination of carbon-hydrogen ratios by neutron scattering. *Analytical Chemistry* **35**, 3, (1963) 336-341.
- [6] MOTT W.E., RHODES D.F. Measurement of hydrogen in hydrocarbons by slow neutron transmission. Symposium on radioisotope instruments in industry and geophysics. SM 68/20. *Varsovie*, Pologne, 18-22 octobre 1965.
- [7] THOMPSON M.N., TAYLOR J.M. Neutron spectra from Am-Be and Ra-Be sources. *Nuclear Instruments and Methods* **37**, (1965), 305-308.
- [8] ANDERSON M.E., BOND W.H. Neutron spectrum of a Plutonium-Beryllium source. *Nuclear Physics* **43** (1963) 330-338.
- [9] FRIEDLANDER G., KENNEDY J.W. *Chimie nucléaire et radiochimie*. Dunod, *Paris* (1960).
- [10] TITTLE C.W. Slow detection by foils. *Nucleonics* **8**, 6, (1951), 60-67. *Nucleonics* **9**, 1, (1951), 5-9.
- [11] SHARPE J., TAYLOR D. *Mesure et détection des rayonnements nucléaires*. Dunod, *Paris* (1958) 321 p.
- [12] *Radiological Health Handbook* U.S. Department of Health, Education and Welfare. U.S.G. Printing Office (1965).
- [13] GLASSTONE, EDLUND. *The elements of nuclear reactor theory* Van Nostrand — *London-New York* (1952), 416 p.
- [14] WEINBERG A.M., WIGNER E.P. *The physical theory of neutron chain reactors*. The University of Chicago Press (1958).
- [15] BLANC D. *Détecteurs de particules. Compteurs et scintillateurs*. Masson et Cie, *Paris* (1959).
- [16] MAC-CUTCHEN C.W. Thermal gradient effect in proportional counters. *Rev. Scient. Instr.*, **27**, (1956), 106.
- [17] LOCKWOOD J.A., WOODS F.R., BENNET E.F. On the temperature dependence of BF₃ proportional neutron counters. *Rev. Sci. Instr.* **25**, (1954), 446-449, Cité par [15].
- [18] GOODNIN JR. A., IONA M. Effet de la température sur les taux de comptage des compteurs de neutrons à base de bore. *Phys. Rev.* **88**, (1952), 168-A. Cité par [15].
- [19] BRUNAUER S., DEMING L.S., DEMING W.E., TELLER E. On the theory of the Van der Waals adsorption of gases. *Journ. Amer. Chem. Soc.* **62**, (1940), 1723-1746. Cité par [15].
- [20] ROSE/KORFF. An investigation of the properties of proportional counters. *Physical Review* **59**, (1941), 850-866.
- [21] BLAQUIERE A. *Théorie de la réaction de fission en chaîne*. Bibliothèque des Sciences et Techniques Nucléaires. Presses Universitaires de France, *Paris*, (1962), 485 p.

- [22] FLÜGGE S. Handbuch der Physik. Vol. XXXVIII/2. Neutron and Related Gamma Ray Problems, p. 313. Springer Verlag — *Berlin*, (1959), 868 p.
- [23] MAC FARLING J.L., GLUCK P., KIRCHER J.F., SUNDERMAN D.N. Calibration of an isotopic neutron source for intrinsic tracer process control. *Trans. Am. Nuclear Soc.* 5, n° 1, (1962), 198.
- [24] TIMMERMANS J. Physico chemical constants of pure organic compounds. Elsevier Publ. *New York*, (1950), 693 p.
- [25] Neutron Cross Sections. Brookhaven National Laboratory — BNL 325. Associated Universities Inc.
- [26] SOUTIF M. Physique neutronique. Presses Universitaires de France — *Paris*, (1962).
- [27] KAHANT, GAUZIT M. Physique et calcul des réacteurs nucléaires. Dunod — *Paris*, (1957), 388 p.
- [28] WESTMEYER H. Sur la mesure d'humidité à l'aide de neutrons. *Kernenergie*, 6, 6, (1963), 276-279.
- [29] SCHURICHT V. Zur Wasserstoffbestimmung nach der Neutronenmethode. *Kernenergie*, 7, 1, (1964), 42-48.
- [30] WALLACE P.R. Neutron distribution in elementary diffusion theory. *Nucleonics*, 2, (1949), 30-55.
- [31] GLASSTONE S. Principles of nuclear reactors engineering. Mac Millan, *London-New York*, (1963), 861 p.
- [32] SEMMLER R.A. Neutron-moderation moisture meters: analysis of application to coal and soil. Rapport final. University of Chicaco, COO-712-73, (1963).
- [33] ANDRIEUX C., BUSCARLET L., GUITTON J., MERITE B. Mesure en profondeur de la teneur en eau des sols par ralentissement des neutrons rapides. *Industrie Atomique*, 3, 4, (1962), 68.
- [34] VON KÜHN W. Surveillance continue et régulation de la teneur en humidité de minerais frittés suivant le procédé de diffusion de neutrons. *Kerntechnik*, 5, 5, (1963), 207-212.
- [35] ALLEN F.J. A new Monte Carlo method for solving neutron and gamma ray transport problem. B.R.L. memorandum report N° 1135, avril 1958.
- [36] CAHEN G. TREILLE P. Précis d'énergie nucléaire. Dunod, *Paris*, (1958).
- [37] EVANS R.D. The atomic nucleus. Mc Graw-Hill Book Company Inc. (1955).
- [38] SIEGBAHN K. Beta and gamma ray spectroscopy. North-Holland Publishing Company, *Amsterdam*, (1955), 959 p.
- [39] GUIZERIX J. Les jauges d'épaisseur et de densité à isotopes radioactifs. Usine Nouvelle — N° de printemps, (1956).





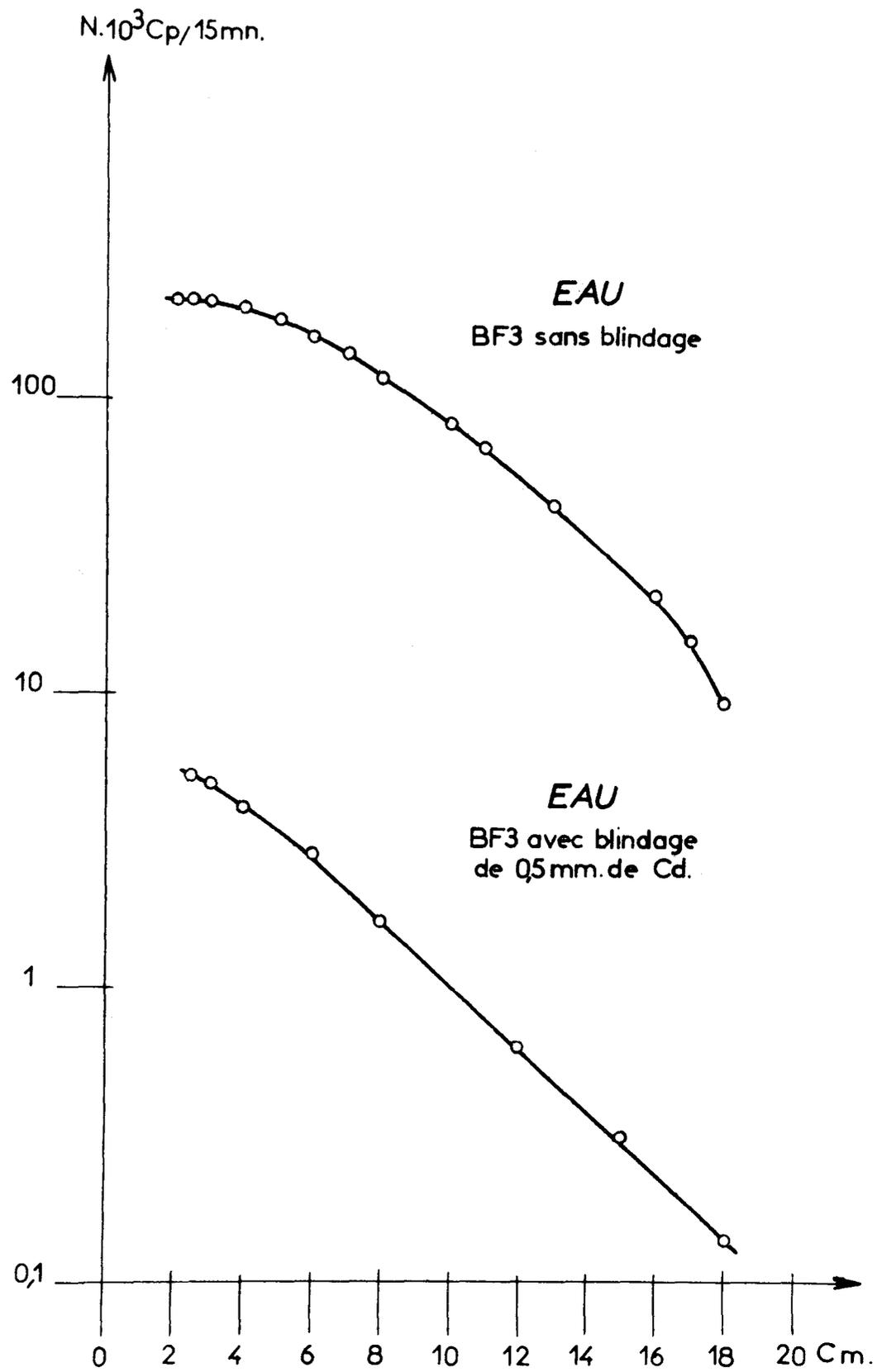
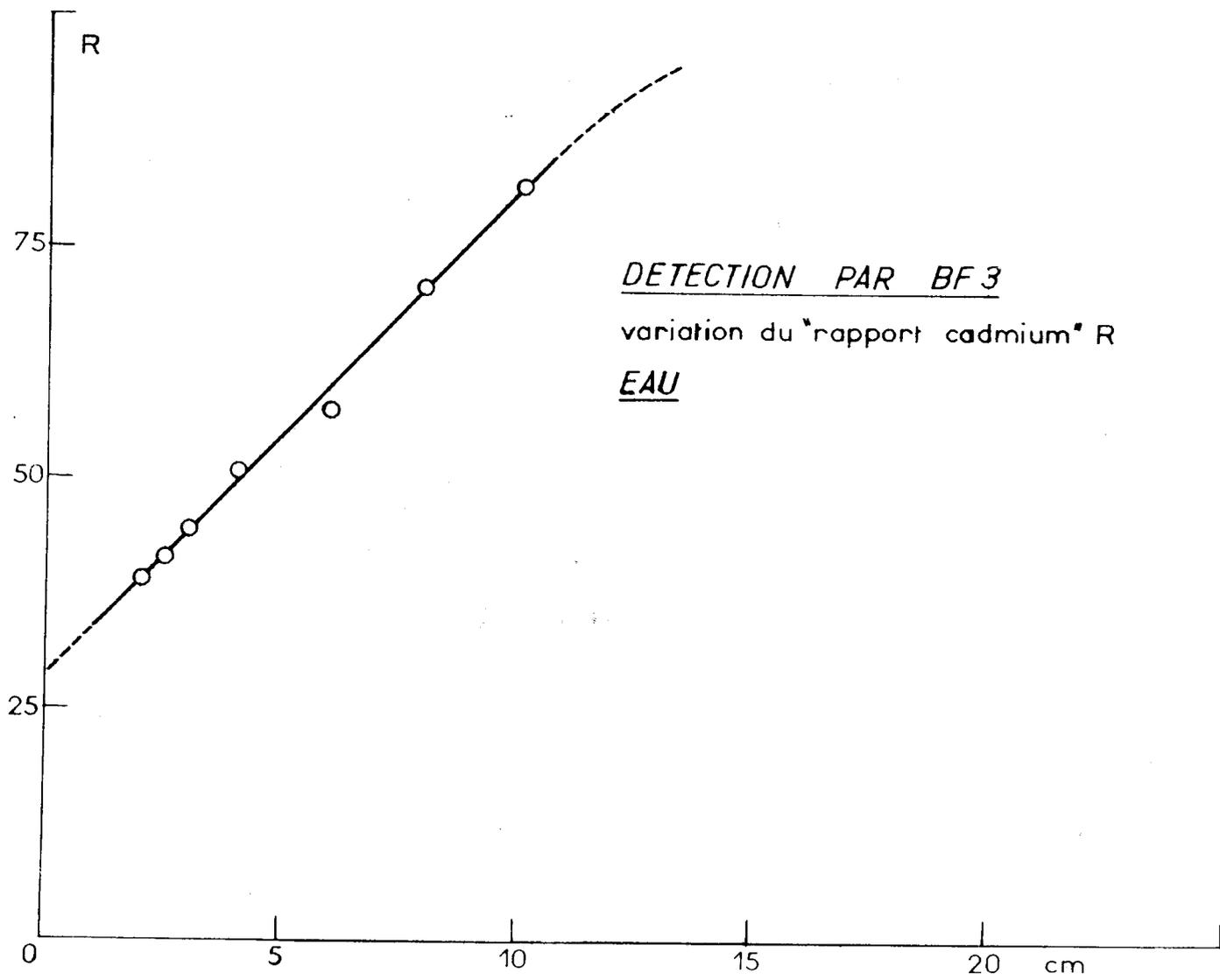
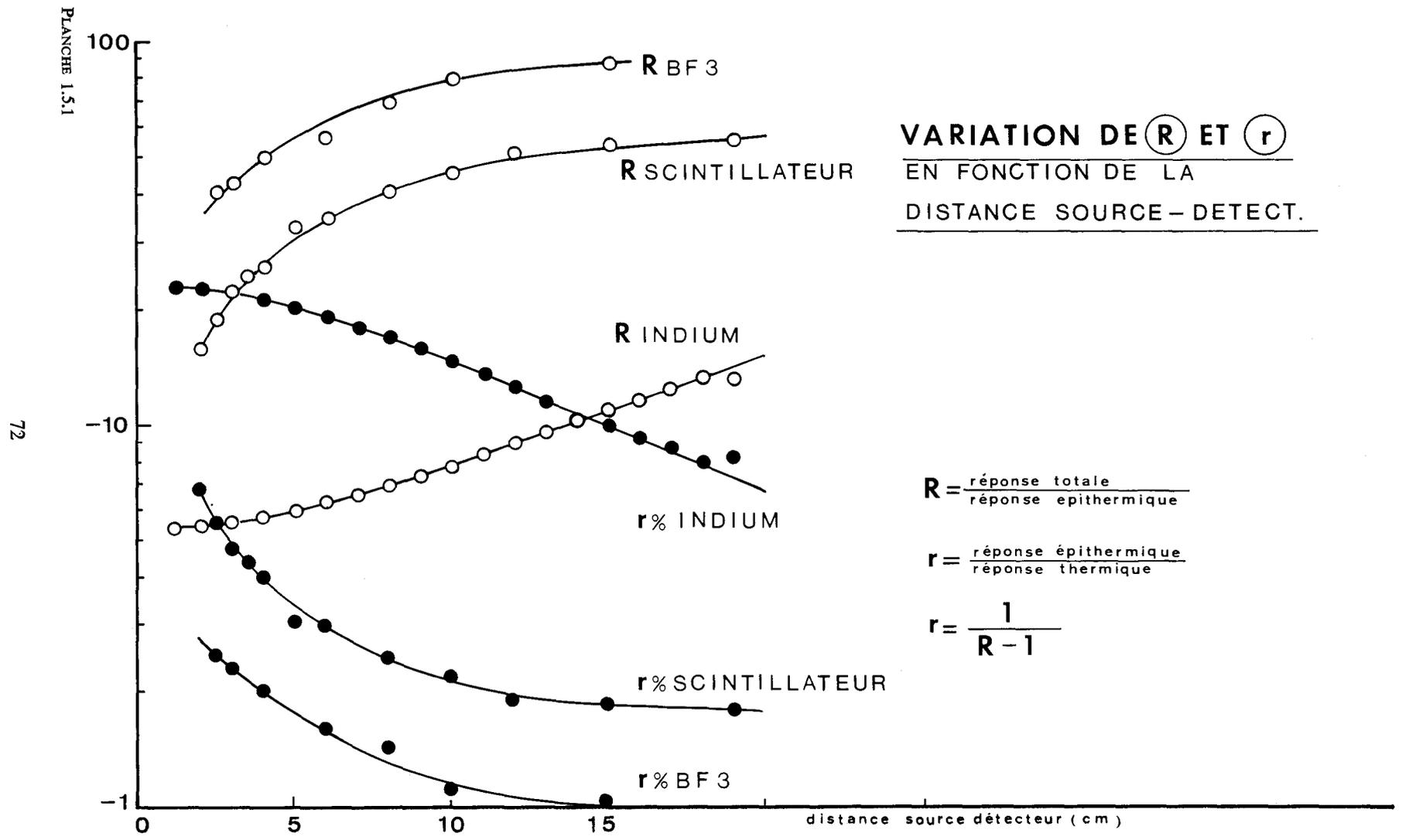


PLANCHE 1.4.5.1





N. 10^3 Cp / 500 sec.

FLUX OBTENUS PAR TROIS METHODES

(Normalisation à 9cm. avec celui du BF.3 →)

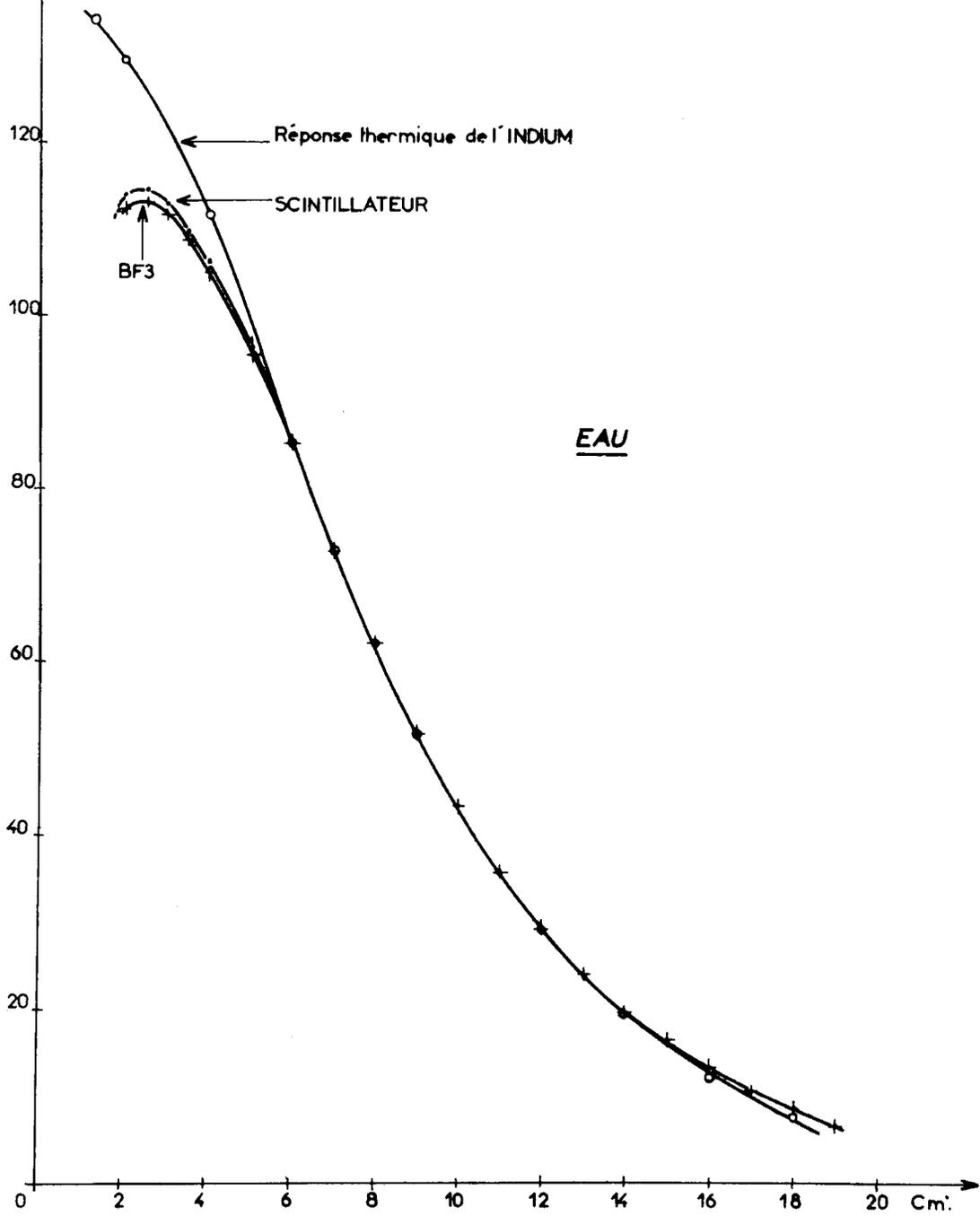
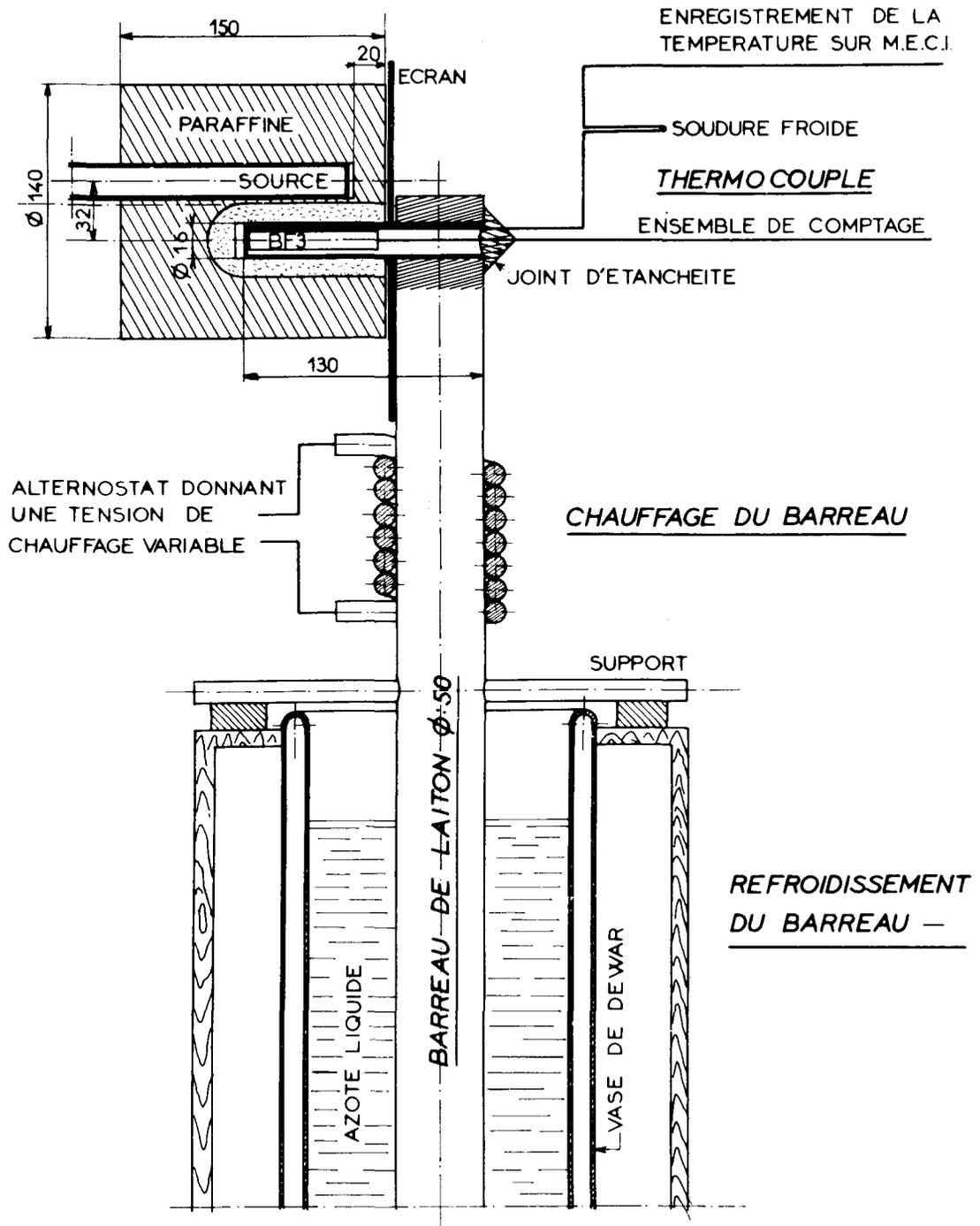


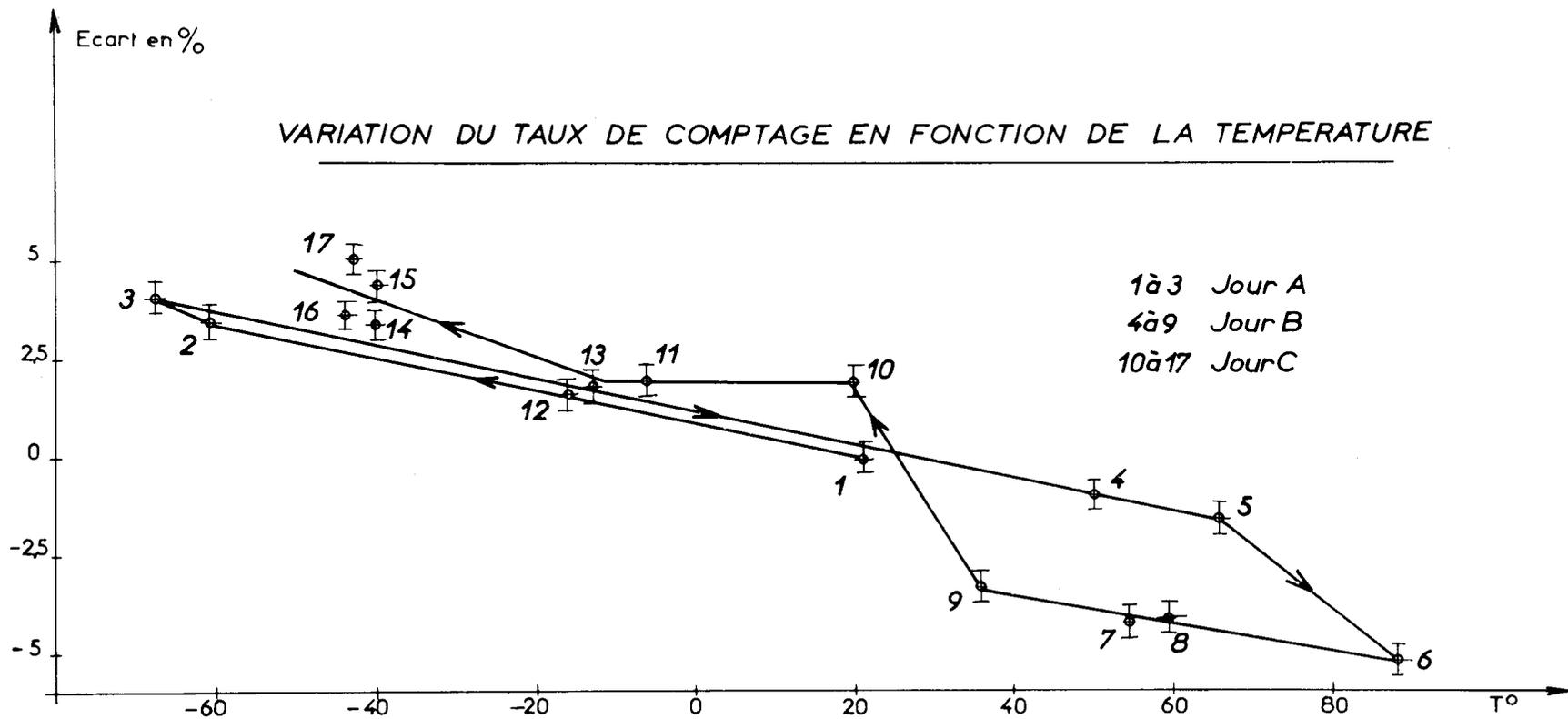
PLANCHE 1.5.3

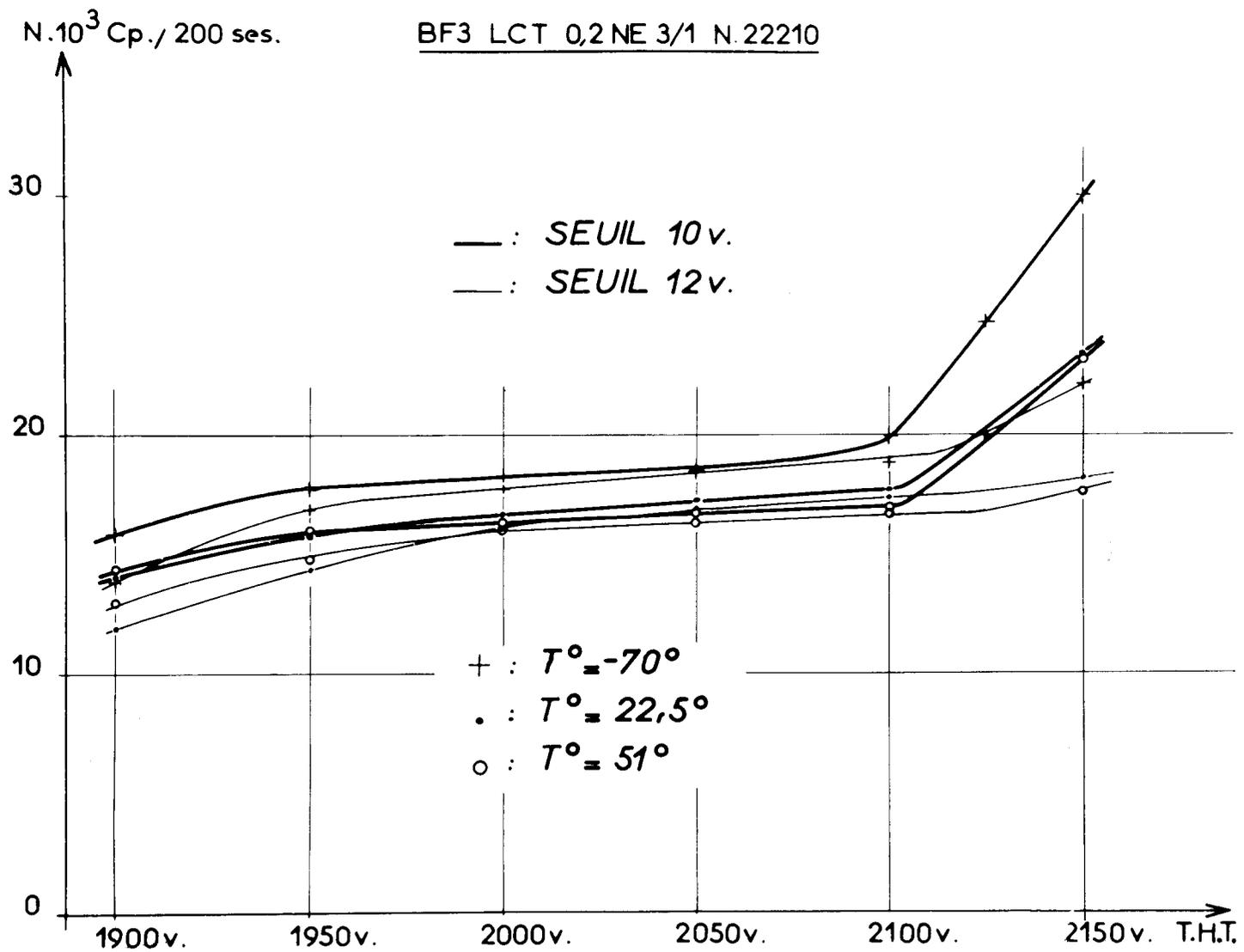
SCHEMA DU MONTAGE



75

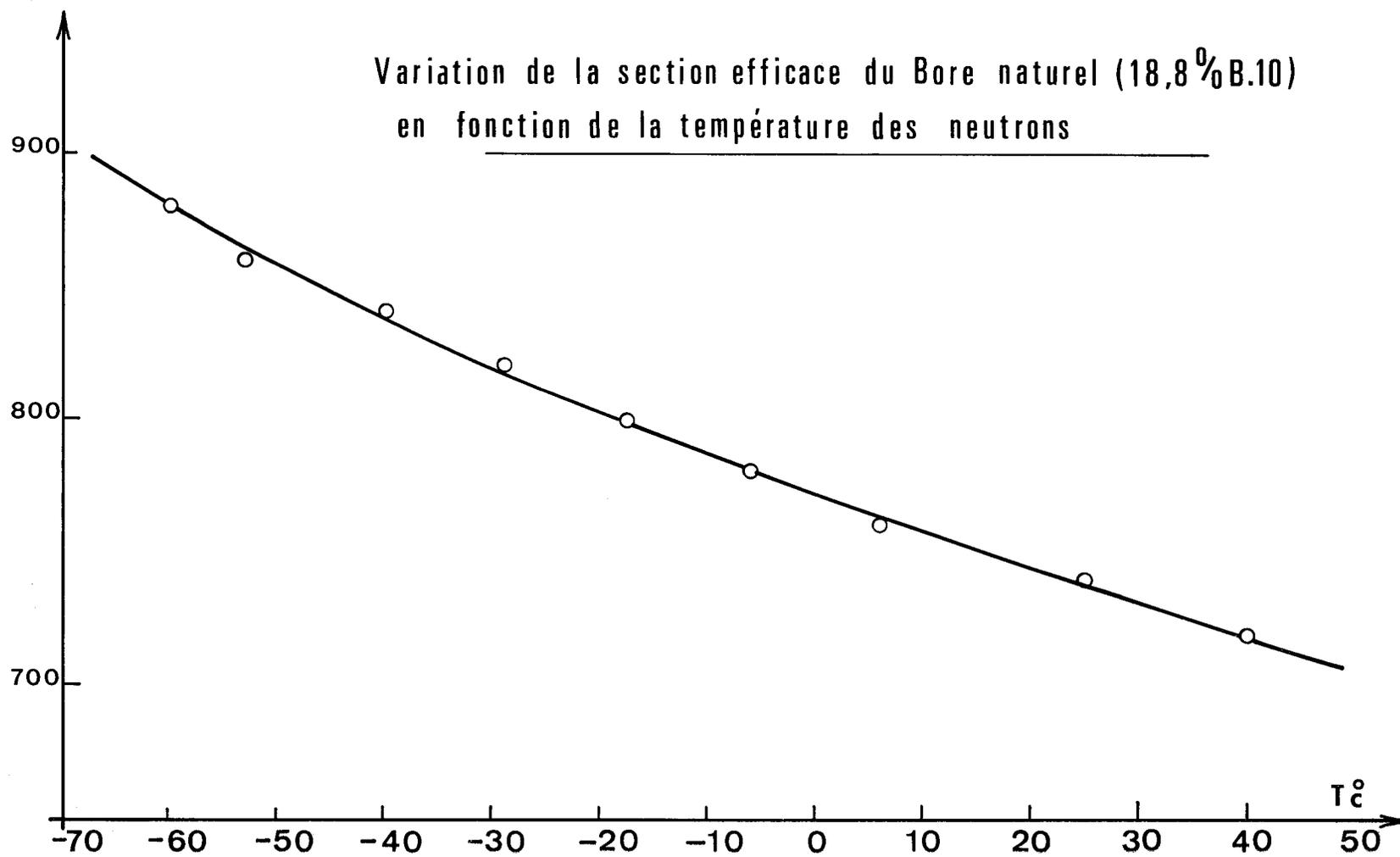
PLANCHE 2.1.2.1





Barn.

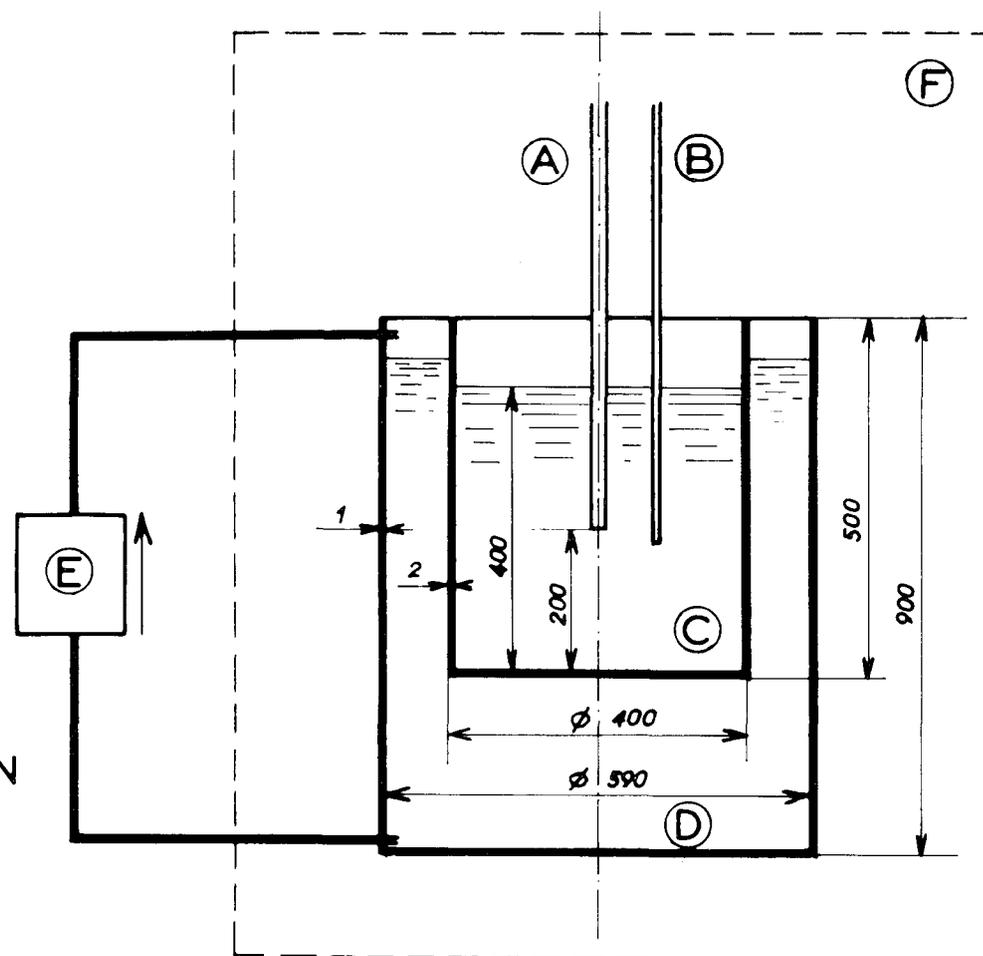
Variation de la section efficace du Bore naturel (18,8% B.10)
en fonction de la température des neutrons



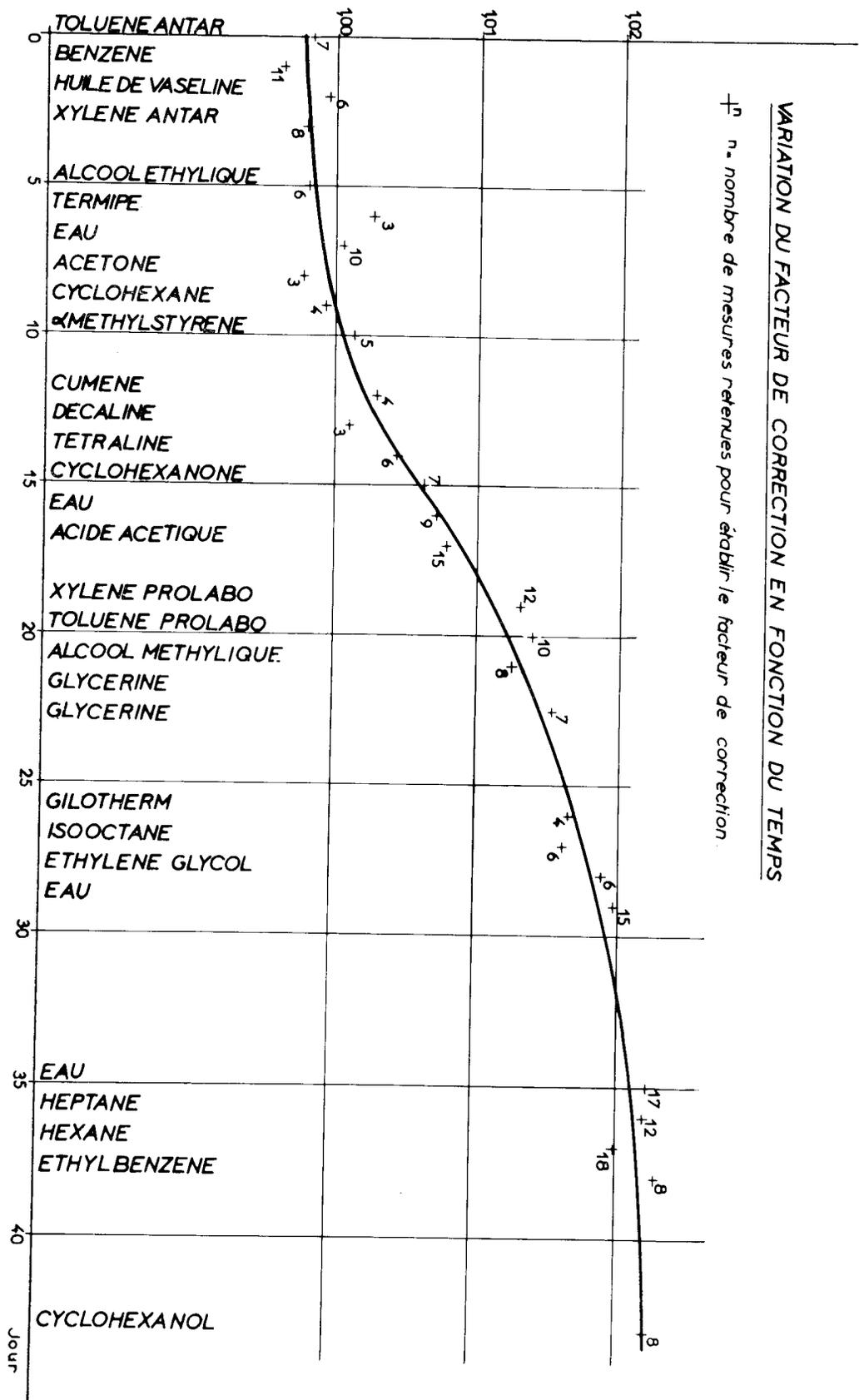
77

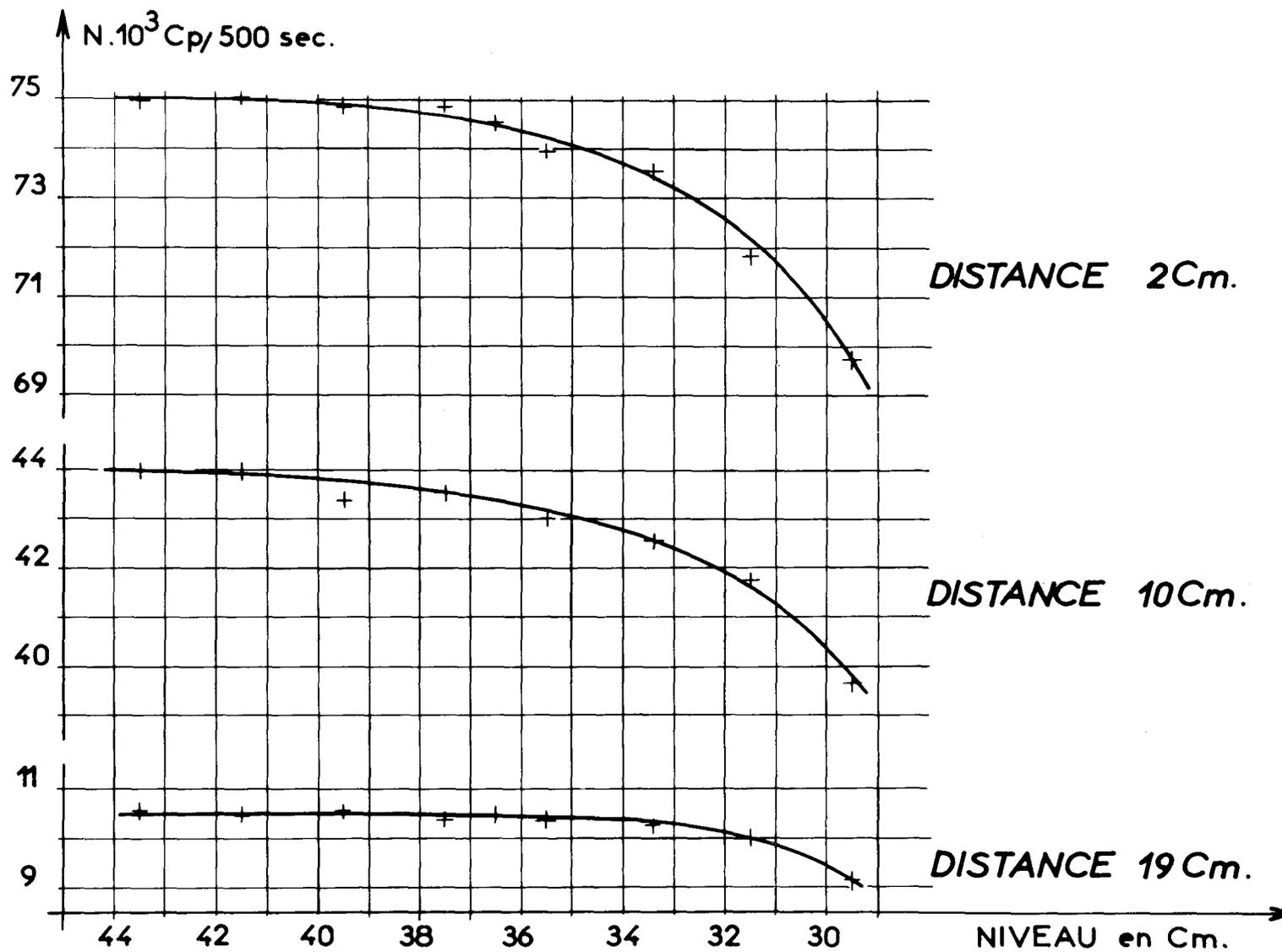
PLANCHE 2.2

- Ⓐ SOURCE
AmBe 300 mCie.
- Ⓑ DETECTEUR
BF3 LCT 0,1NE3/1 N.9627
- Ⓒ CUVE DE MESURE
Acier inox.
- Ⓓ BAIN-MARIE
T° 25°5
- Ⓔ 2 POMPES CHAUFFANTES
De 2Kw.
- Ⓕ ENCEINTE DE PROTECTION
Chauffée à 25°



SCHEMA DE PRINCIPE





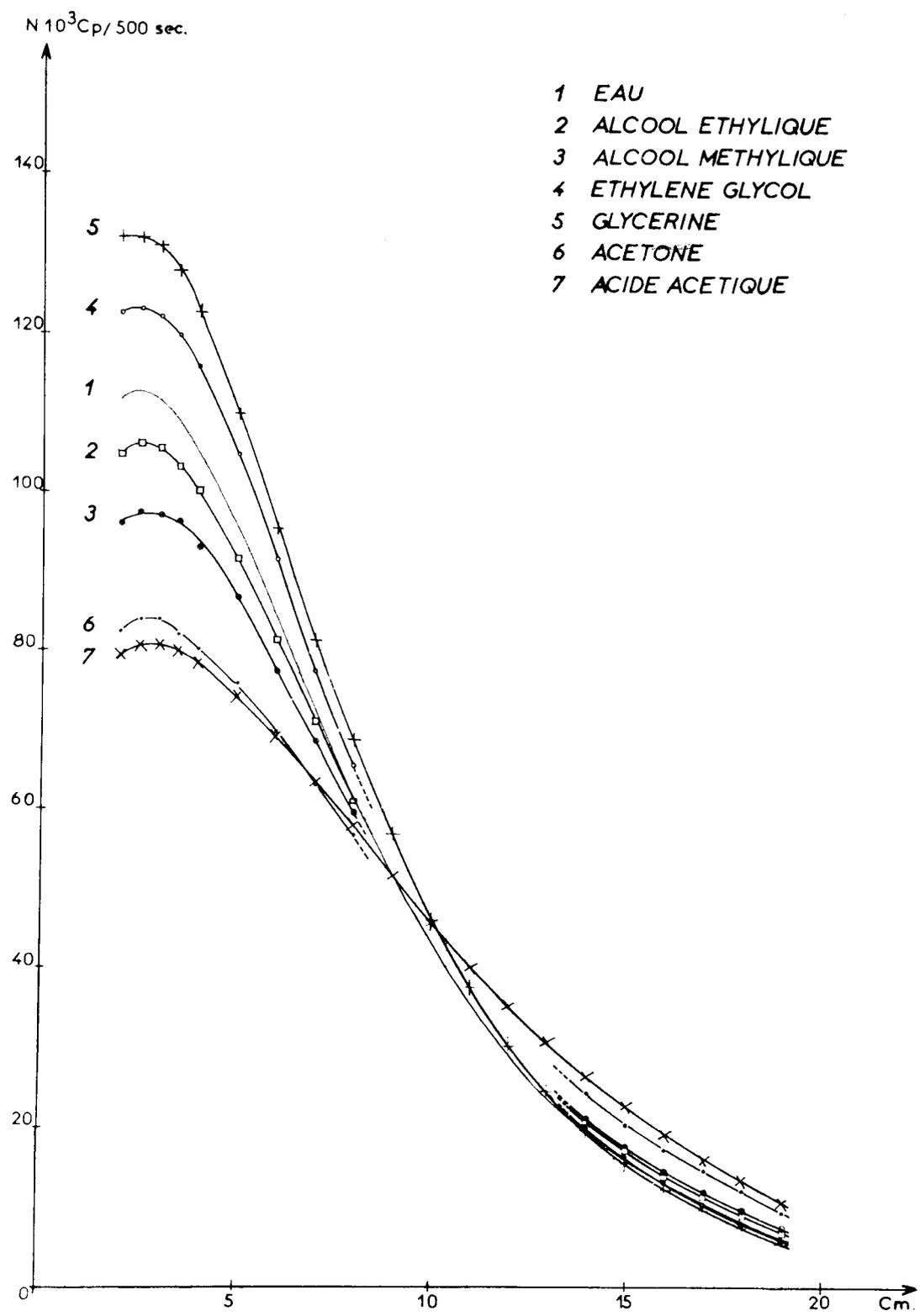


PLANCHE 4.2.4.a

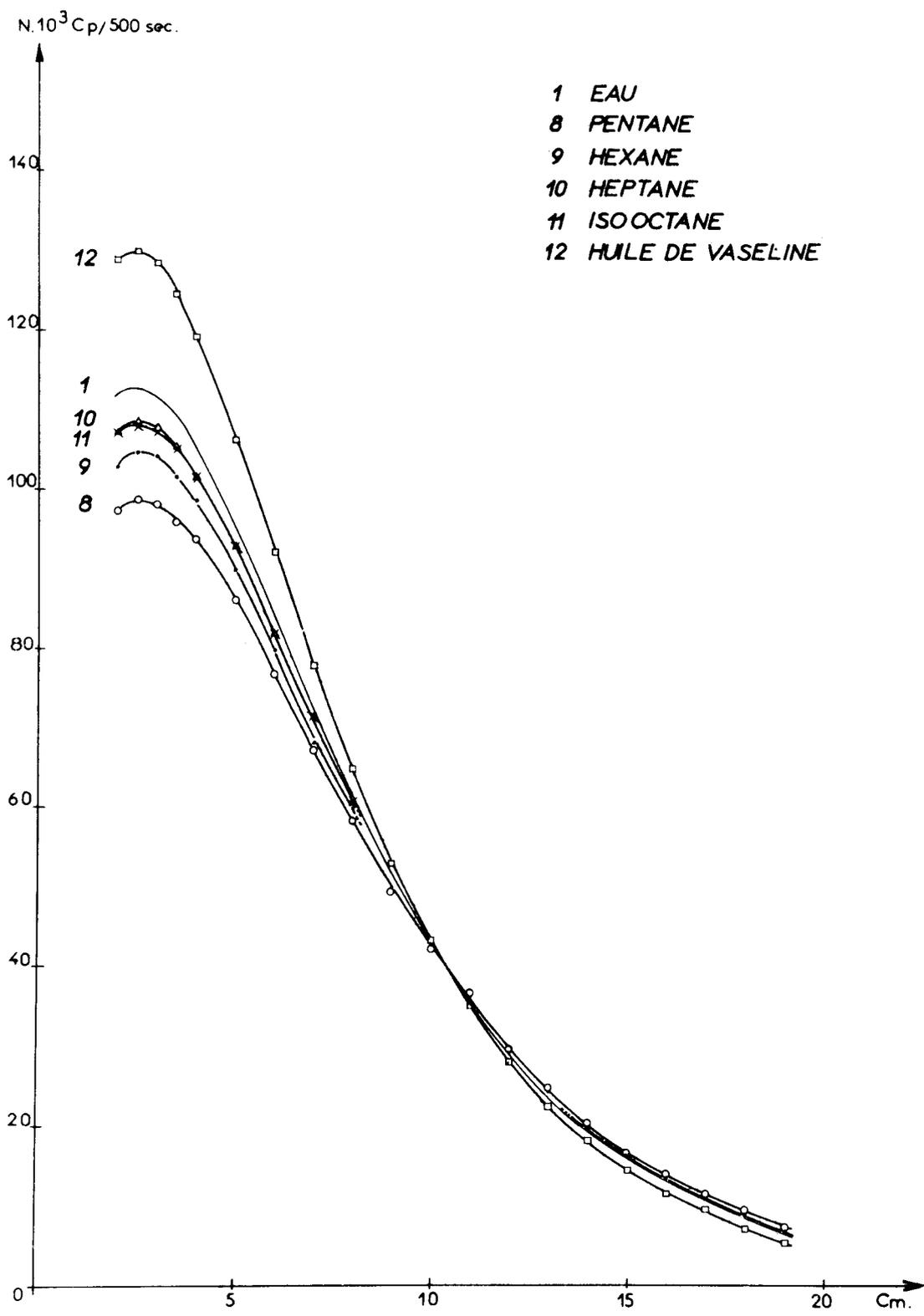


PLANCHE 4.2.4.b

$N \cdot 10^3 C_p / 500 \text{ sec.}$

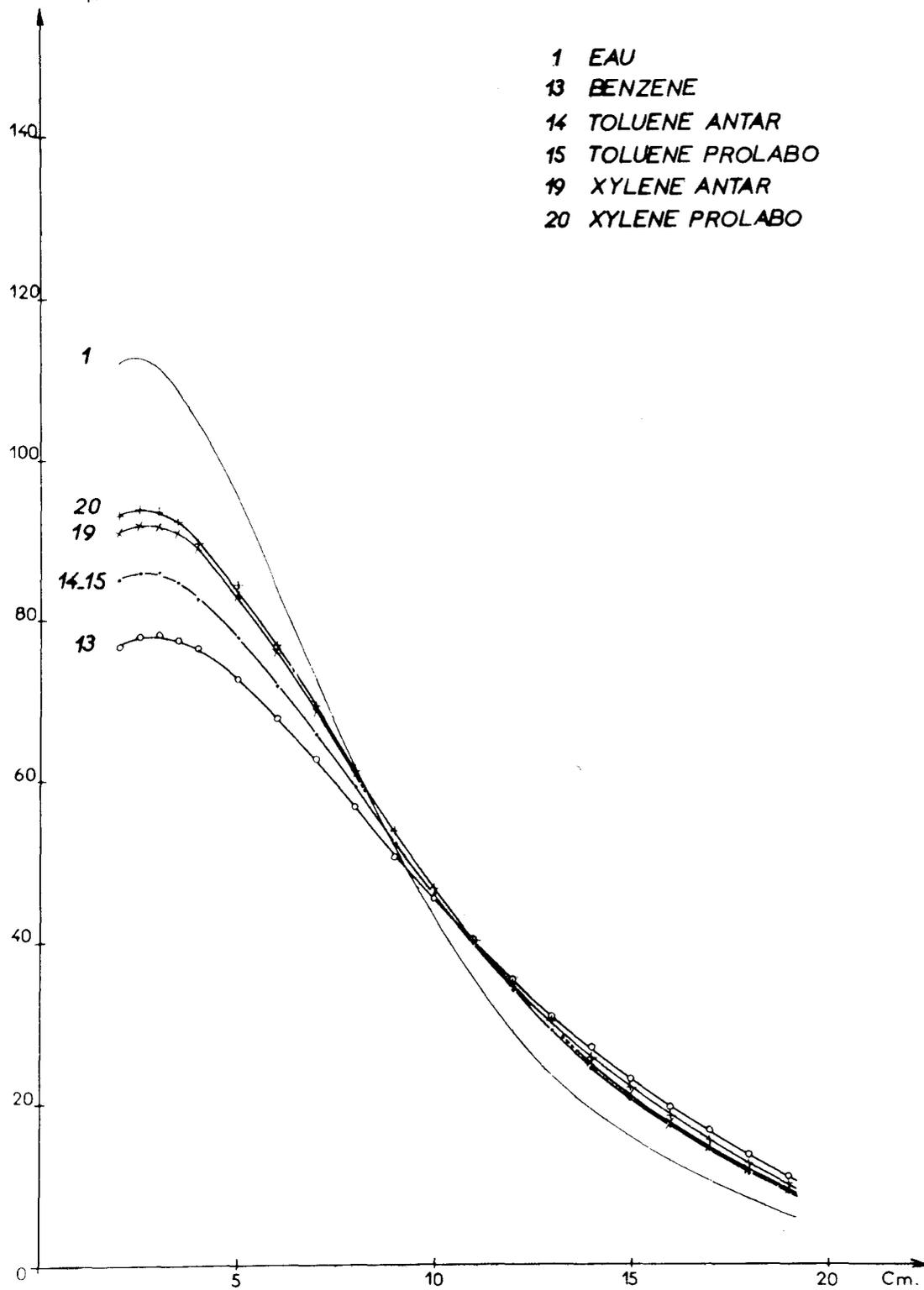


PLANCHE 4.2.4.c

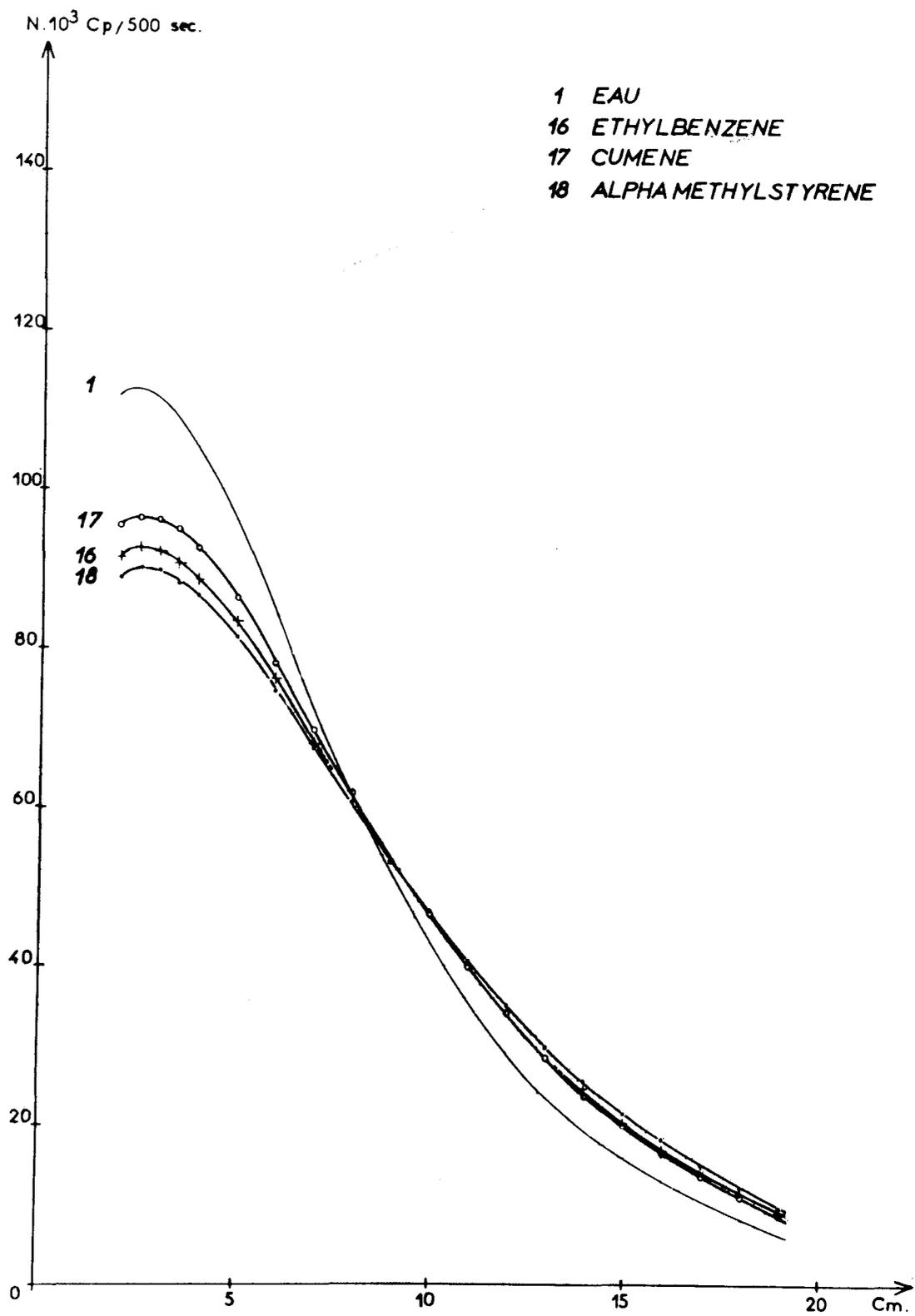


PLANCHE 4.2.4.d

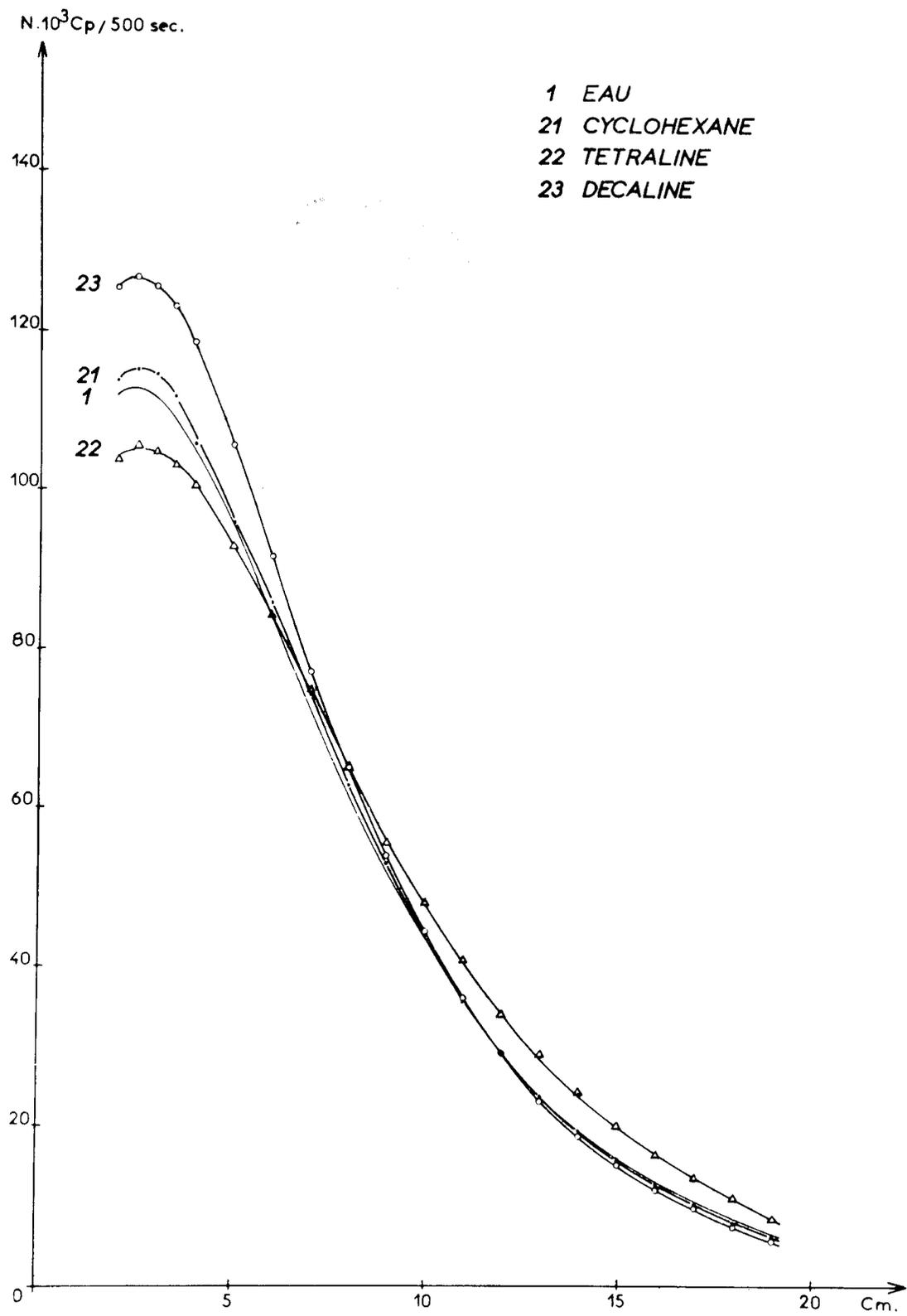


PLANCHE 4.2.4.e

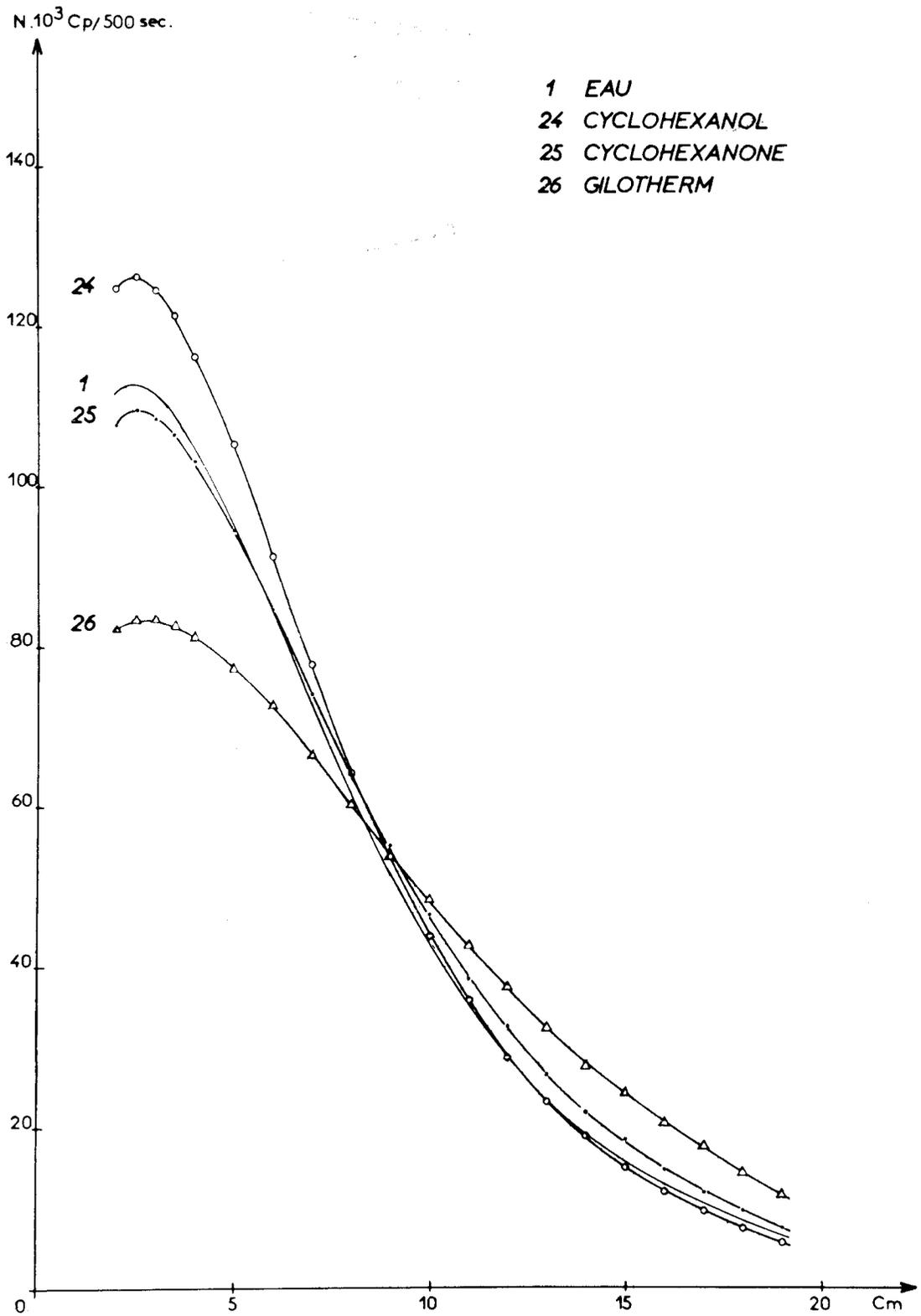
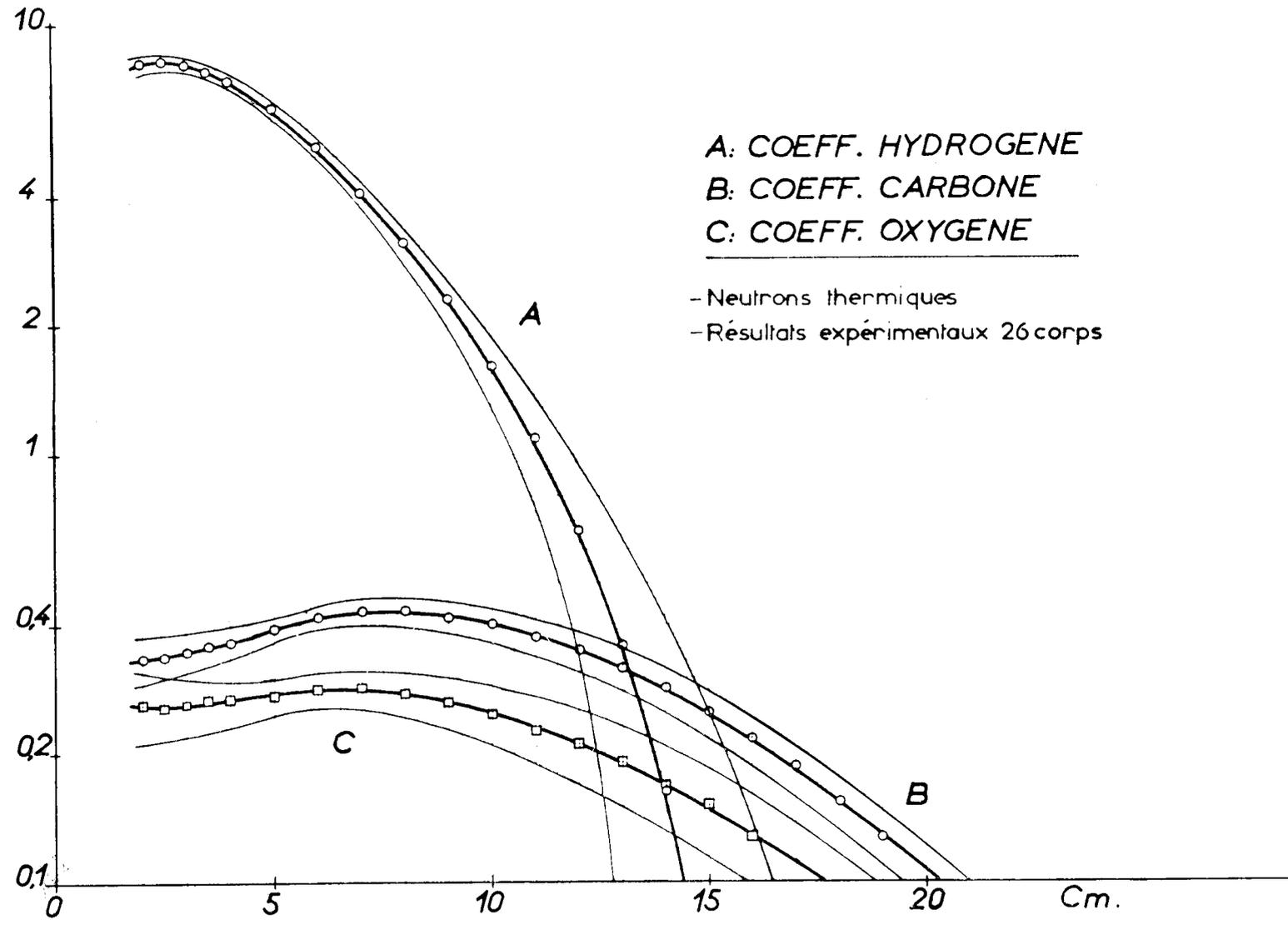
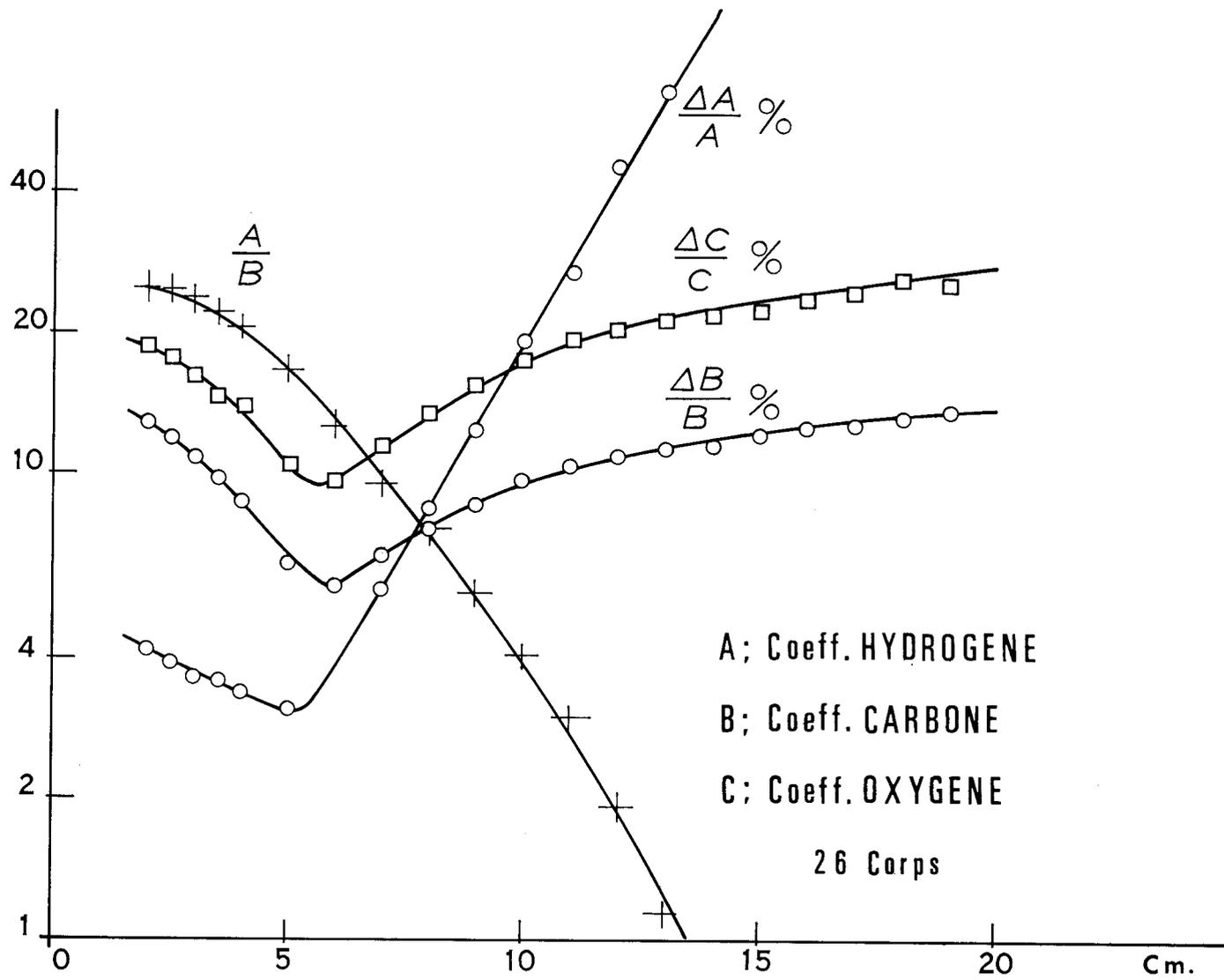
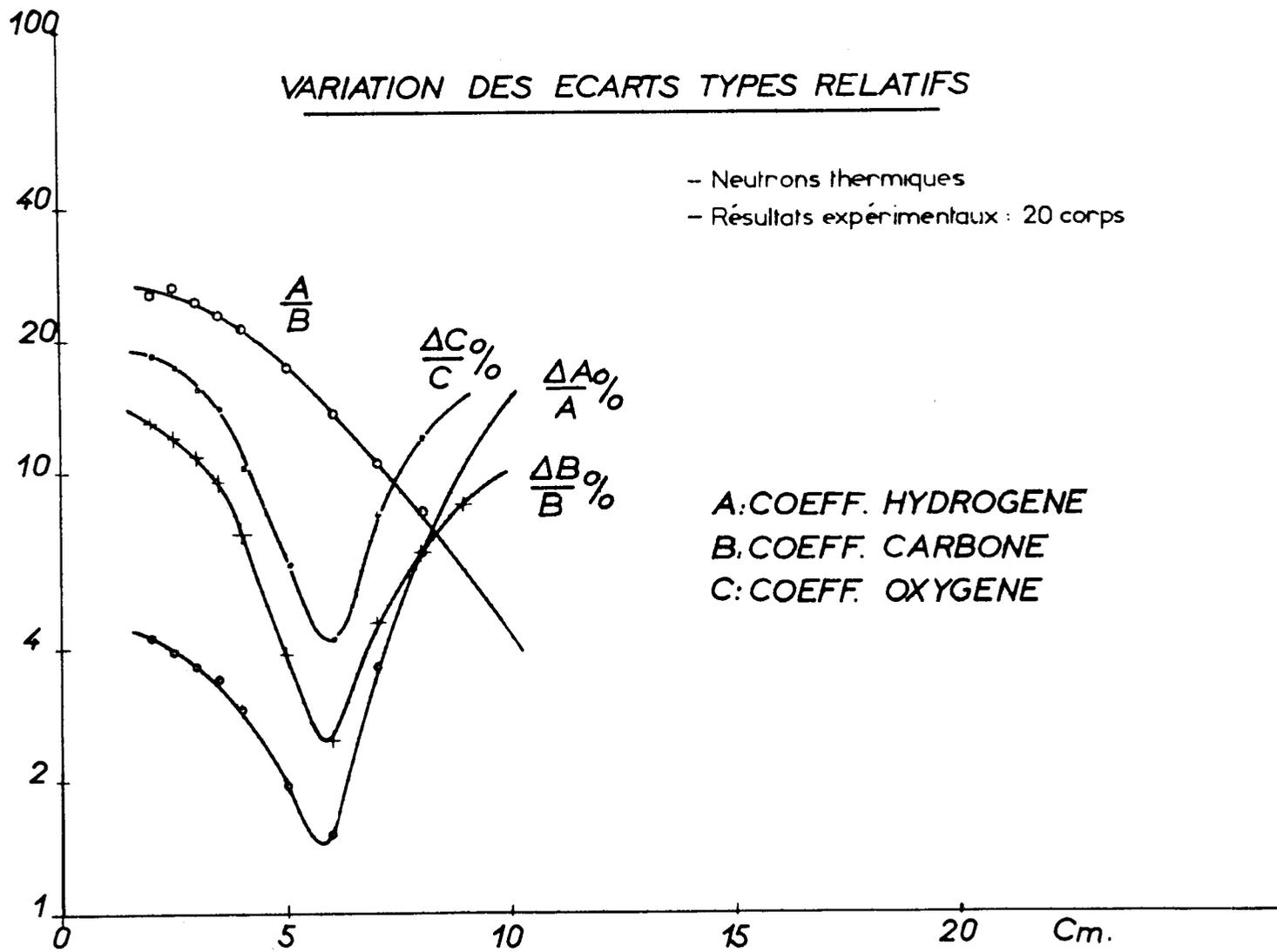


PLANCHE 4.2.4.f







COMPARAISON DES DENSITES DE FLUX DE NEUTRONS THERMIQUES DANS L'EAU

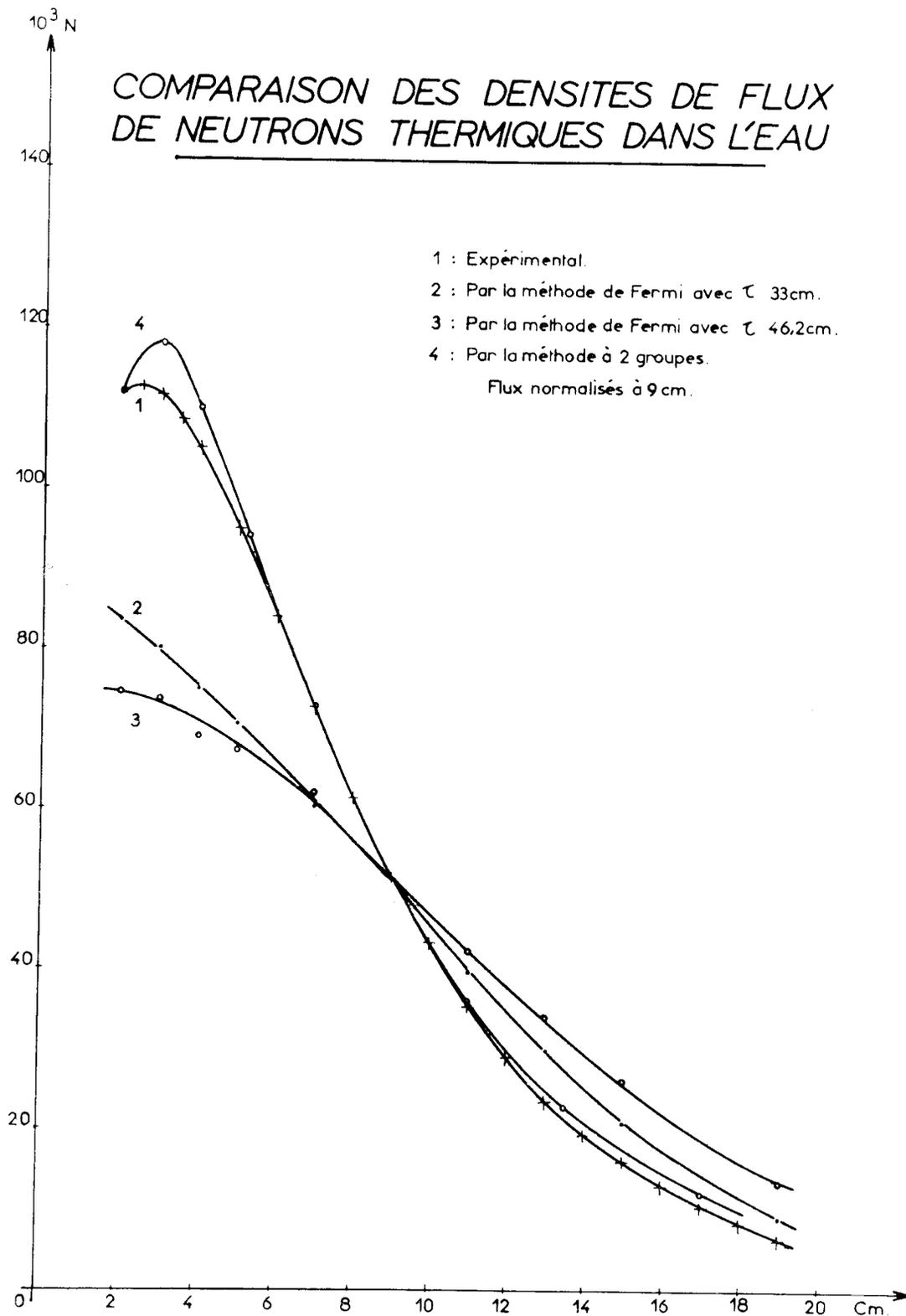


PLANCHE 5.3.2

COMPARAISON DES FLUX THEORIQUES ET
EXPERIMENTAUX

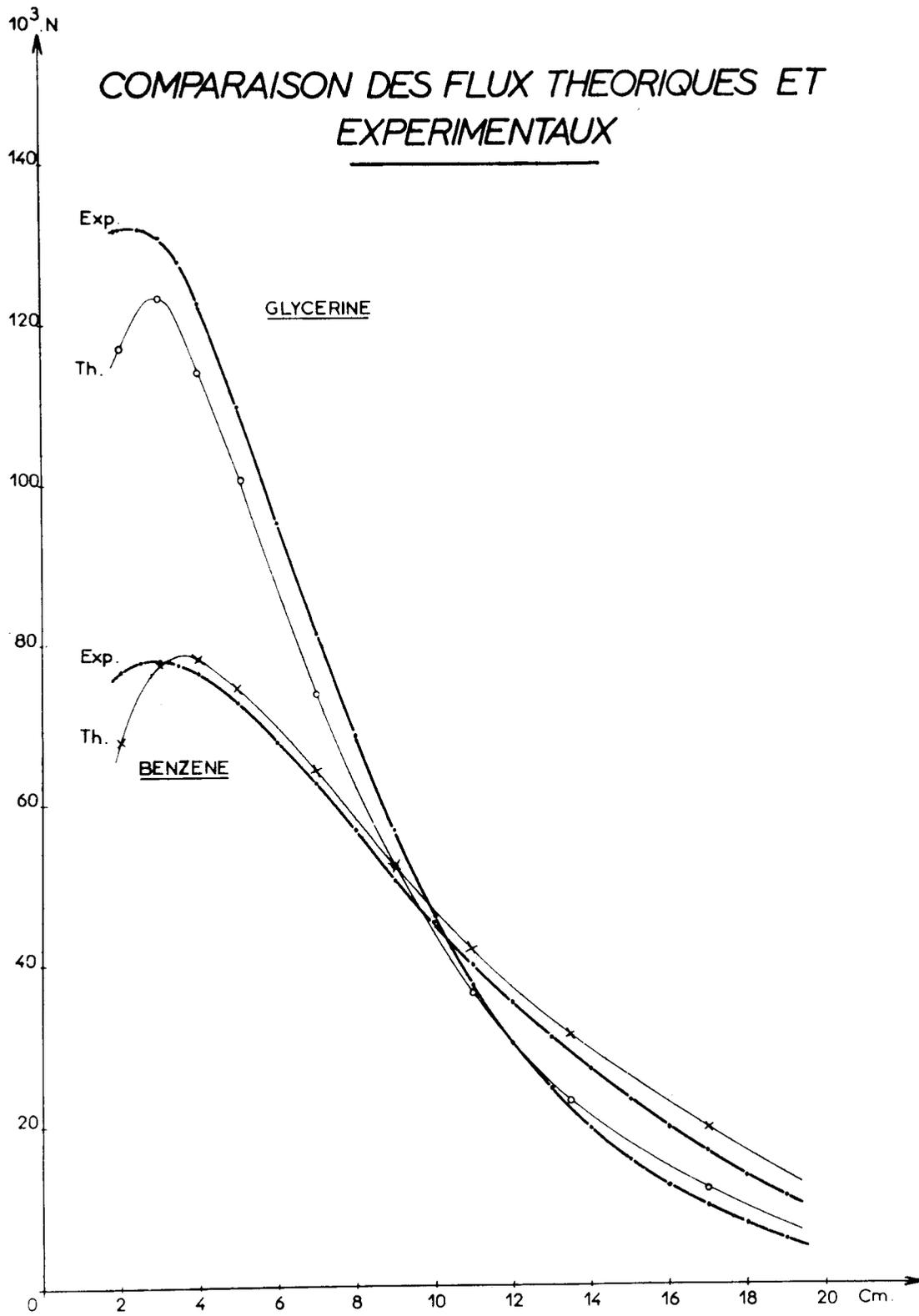


PLANCHE 5.5.2.1

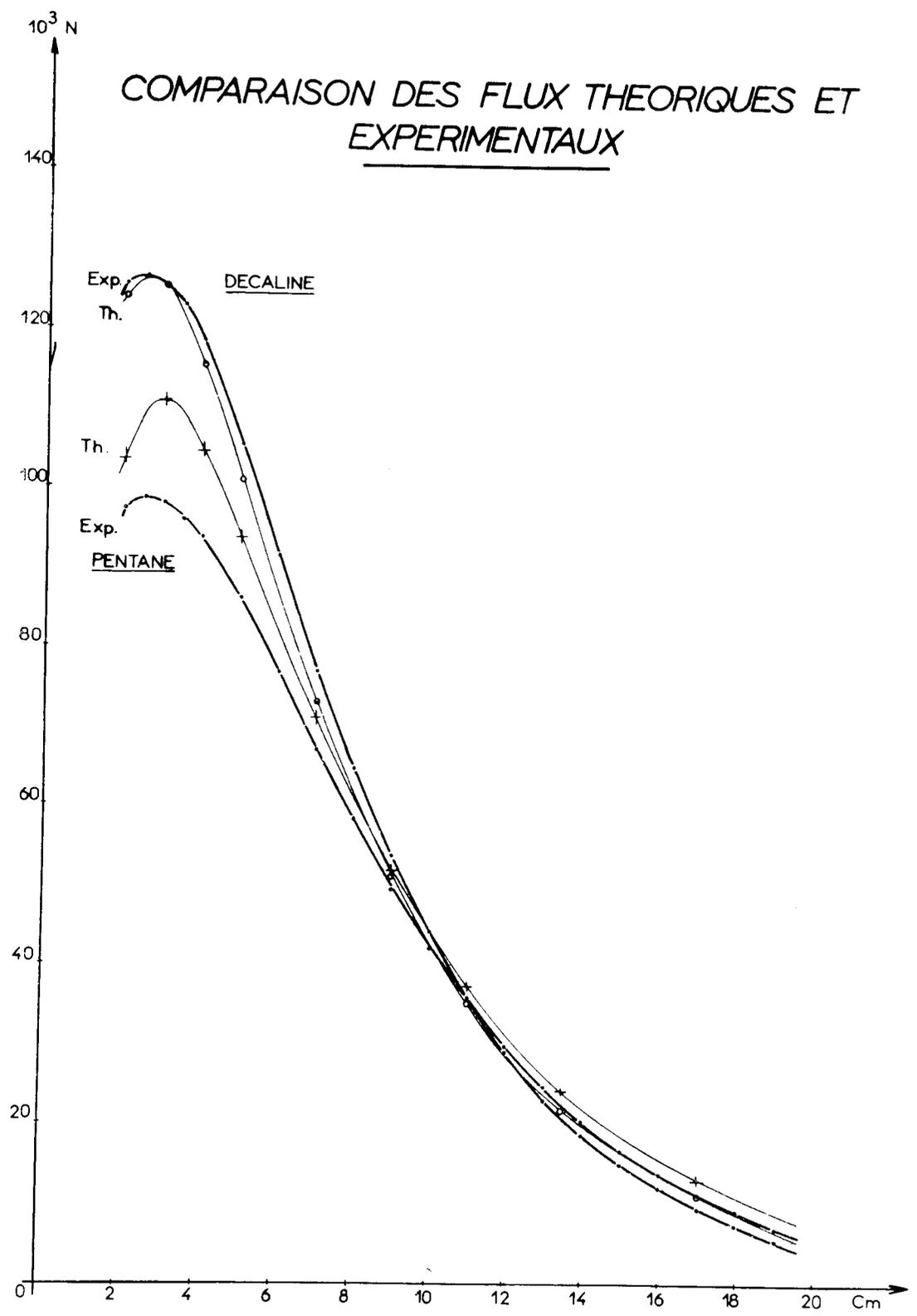
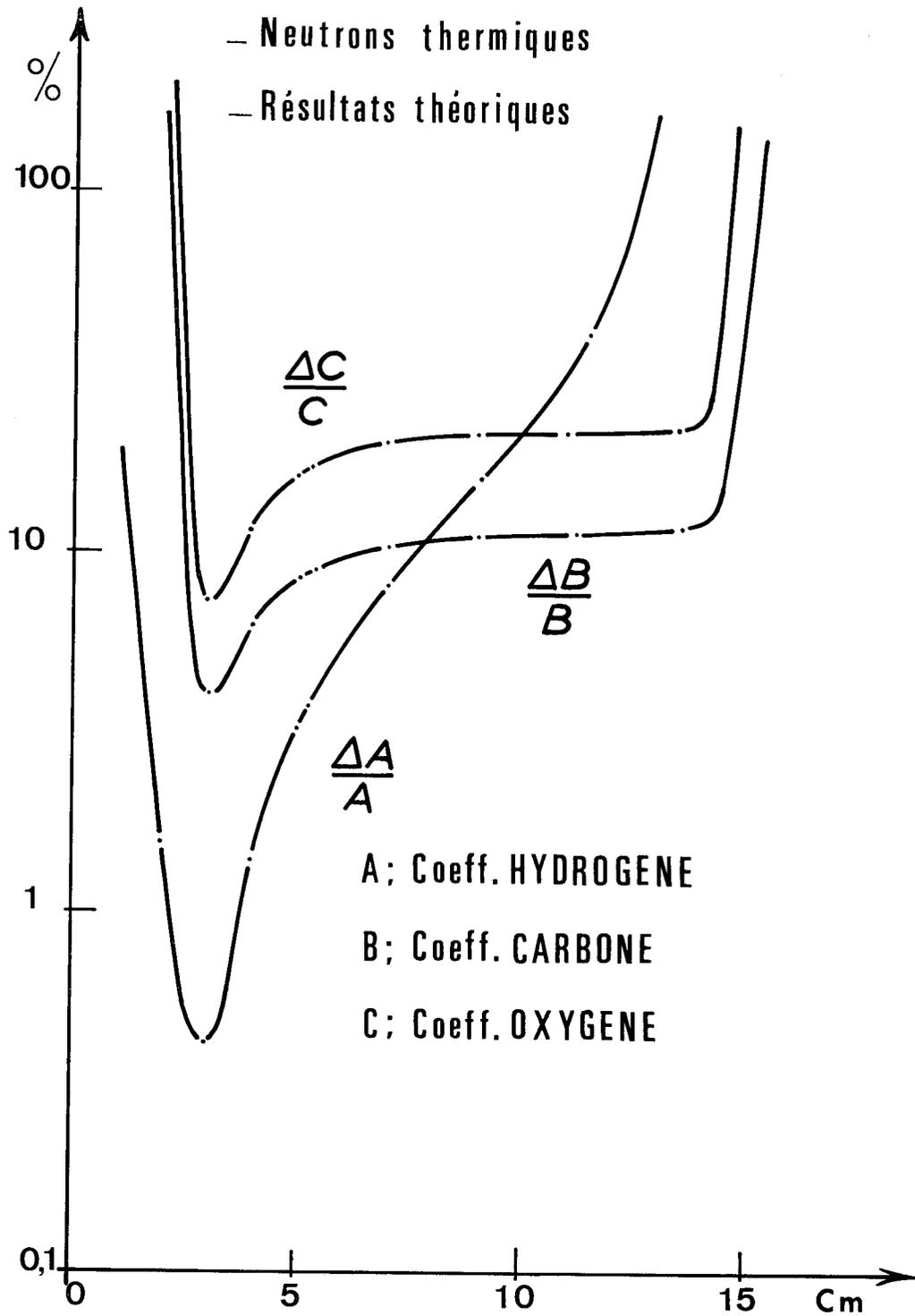
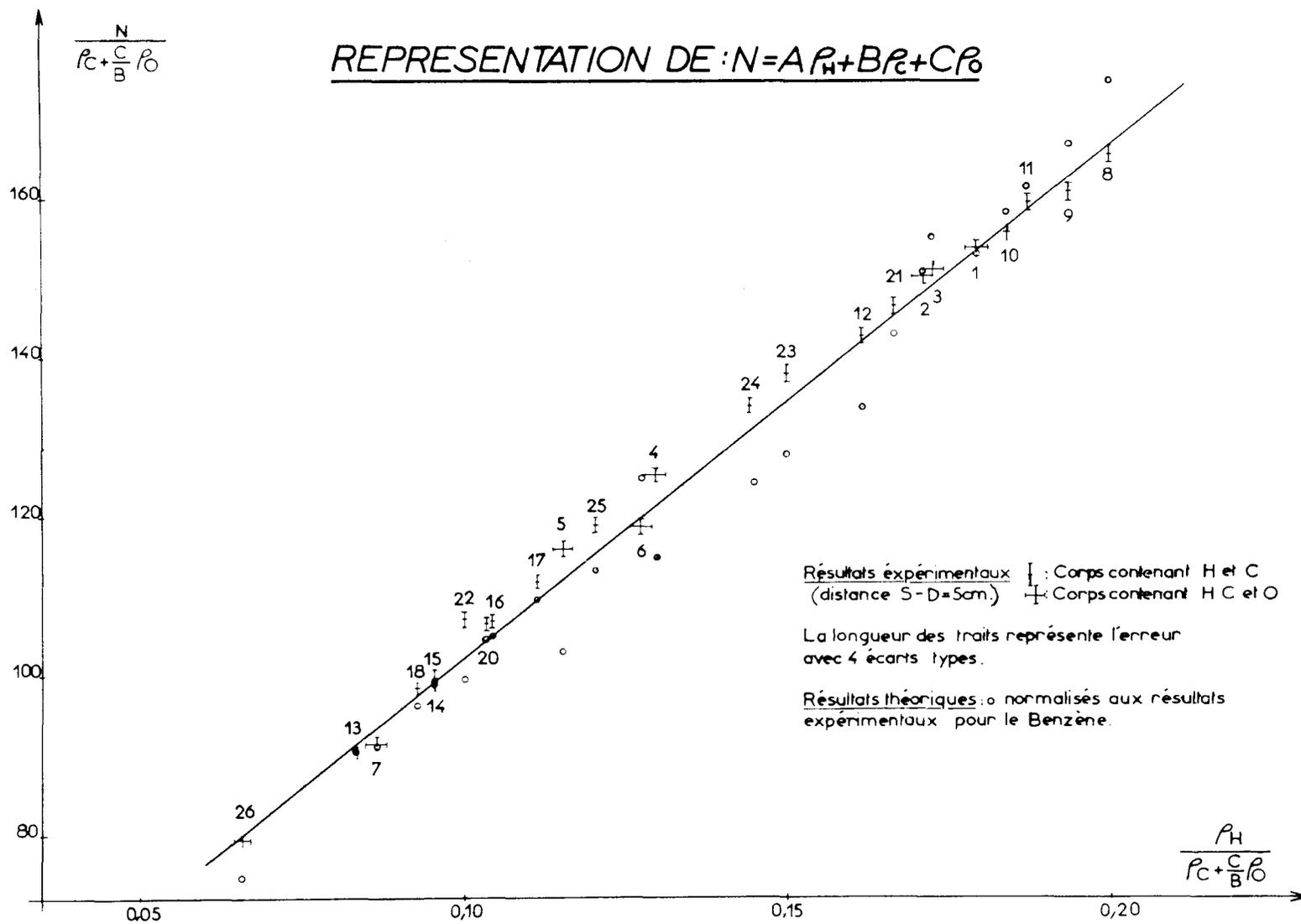
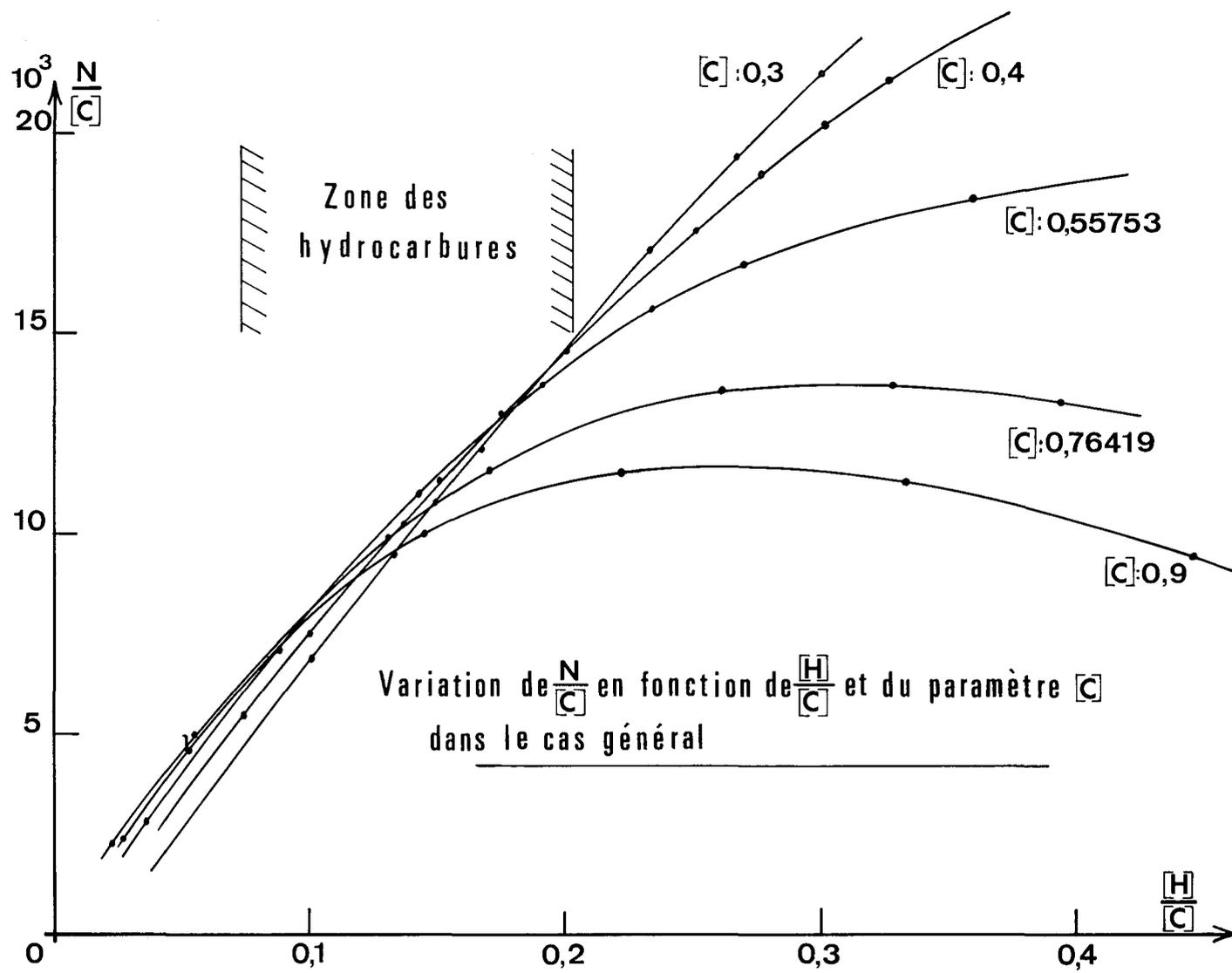


PLANCHE 5.5.2.2

VARIATION DES ECARTS TYPES RELATIFS







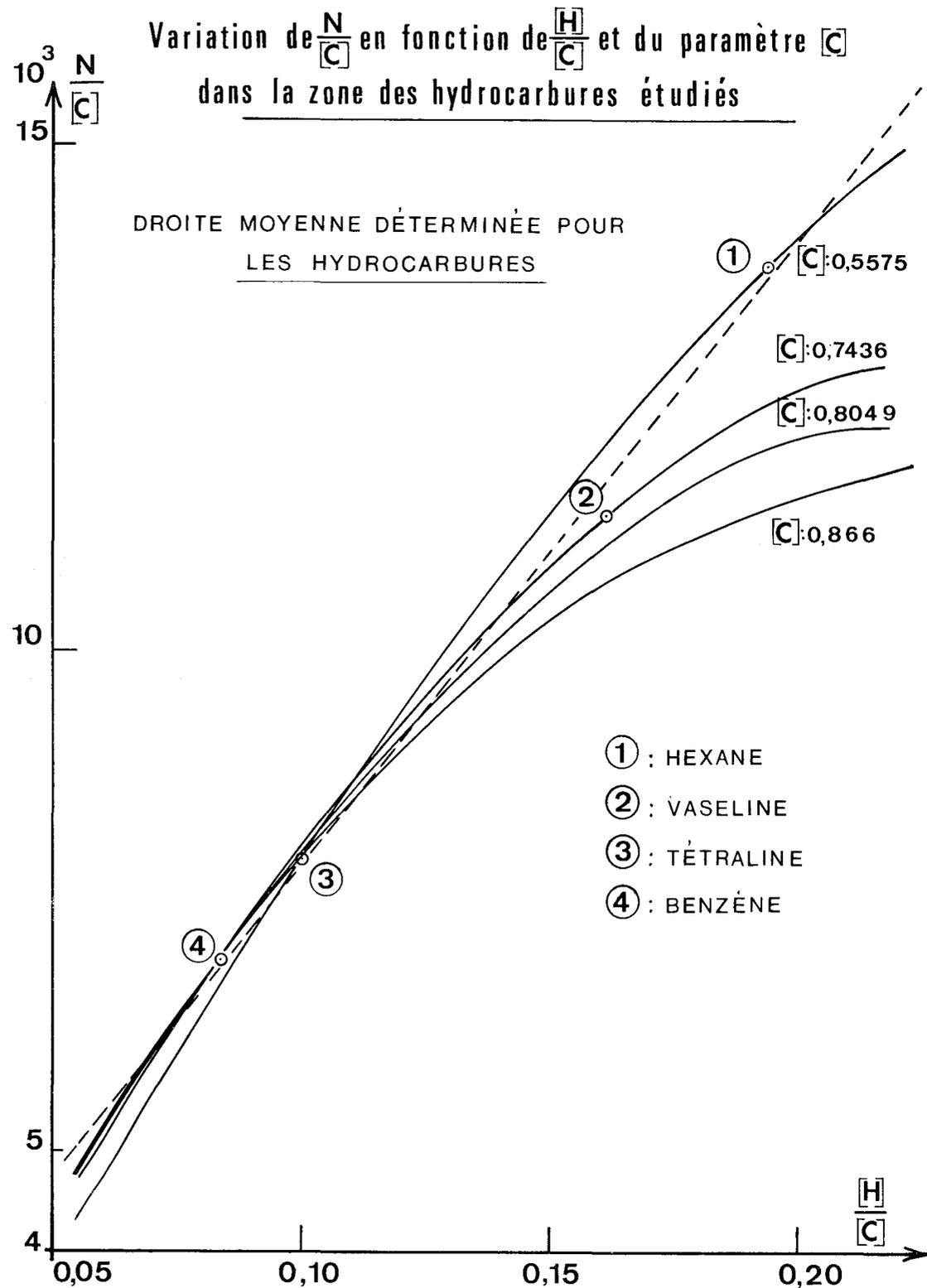


PLANCHE 5.6.2.2

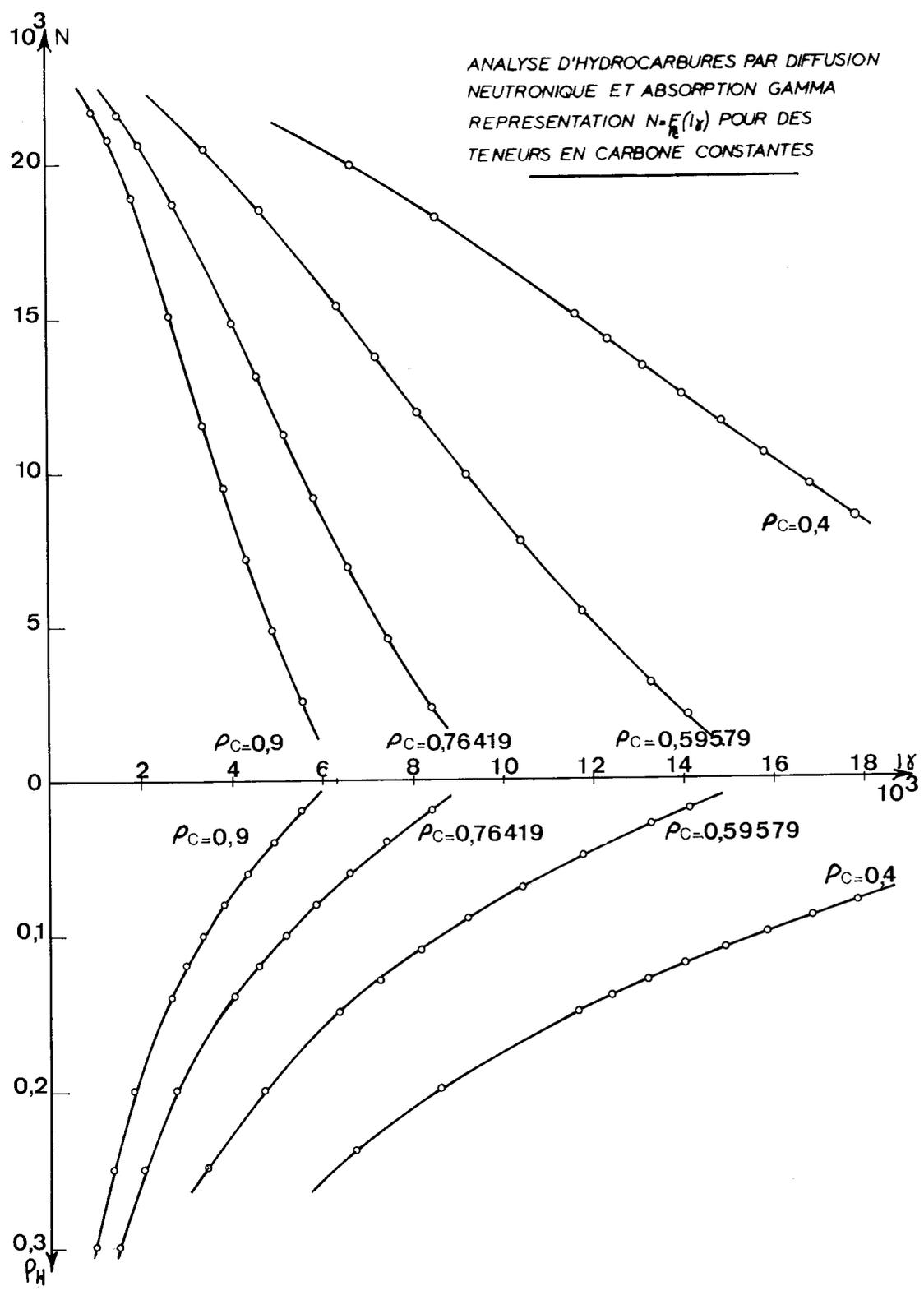


PLANCHE 7.2.1

ANALYSE D'HYDROCARBURES PAR DIFFUSION NEUTRONIQUE ET ABSORPTIO
 GAMMA . REPRESENTATION DE $N = F(\rho_H)$ POUR DES TENEURS EN CARBONE
 CONSTANTES - COMPARAISON AVEC LES POINTS EXPERIMENTAUX : +
 RESULTATS NORMALISES POUR L'EAU A 9cm.

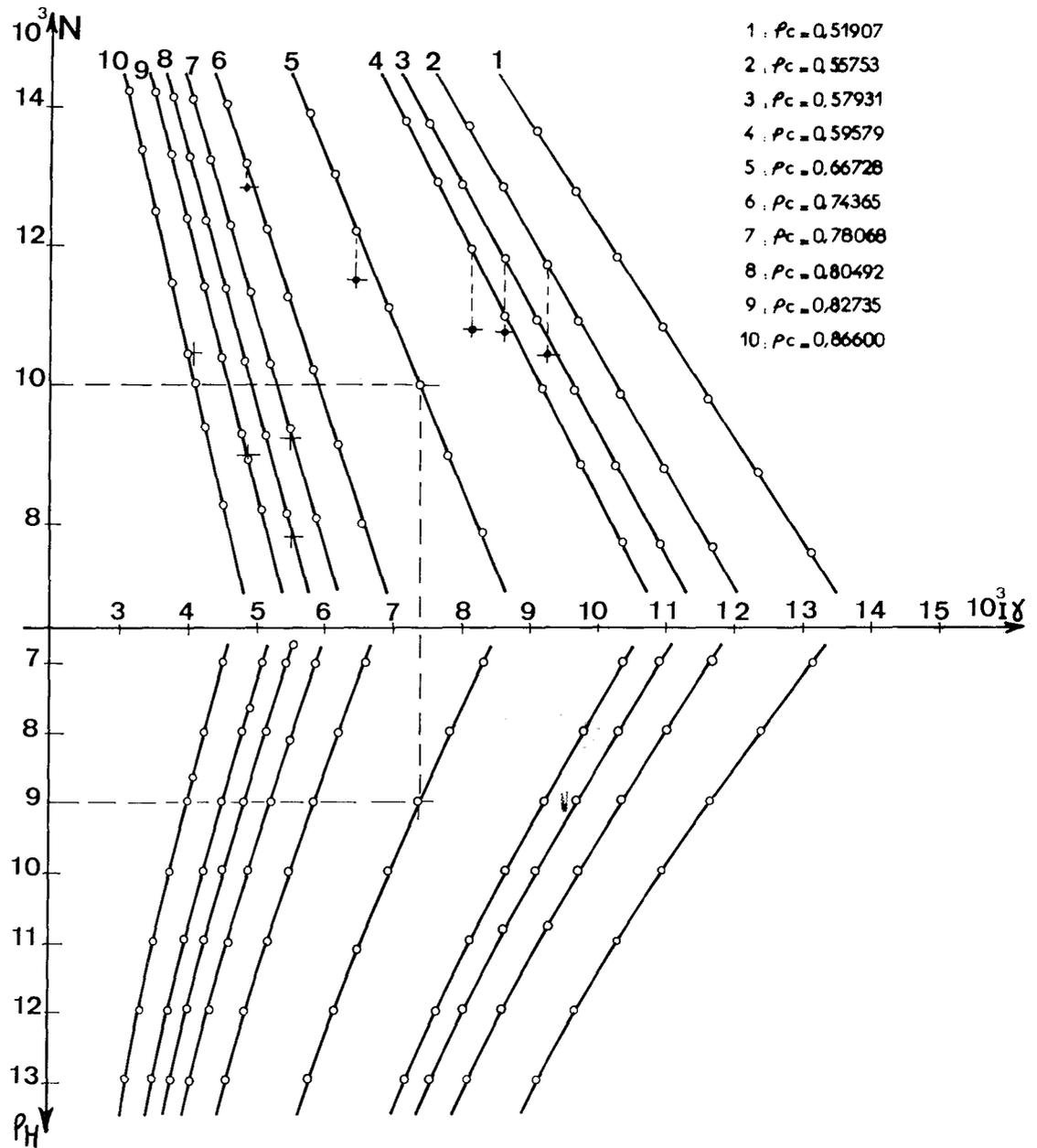


PLANCHE 7.2.2.1

VARIATION DES ECARTS ENTRE VALEURS
 CALCULEES ET VALEURS EXPERIMENTALES
 POUR LA RELATION $N = F_{pc}(I_{\gamma})$ EN FONCTION
 DE LA TENEUR EN CARBONE

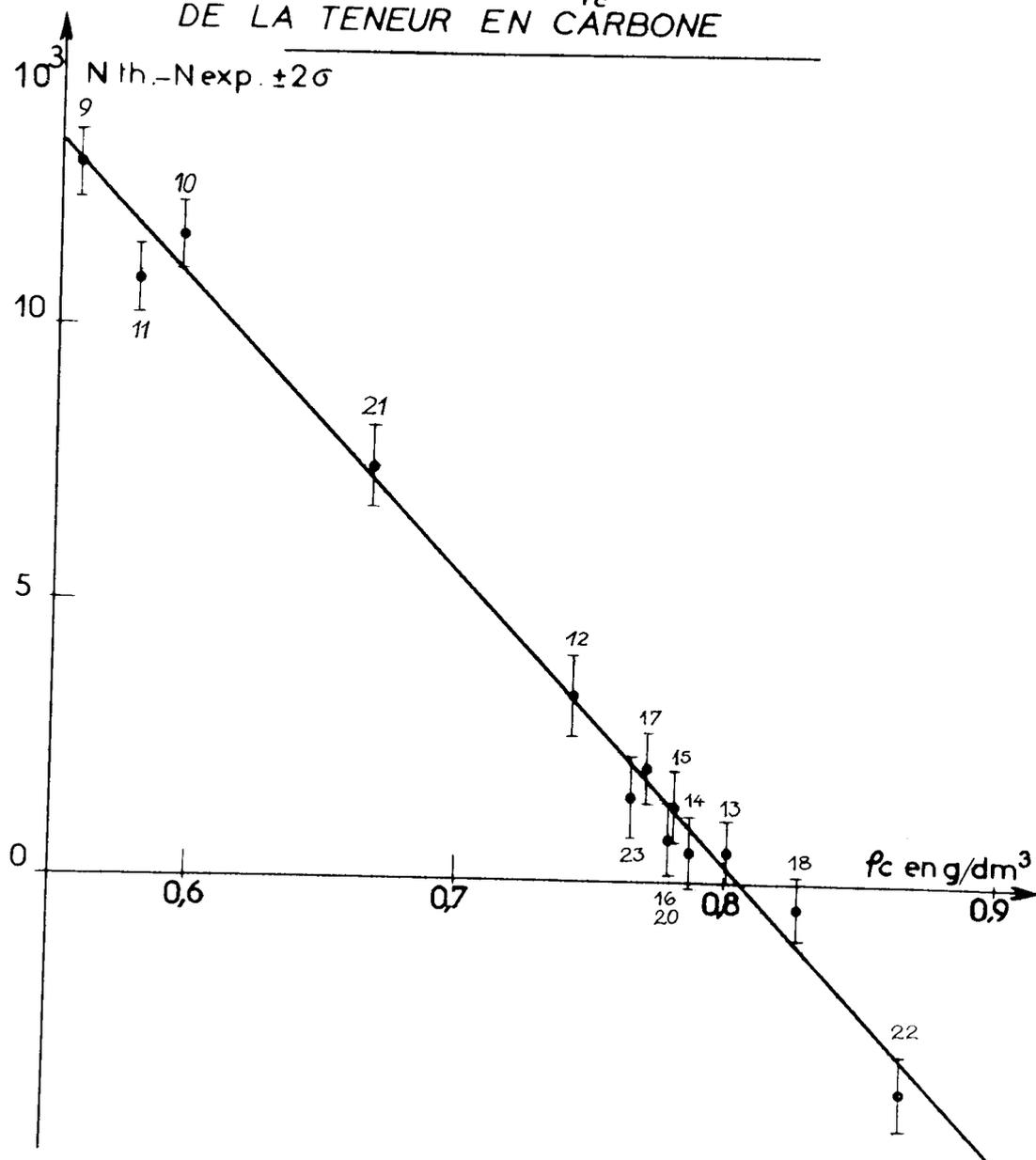
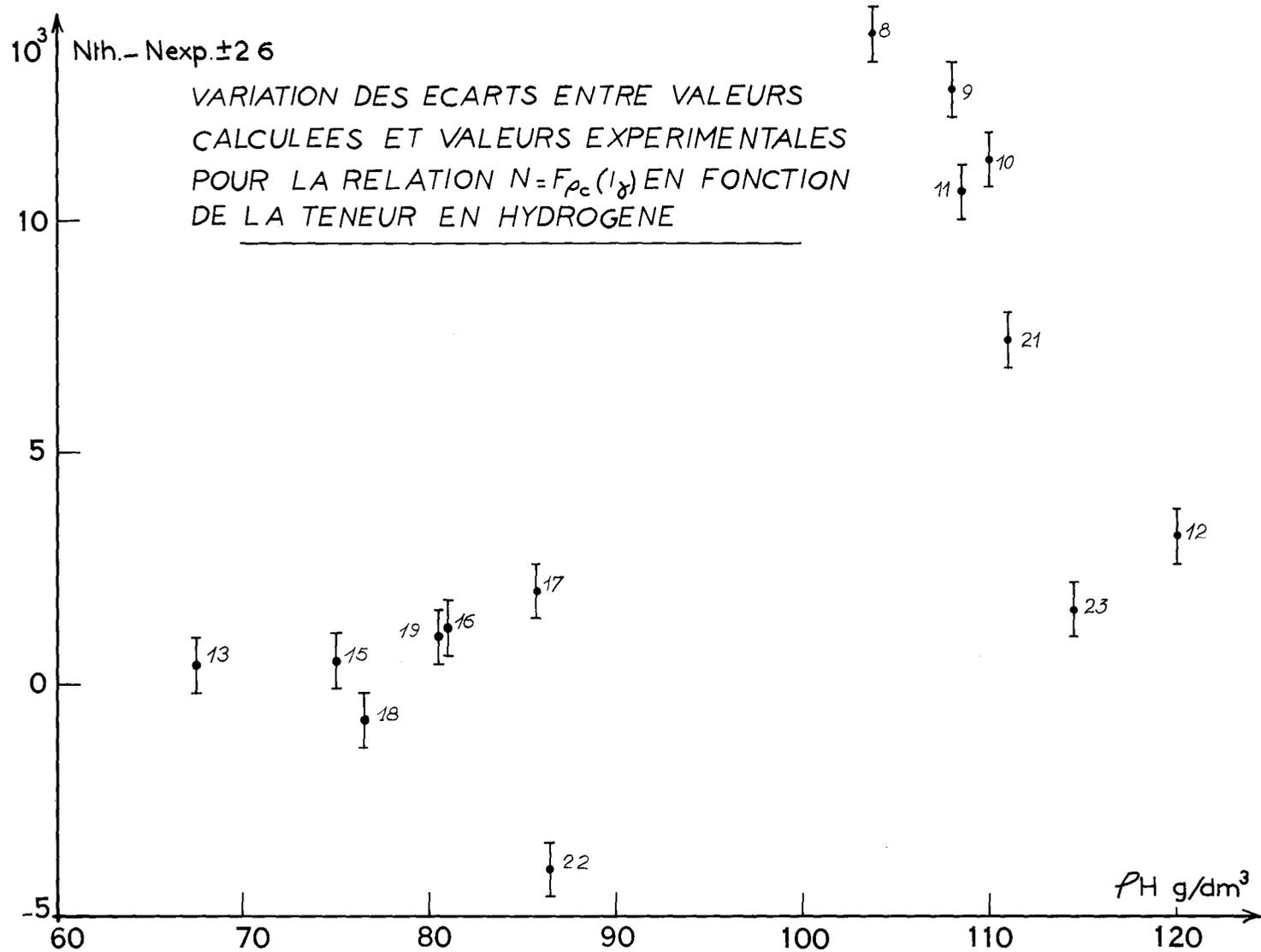
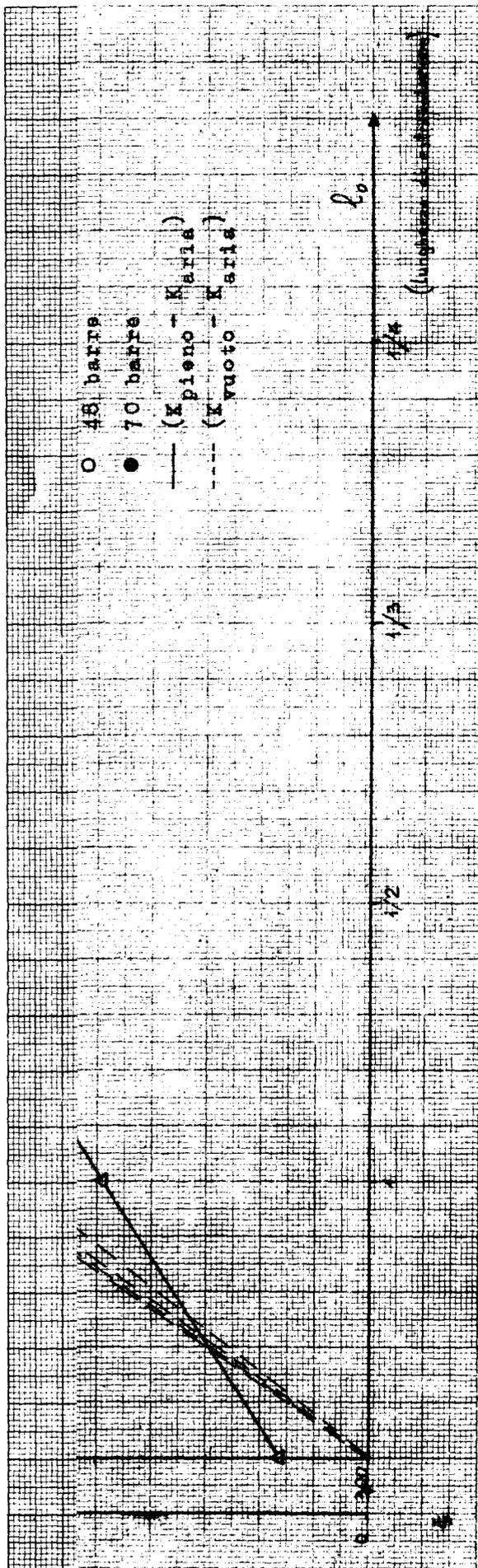


PLANCHE 7.2.2.2





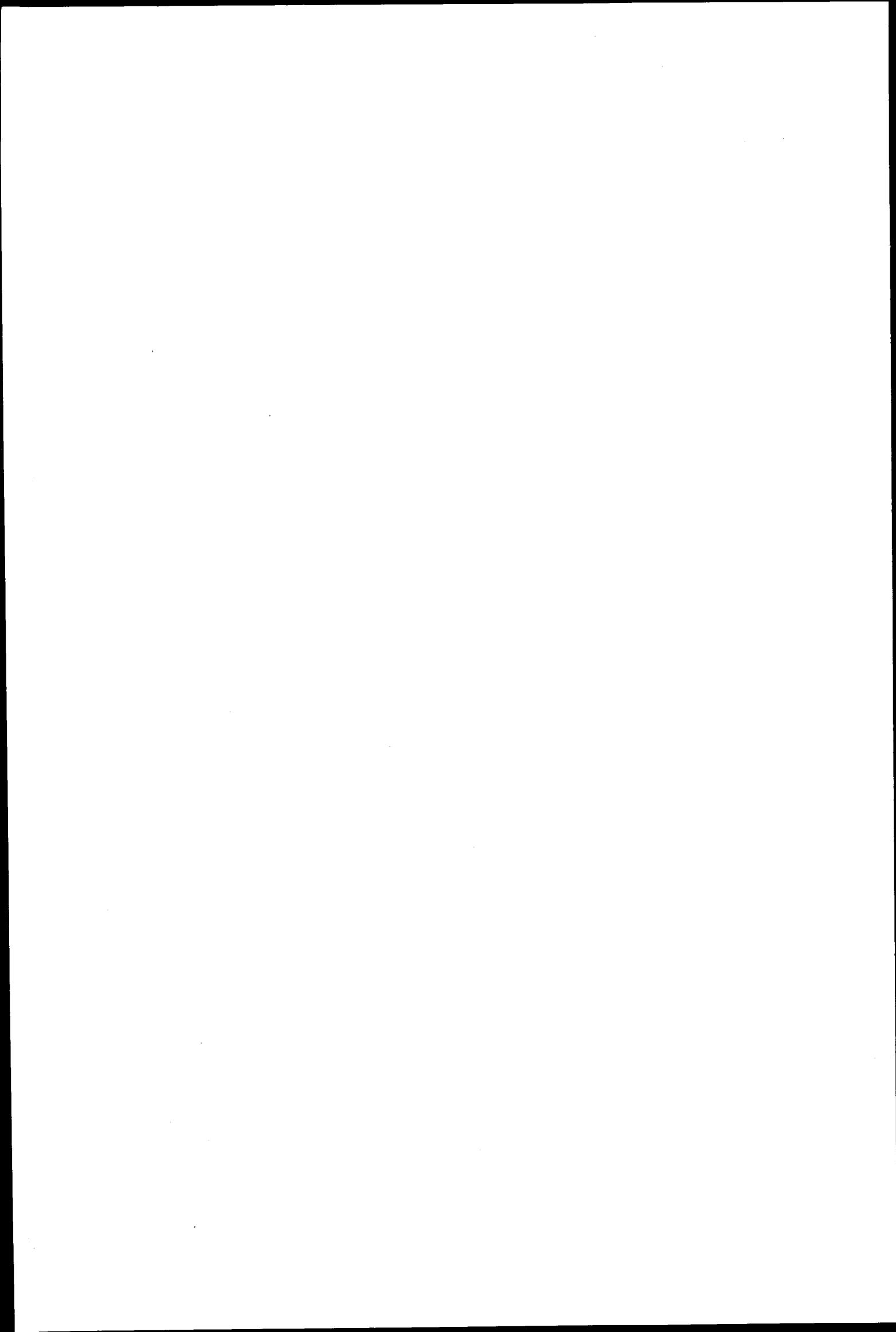


Fig. 34 - Andamento assiale del flusso termico a veloce nelle condizioni di cella estratta ed inserita - Modello B1 B20-2, parametrizzazione non esplicita, modello monodimensionale.

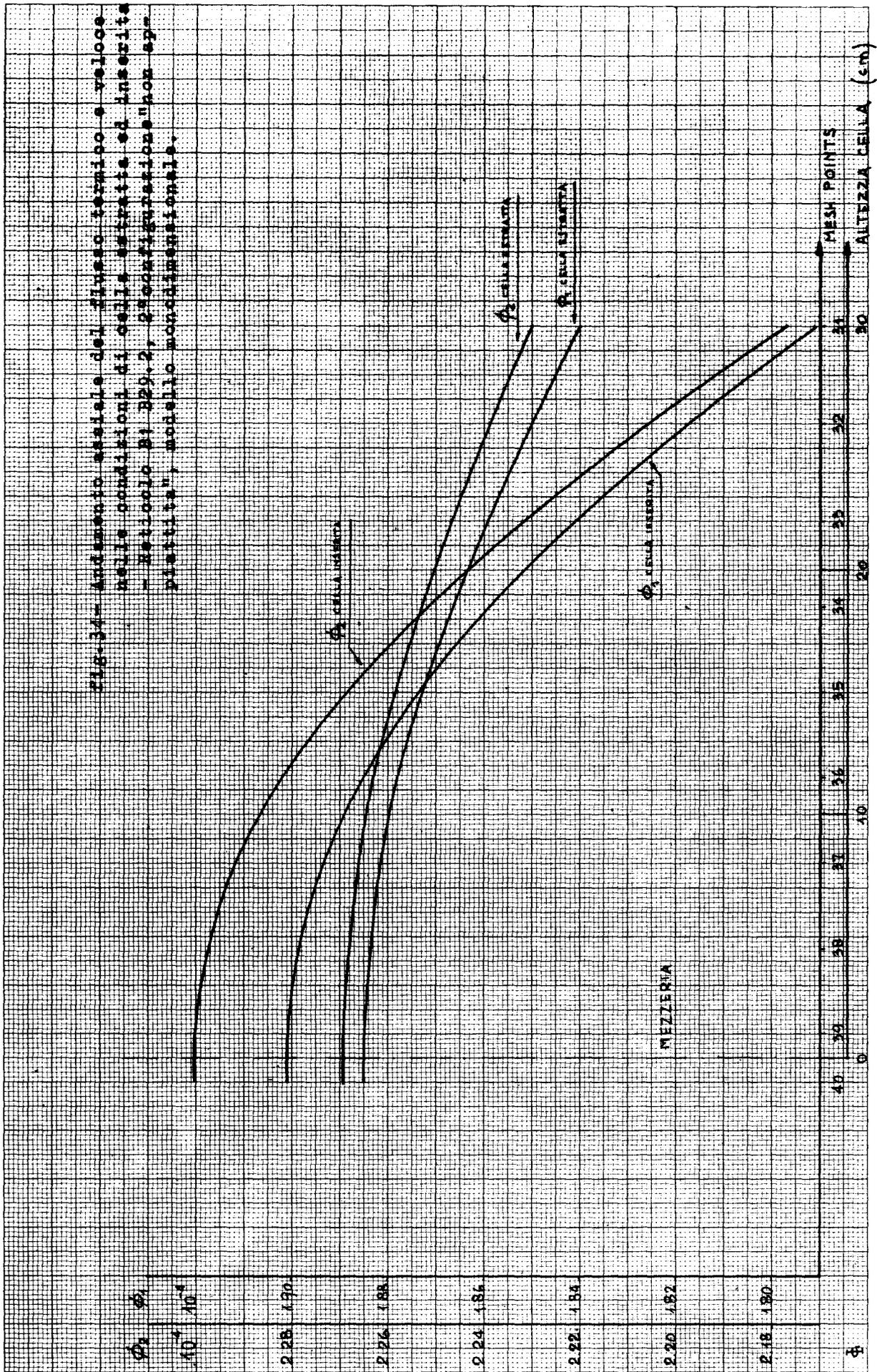
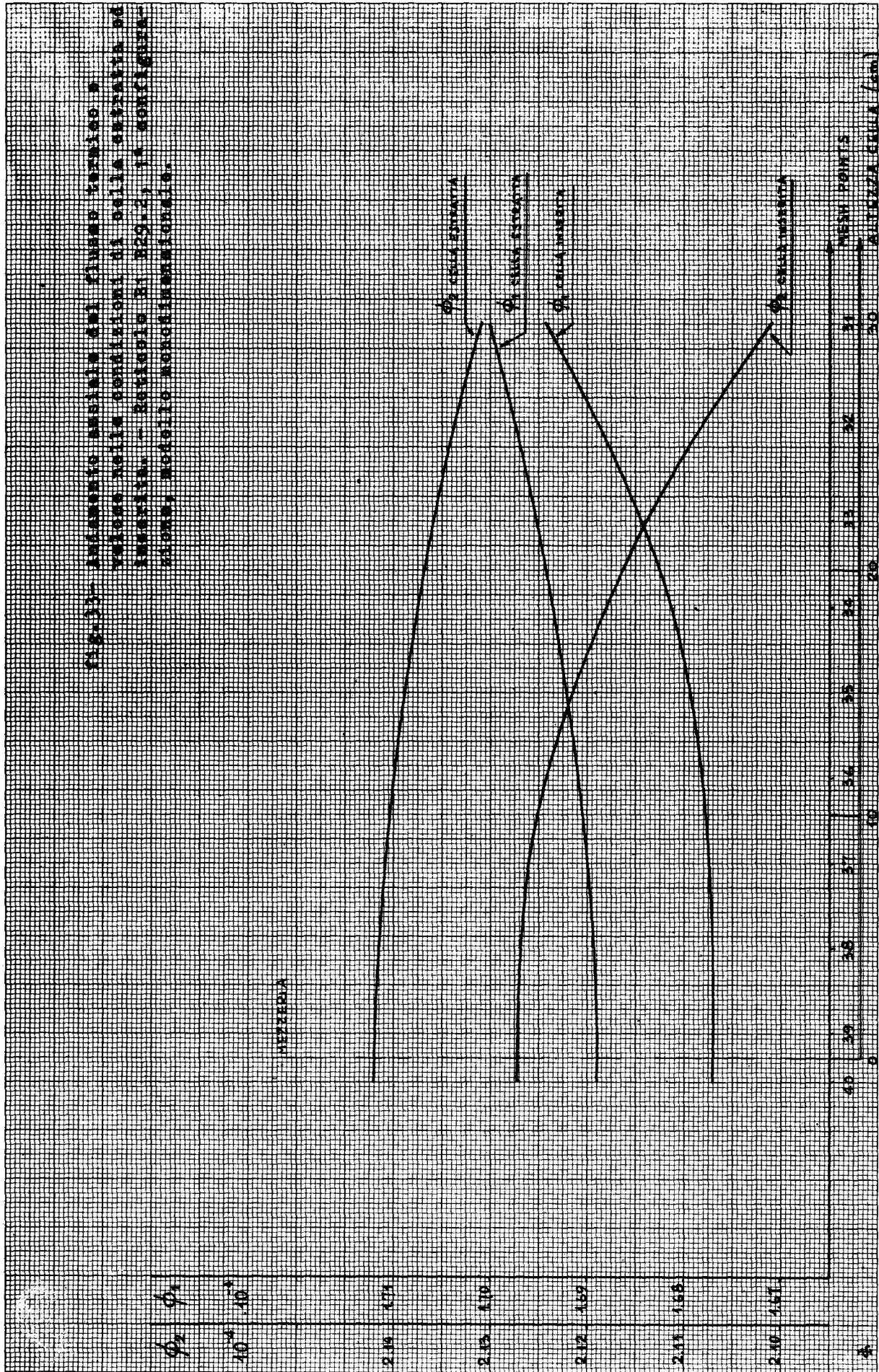
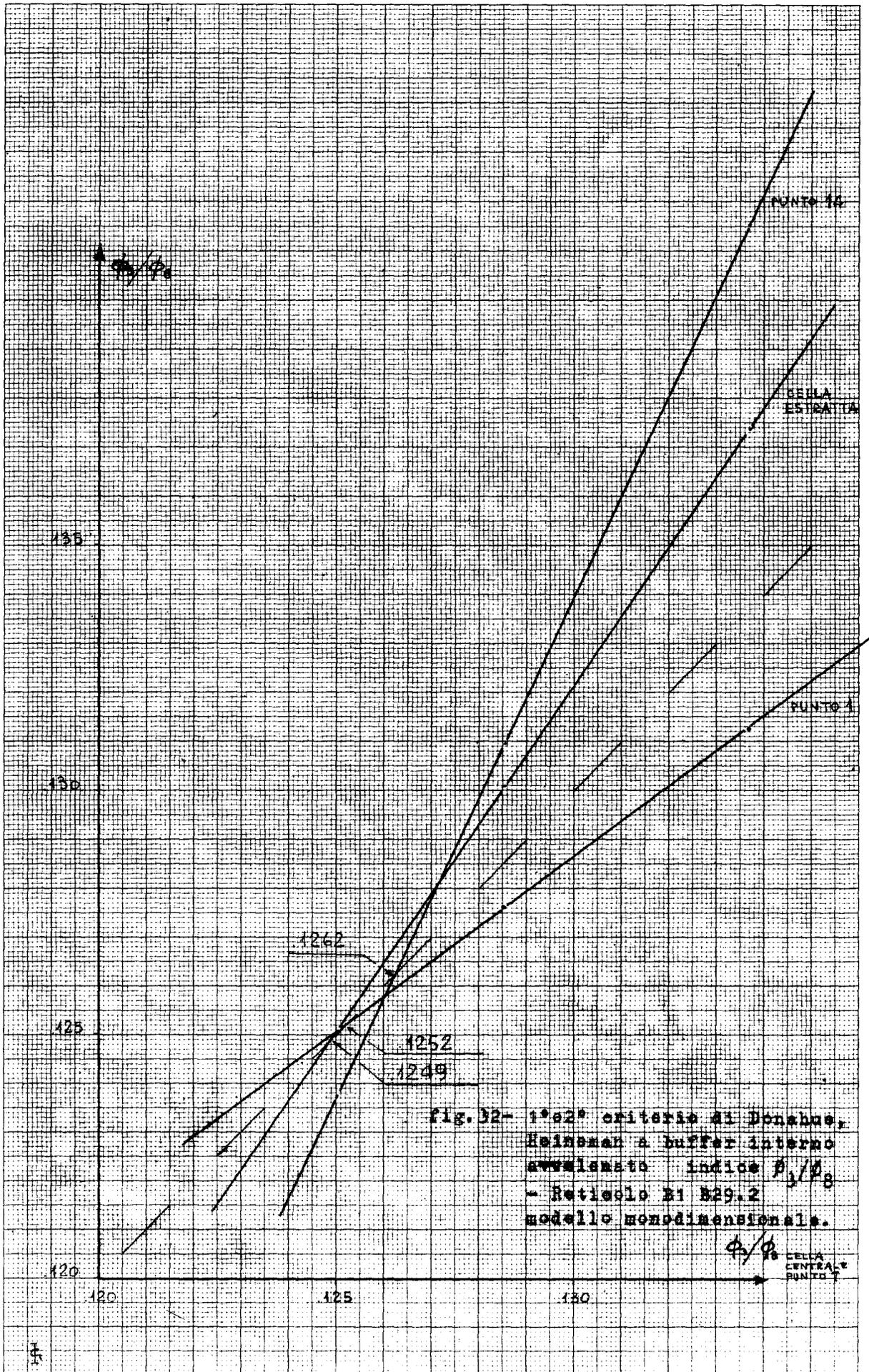
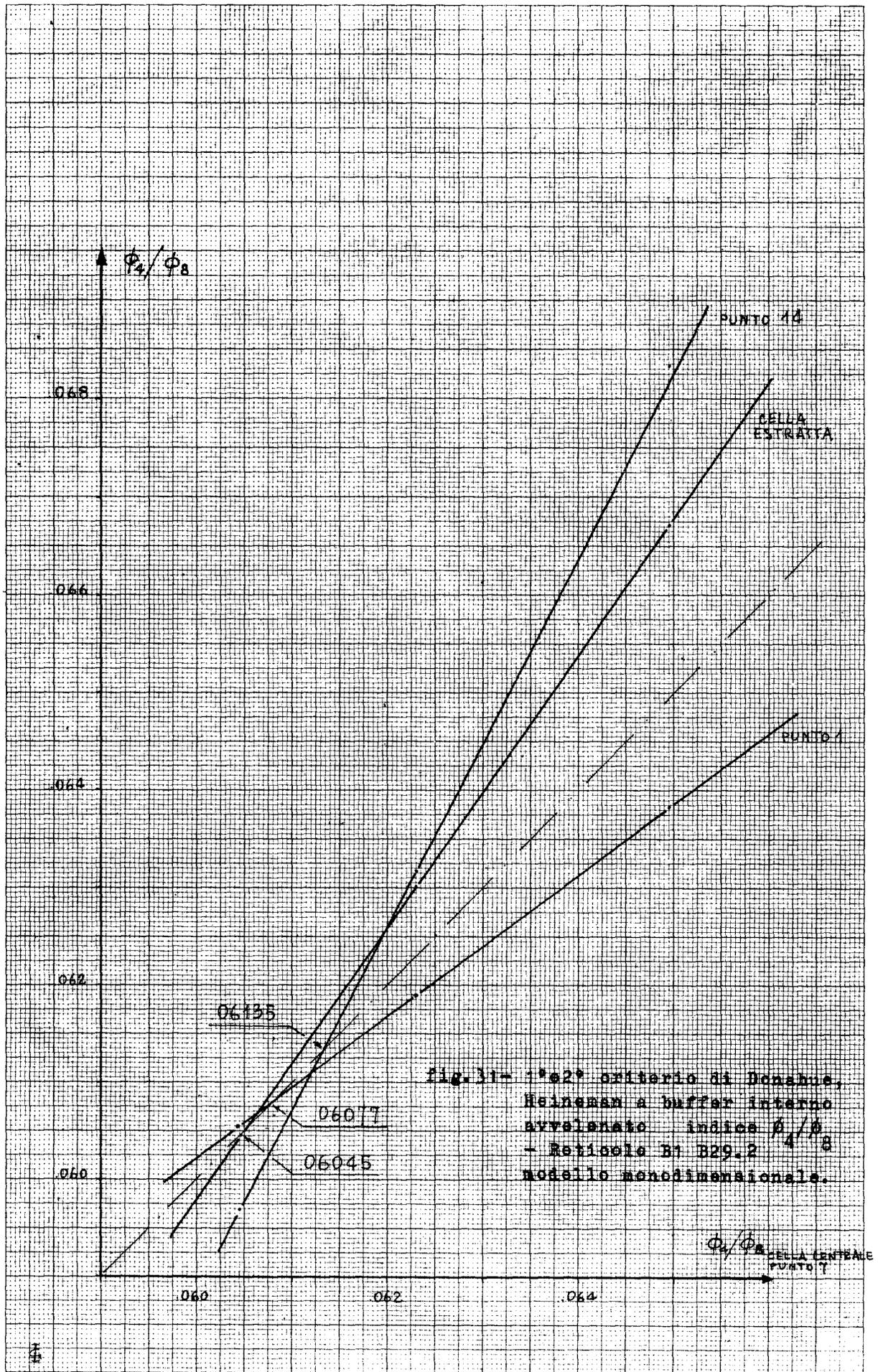
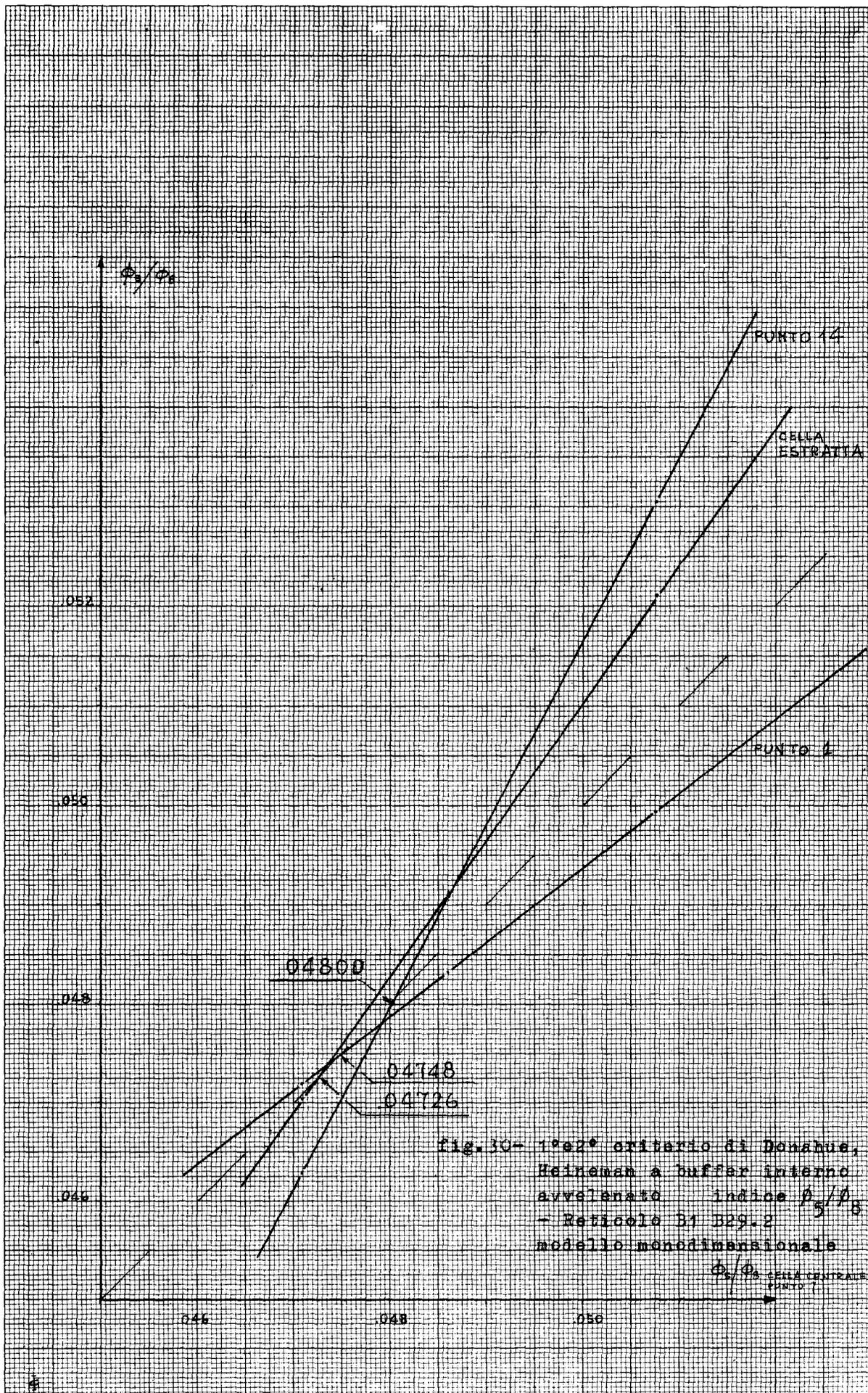


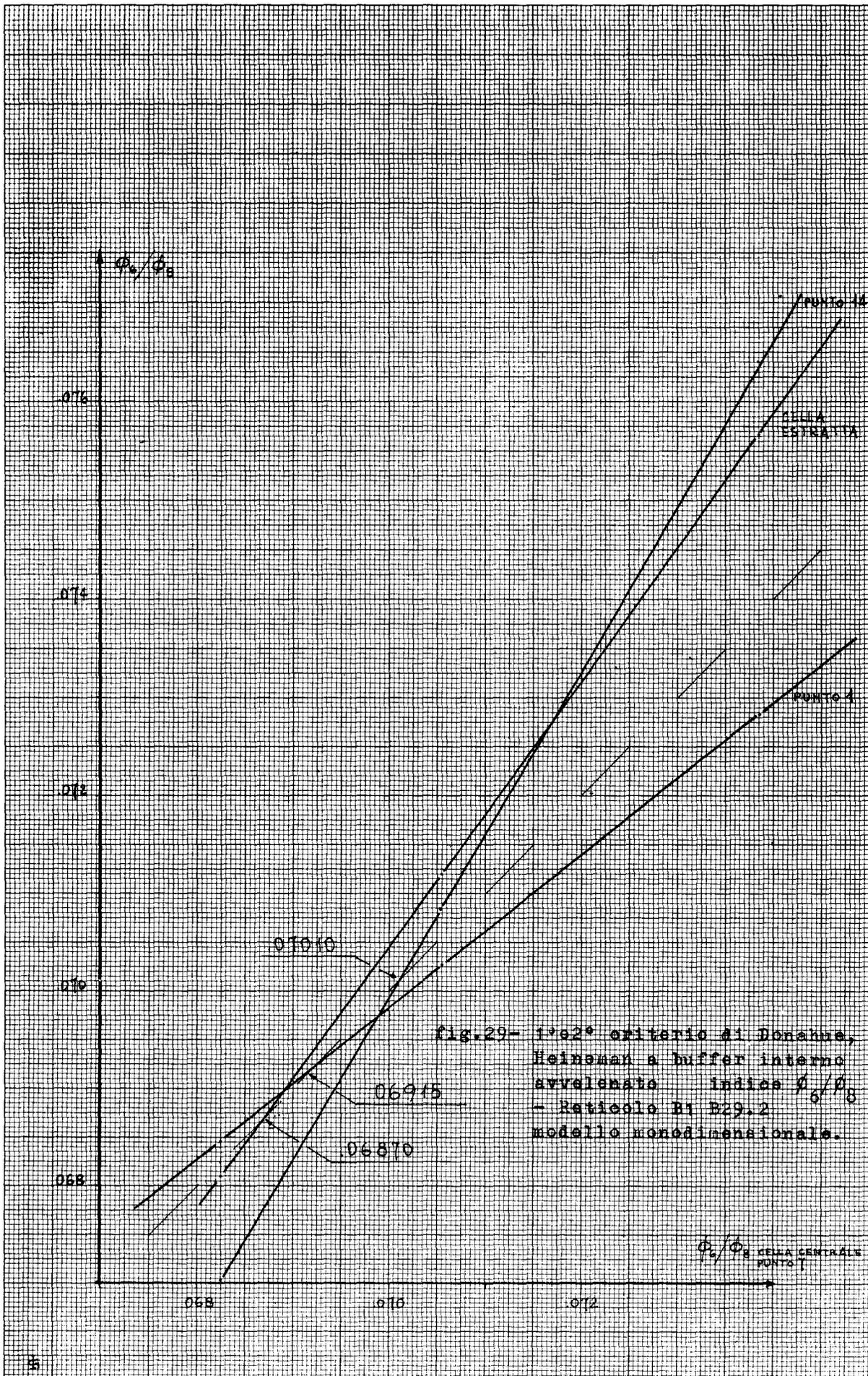
Fig. 32 - Diagramma delle curve di tensione deformazione e
 valore delle deformazioni di snella estratta ad
 impetoria - Esempio di tipo 21, 200.2, in acciaio
 a tenore medio di manganese.

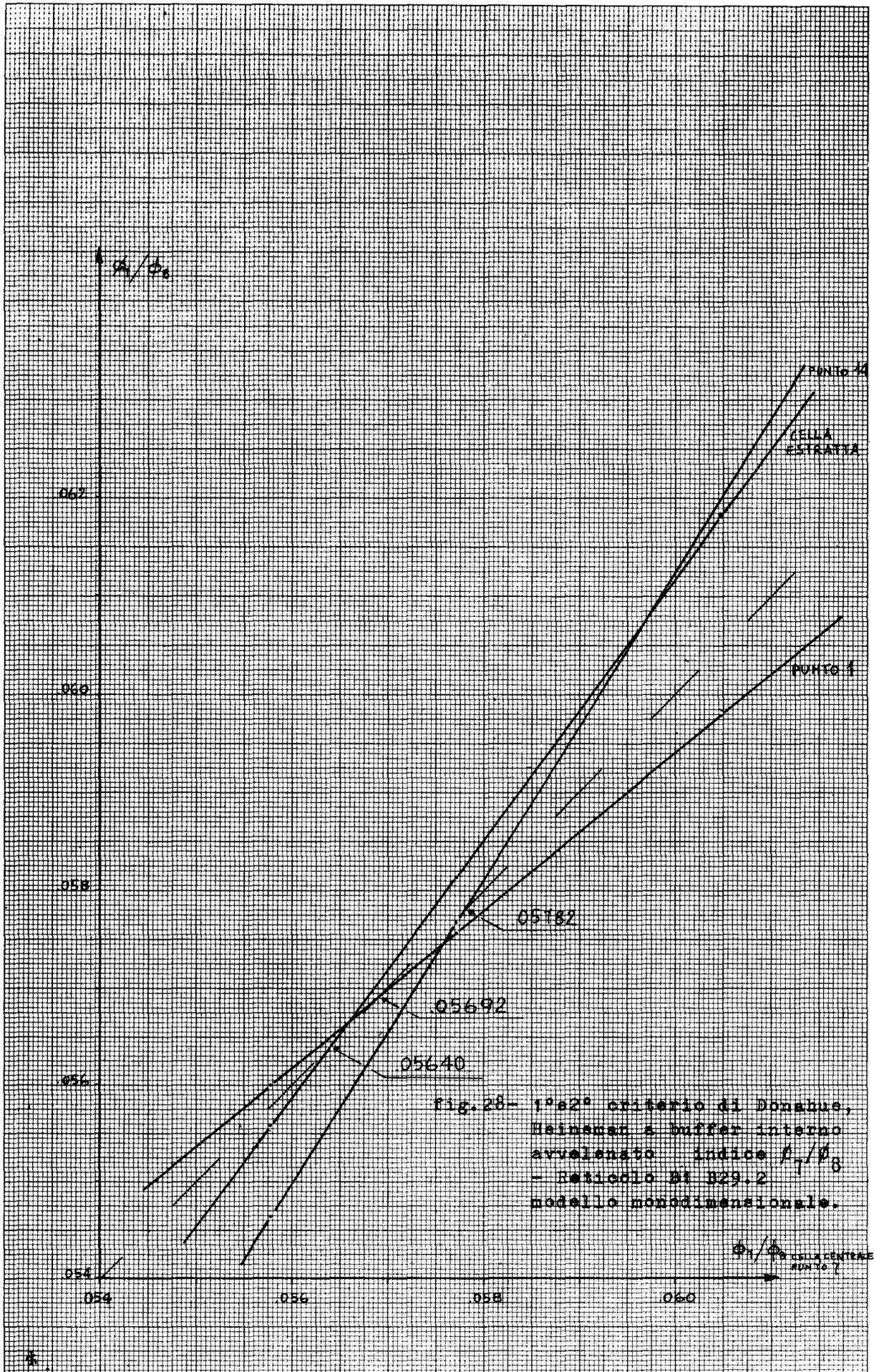












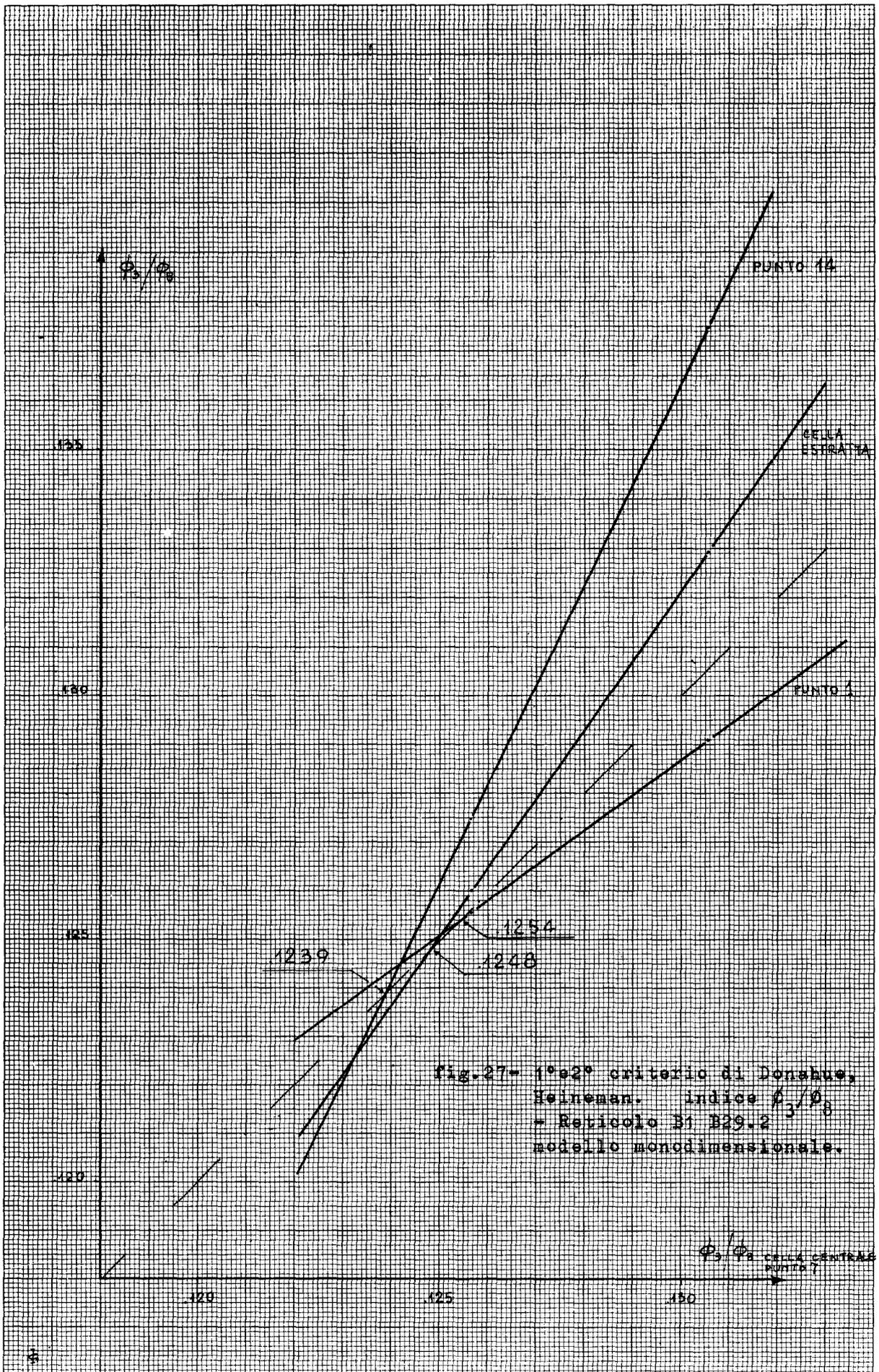
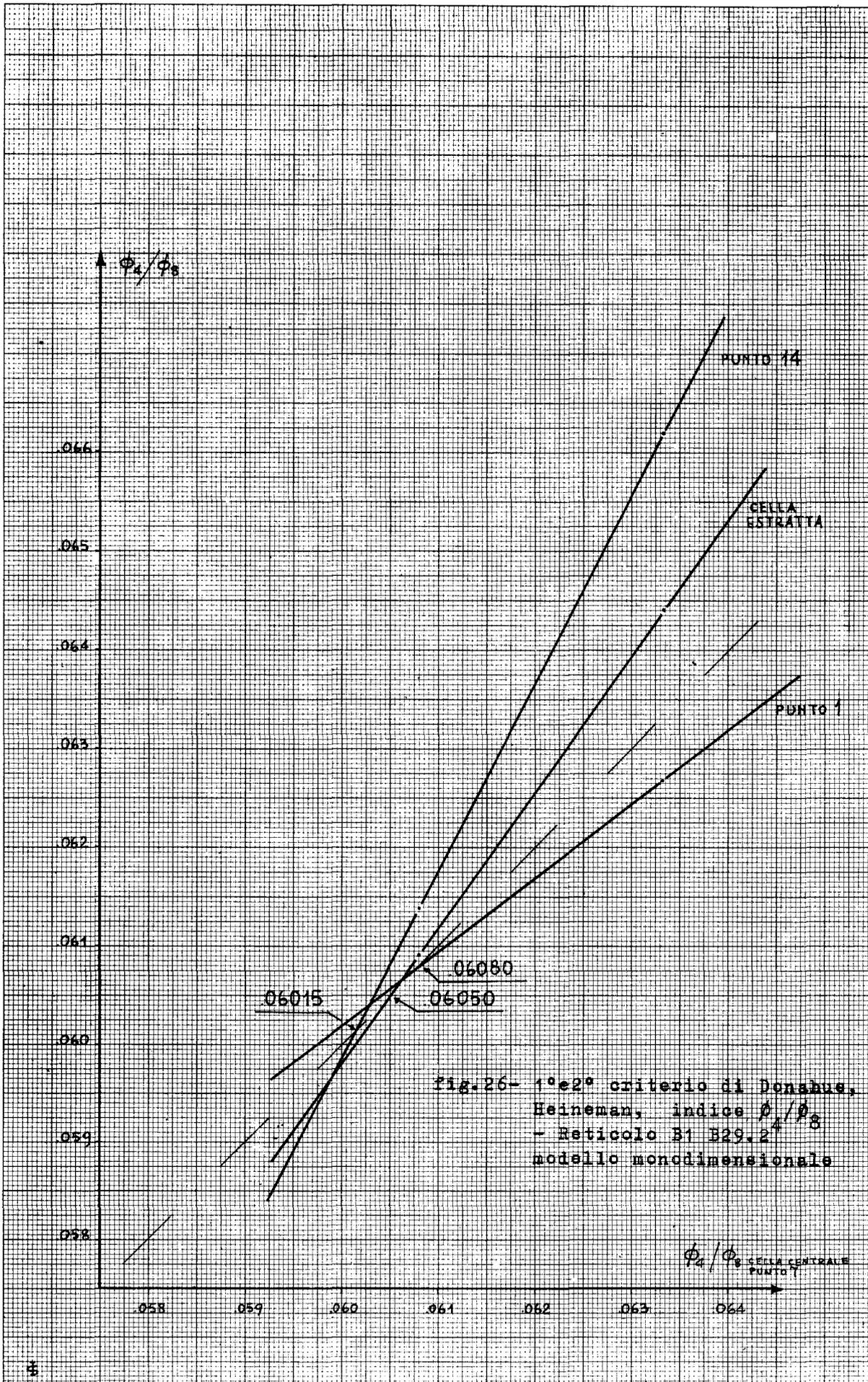
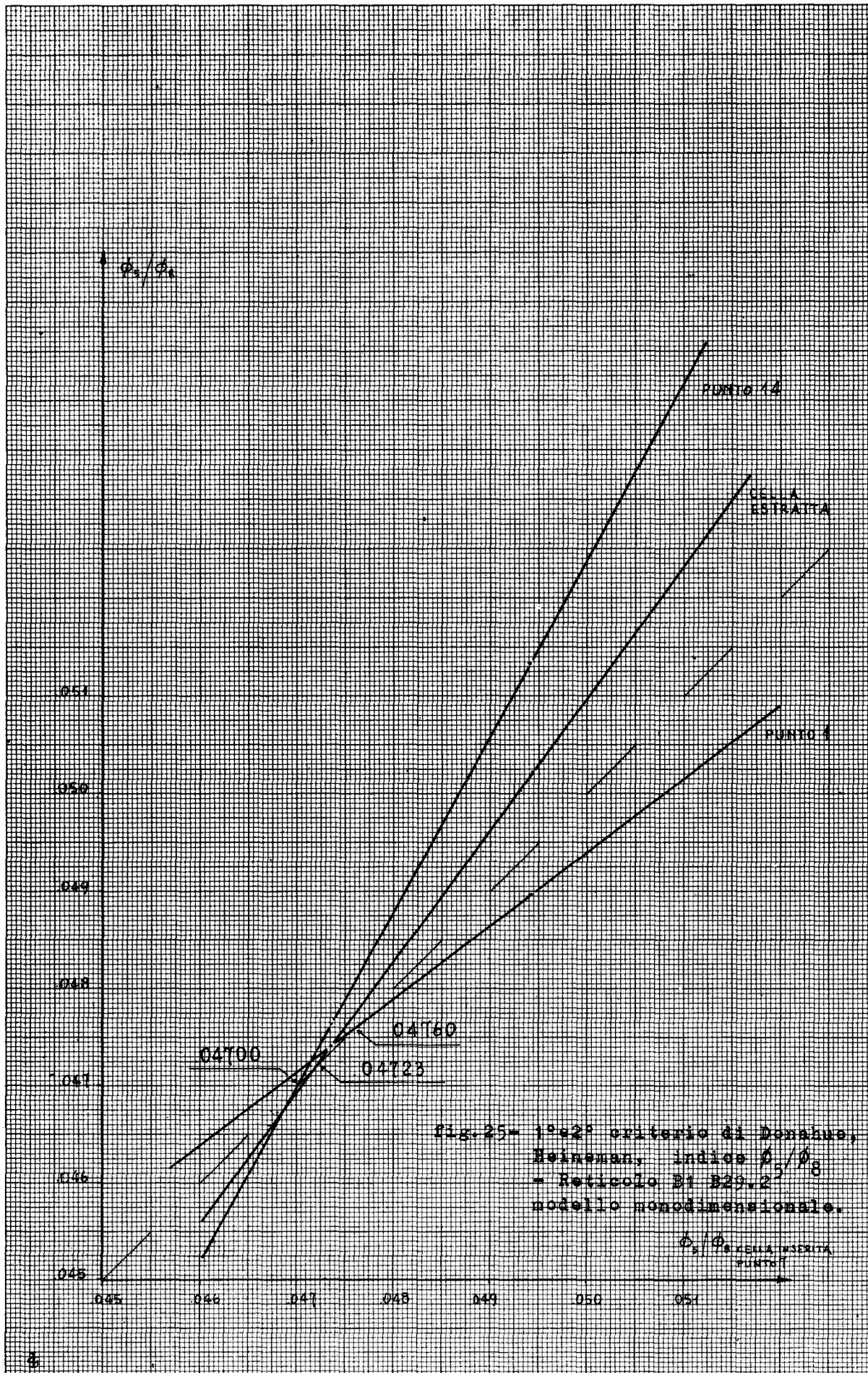
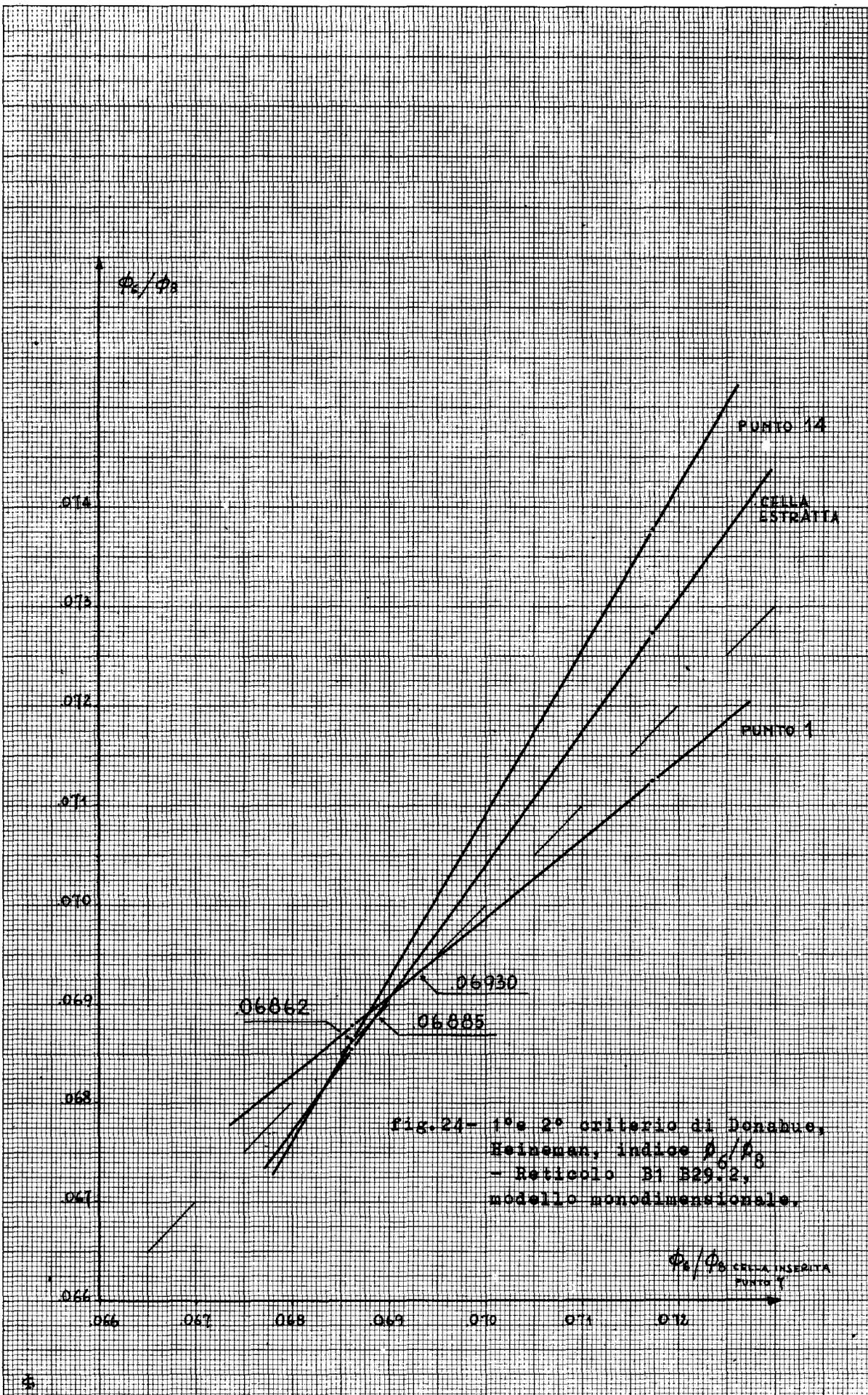
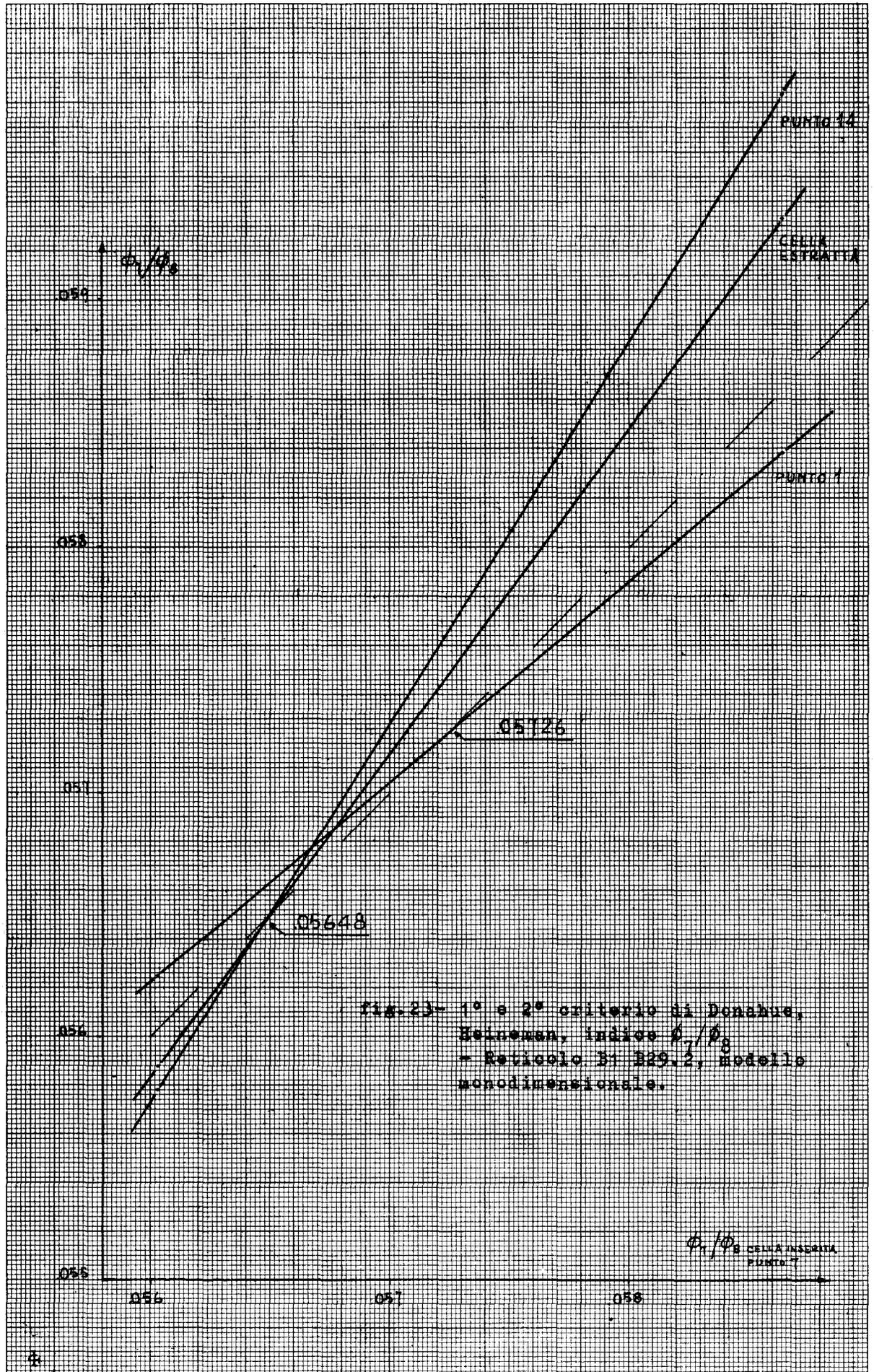


fig.27- 1°e2° criterio di Donahue, Helmeman. indice ϕ_3/ϕ_8
 - Reticolo B1 B29.2
 modello monodimensionale.









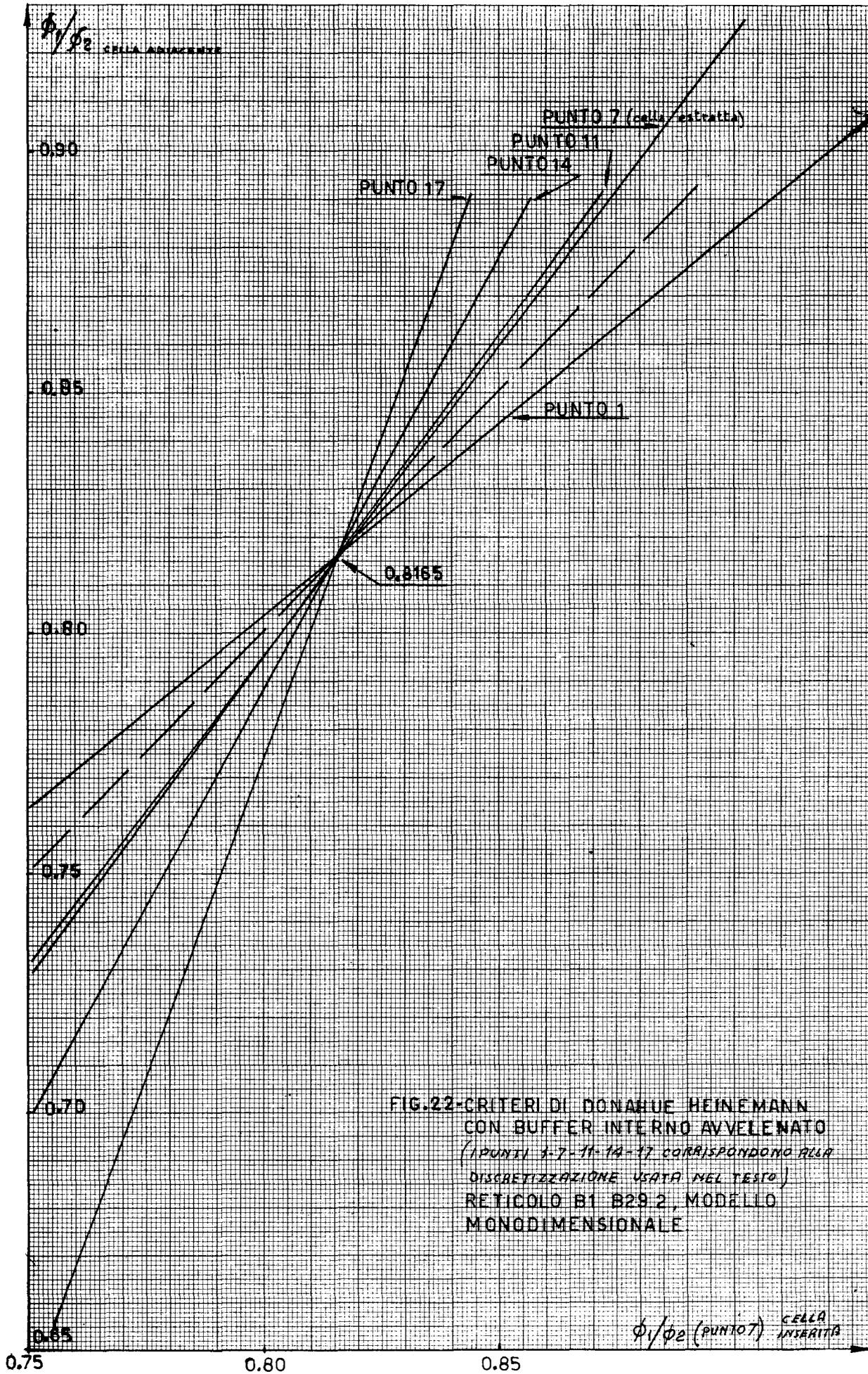
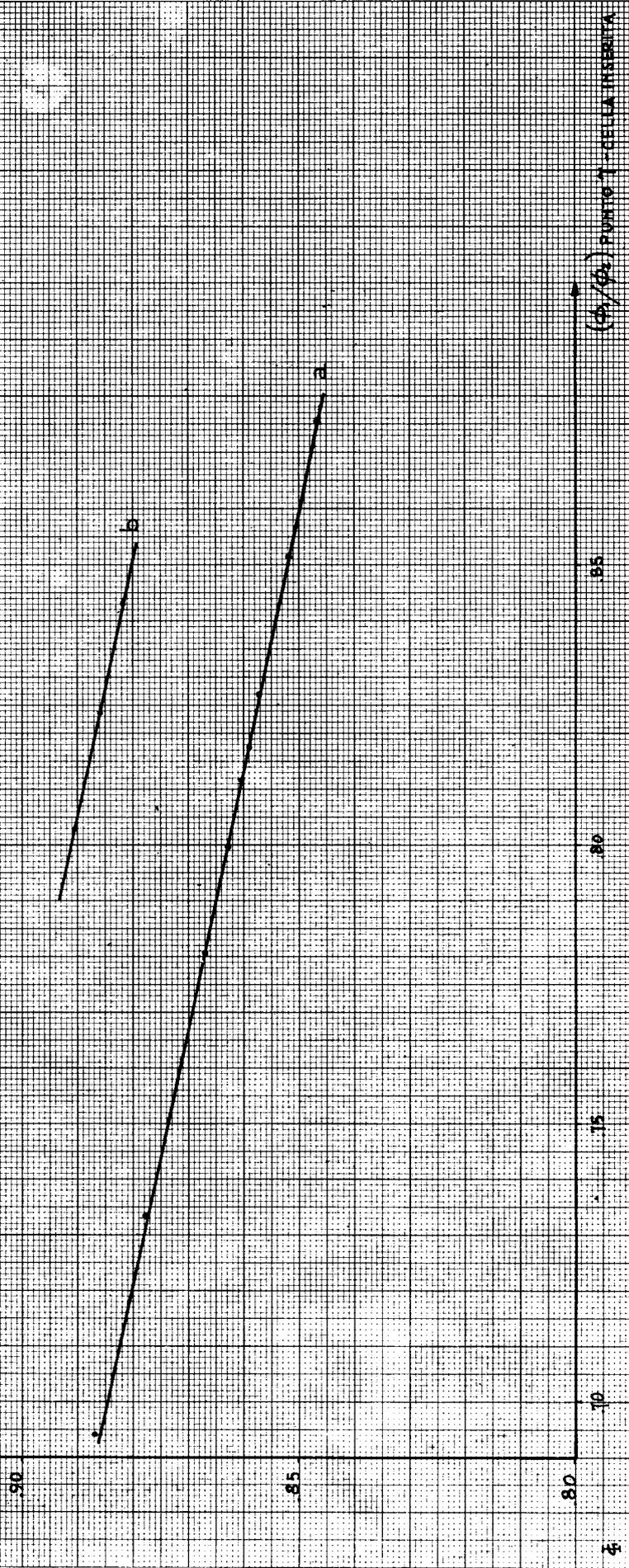


Fig. 21 - Andamento del rapporto ϕ_1/ϕ_2 in funzione di ϕ_1/ϕ_2 - Rettilo di B29.2, modello monodimensionale.

- a) buffer interno non avvelenato
- b) buffer interno avvelenato

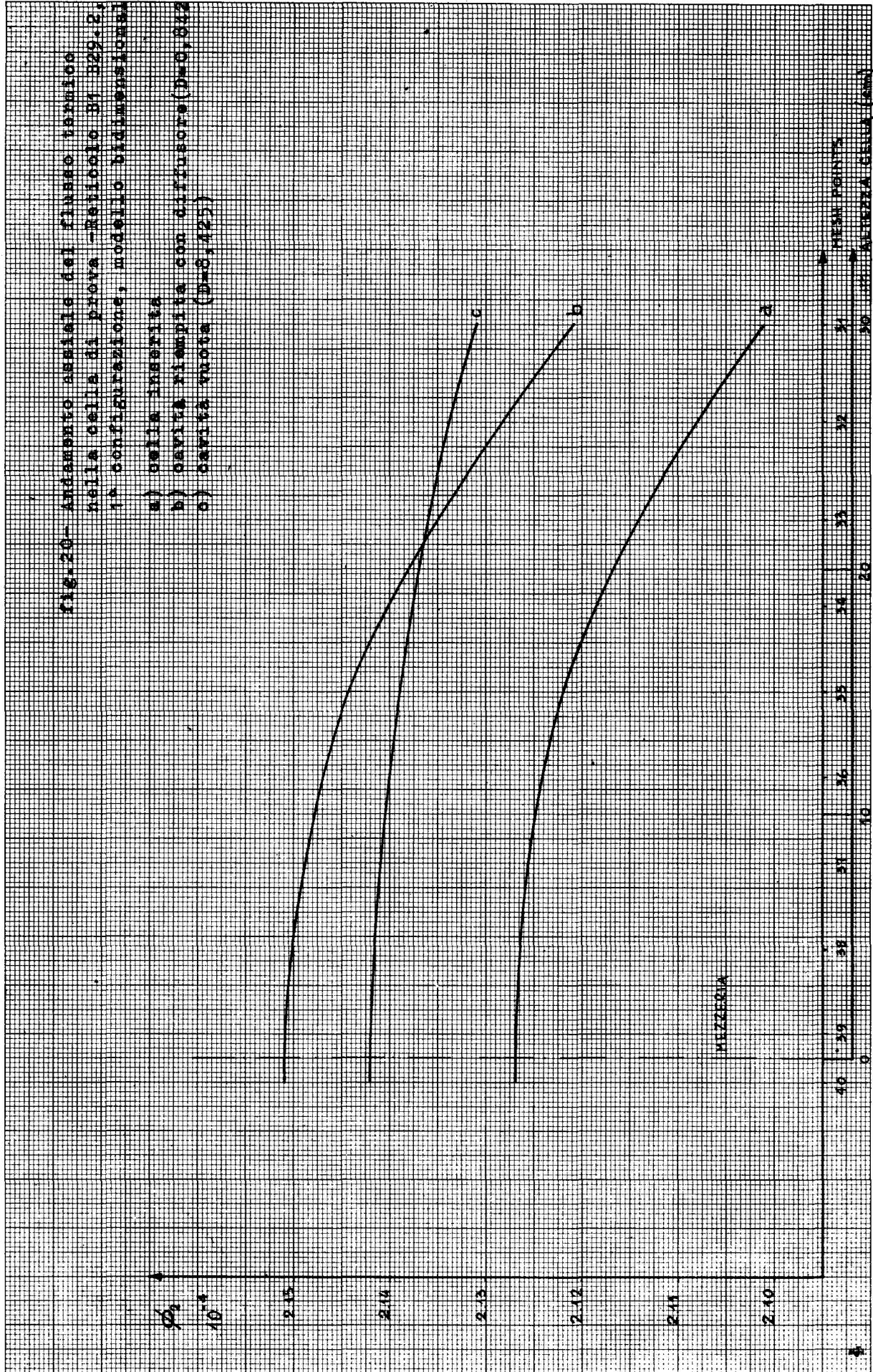
(ϕ_1/ϕ_2)
PUNTO T
CELLA INSERITA

(ϕ_1/ϕ_2) VALORI SINTETICI PRECISI DI B29.2 (TEORICI)



(ϕ_1/ϕ_2) PUNTO T - CELLA INSERITA

fig. 20- Andamento assiale del flusso termico
 nella cella di prova - Refettorio 31 329.2,
 in configurazione, modello bidimensionale.
 a) cella inserita
 b) cavità riempita con diffusore (D=0,0125)
 c) cavità vuota (D=0,125)



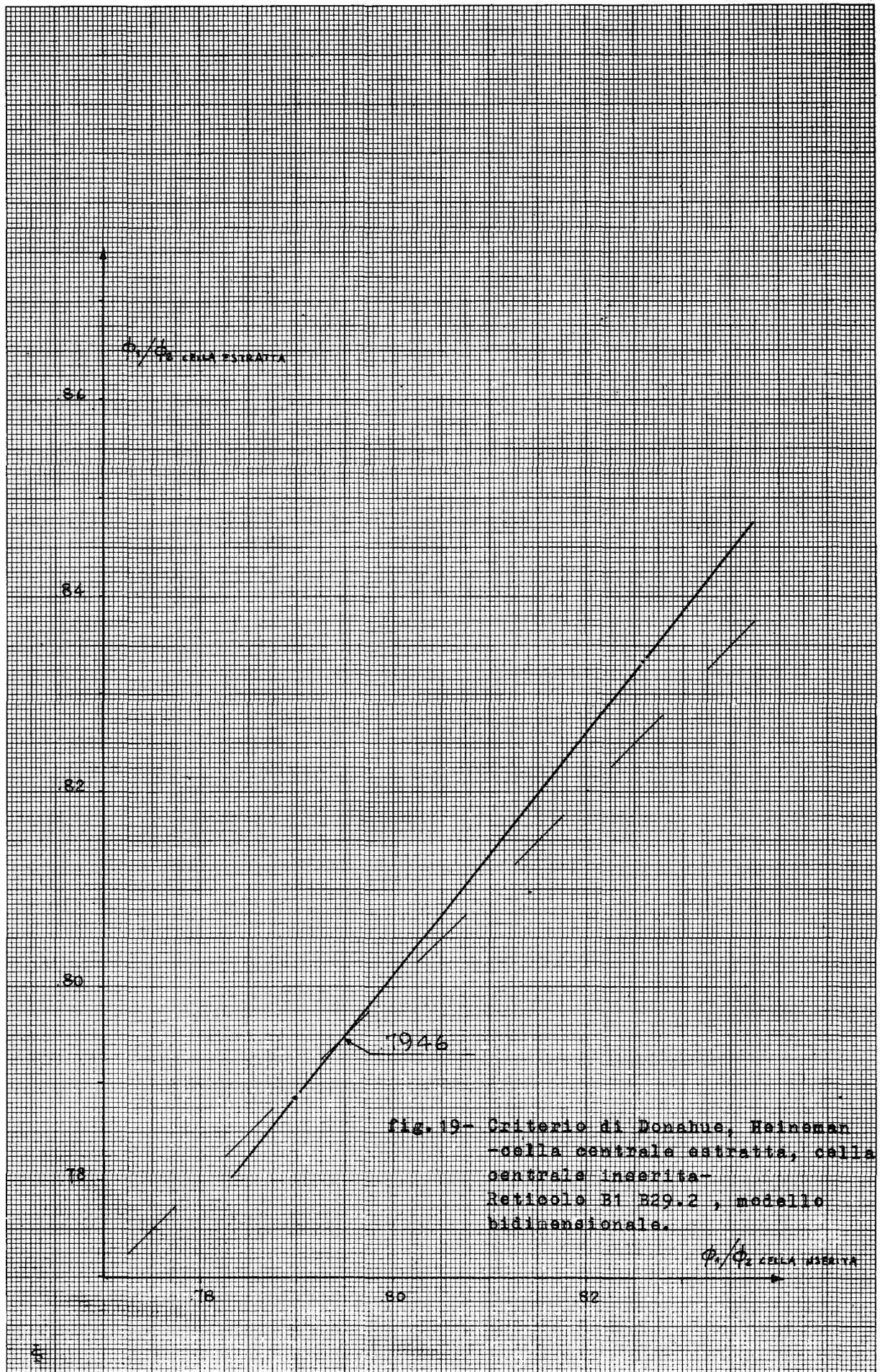
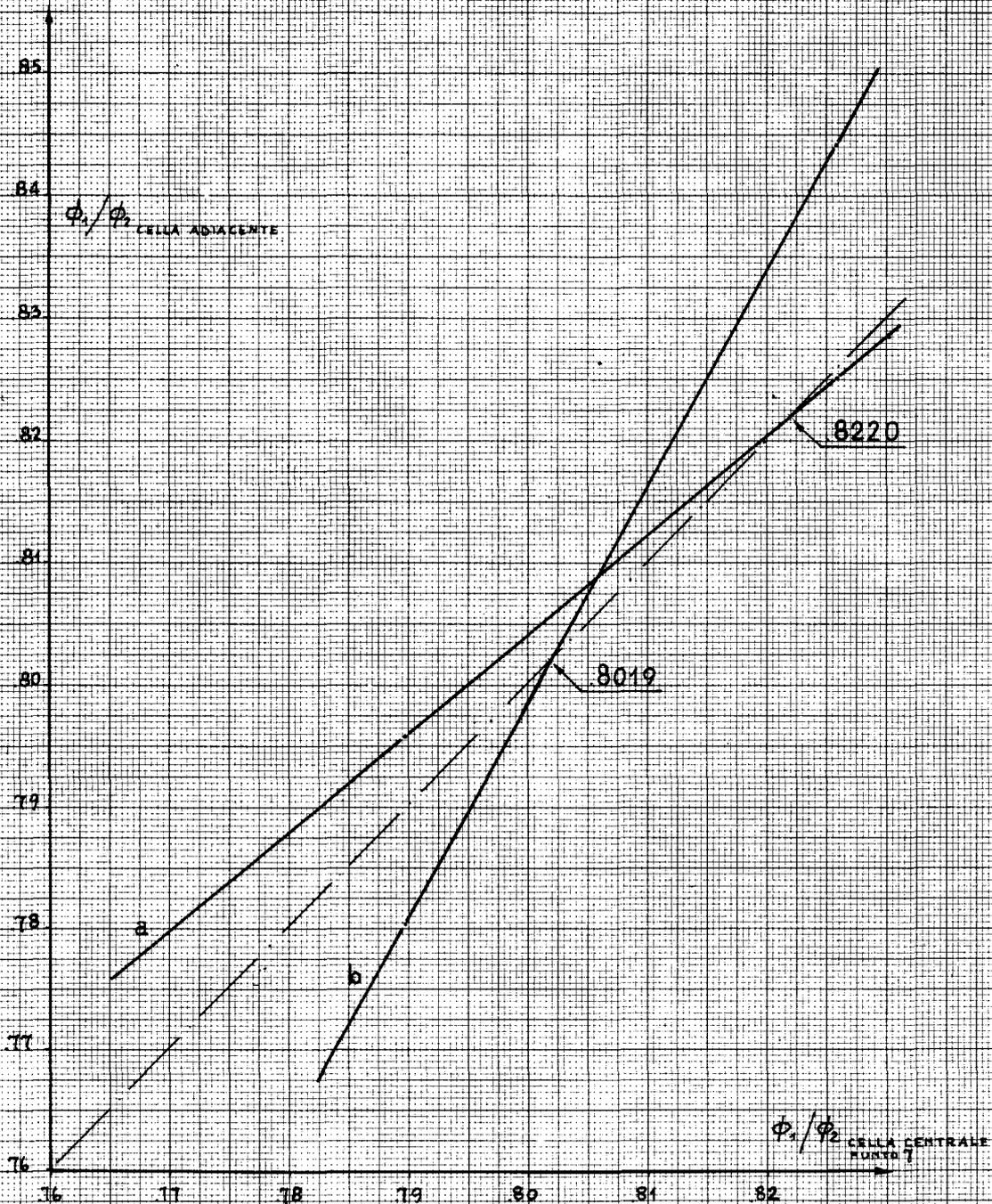
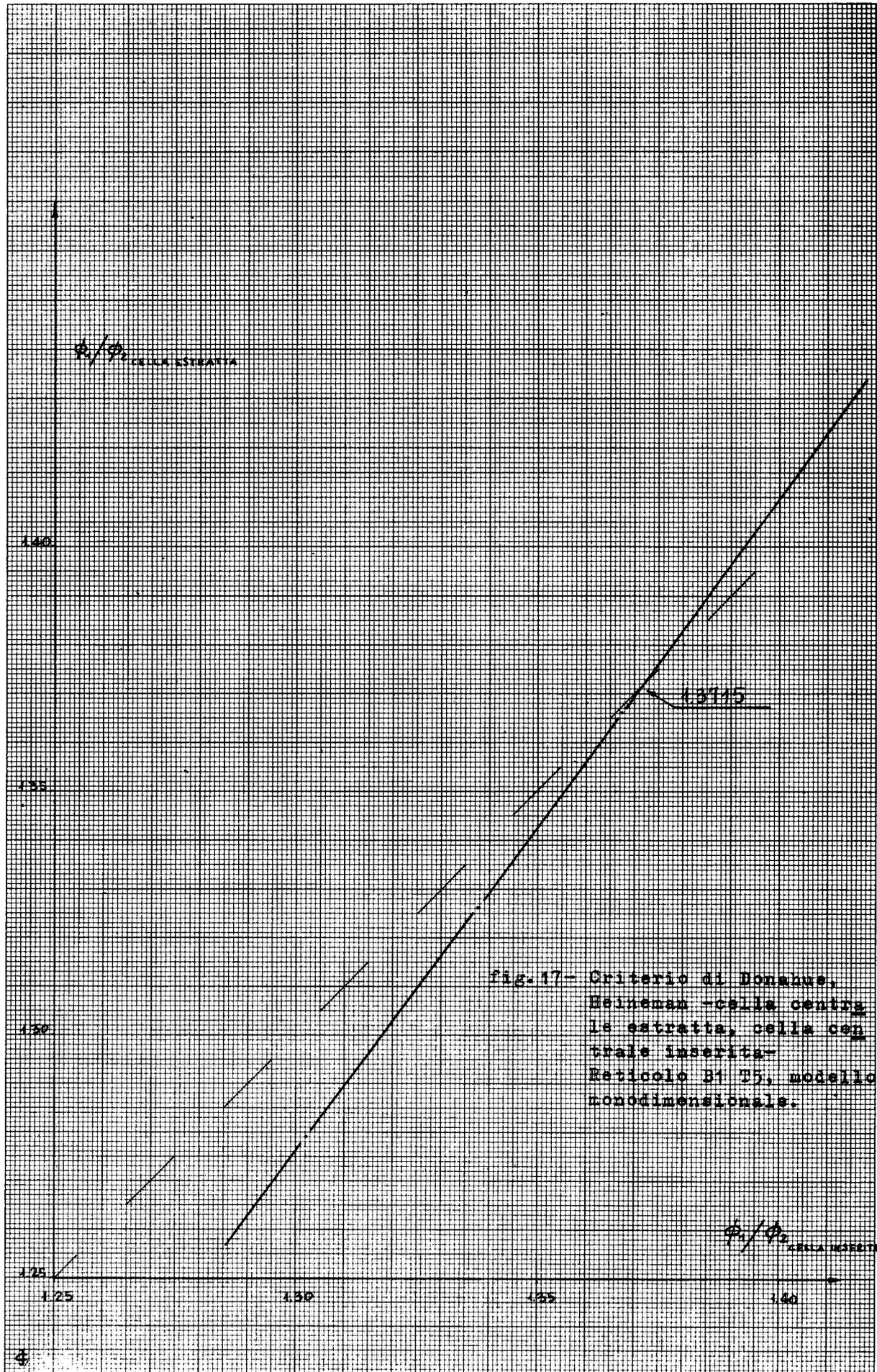


fig. 18- Criterio di Donahue, Heinsman
 -cella centrale, cella adiacente-
 Reticolo B1 B29.2, modello bidimensionale

- a) periferia-centro cella di prova
- b) periferia cella di prova-buffer interno





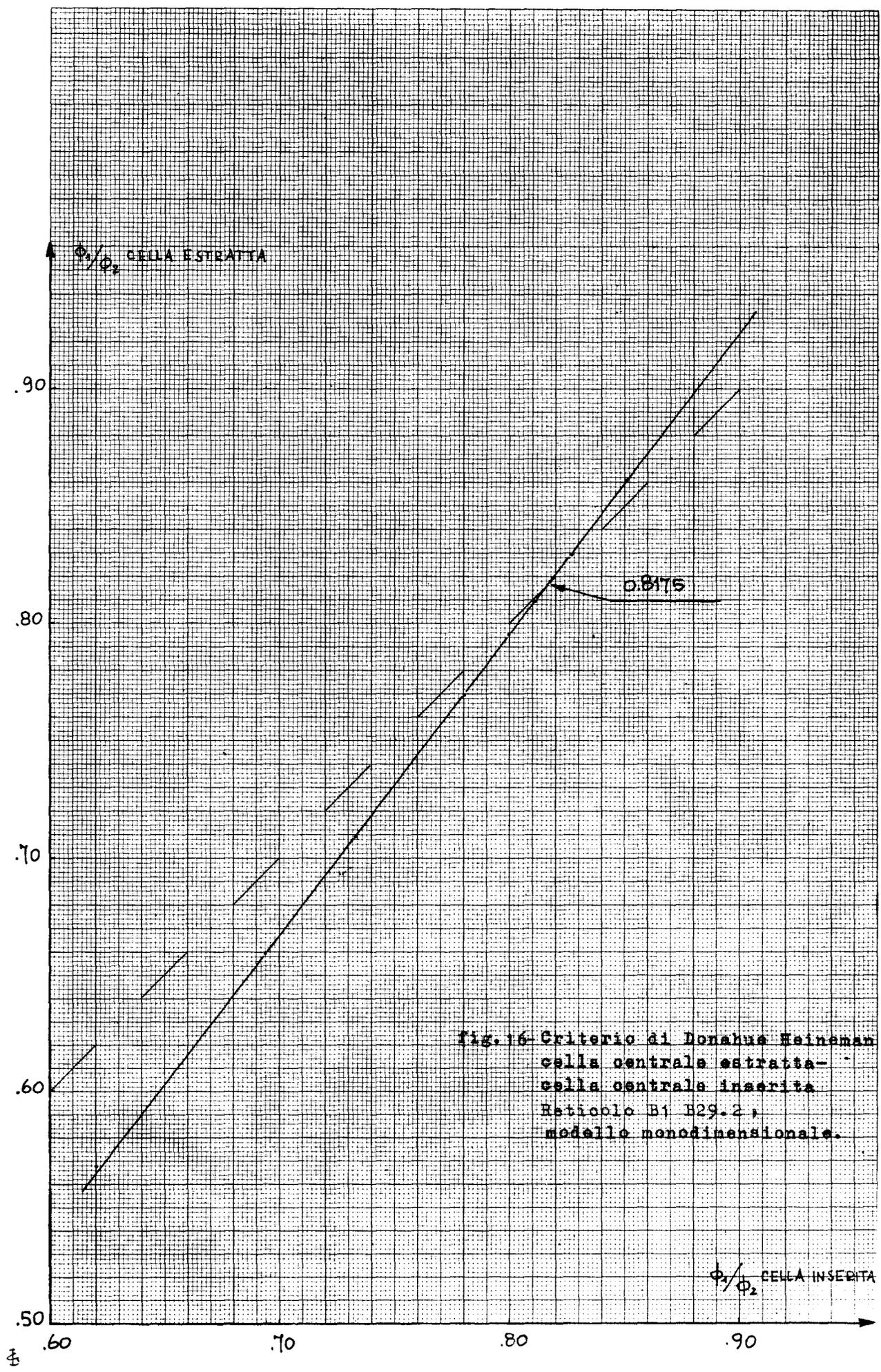


Fig. 16 Criterio di Donahue Heineman
 cella centrale estratta-
 cella centrale inserita
 Reticolo B1 B29.2,
 modello monodimensionale.

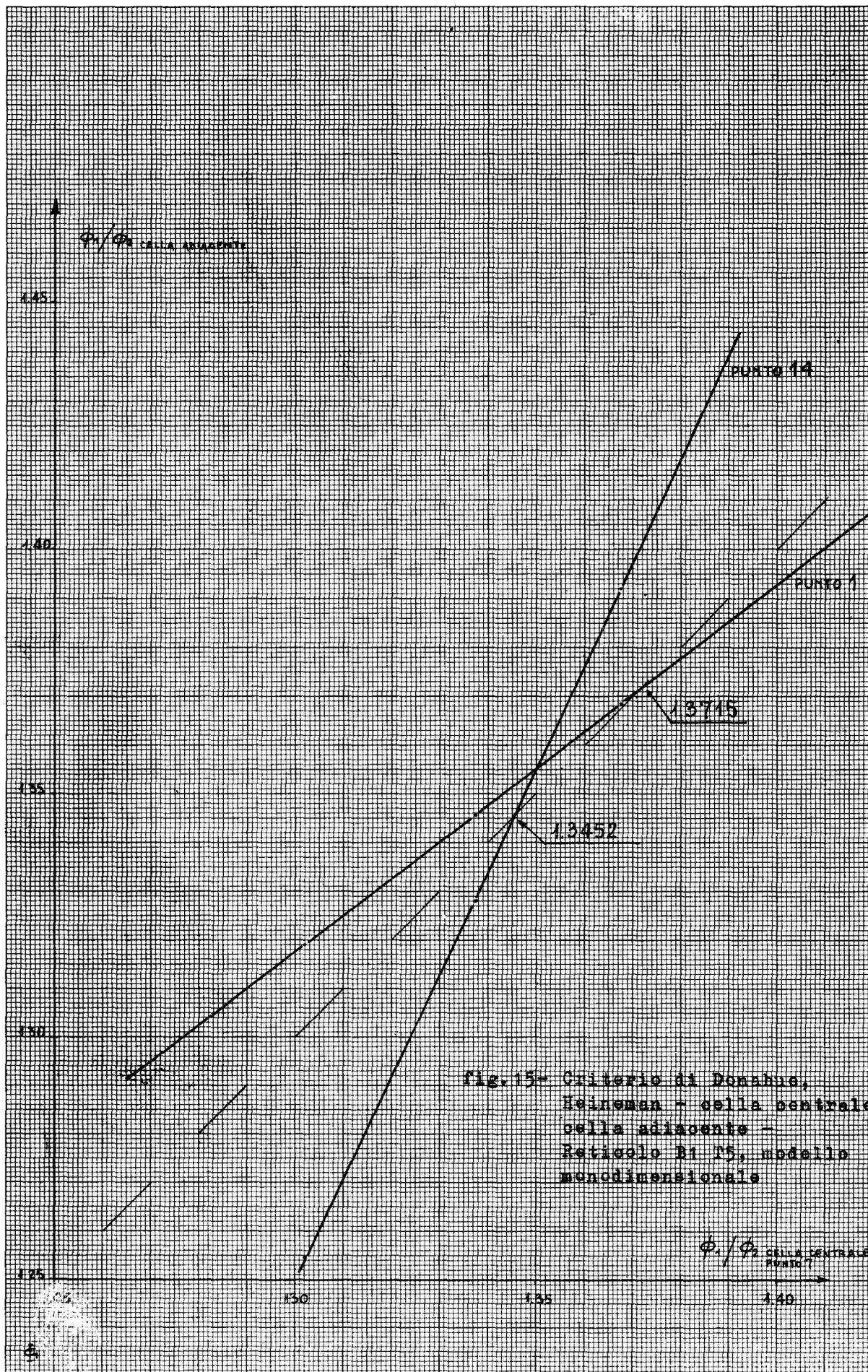
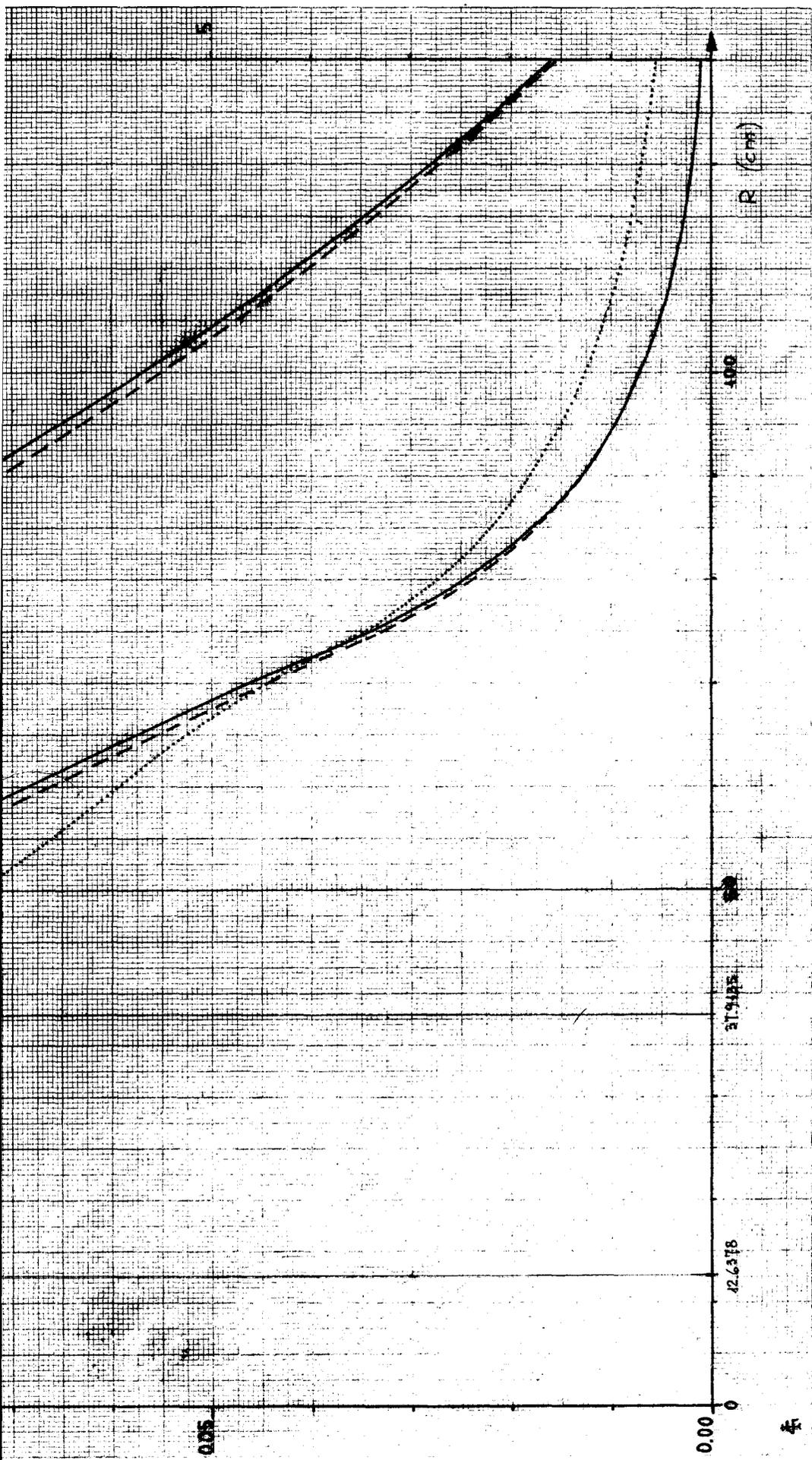
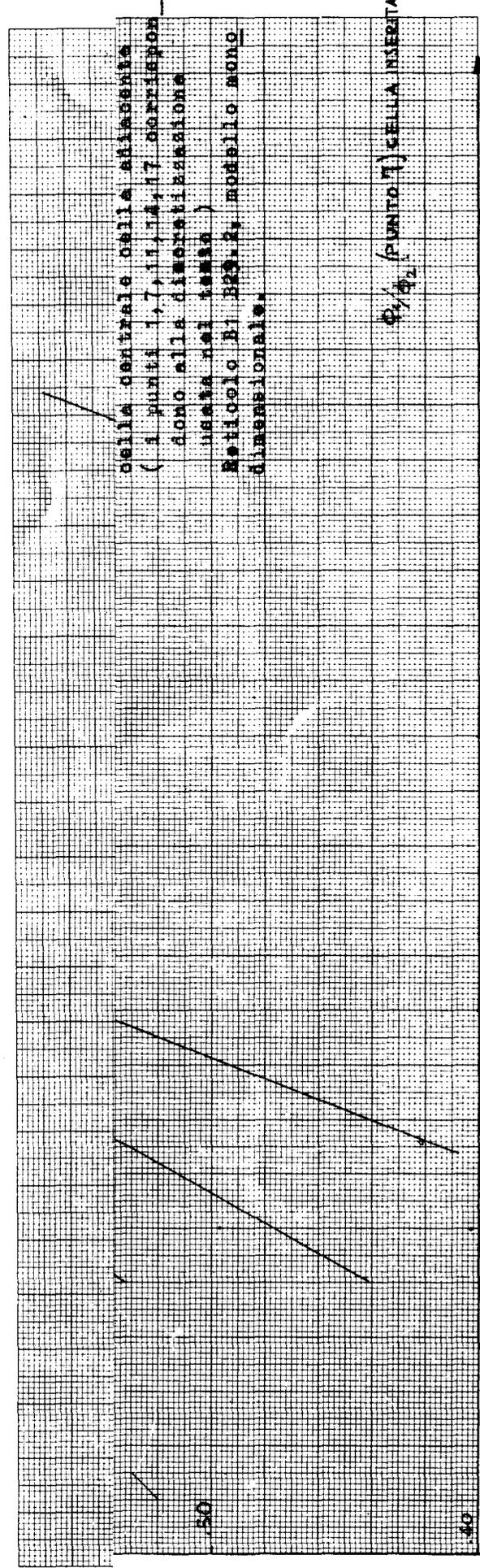


fig. 15- Criterio di Donahue,
 Heineman - cella centrale
 cella adiacente -
 Reticolo B1 T5, modello
 monodimensionale





della centrale della adiabata
 (i punti 1, 7, 11, 14, 17 corrispondono
 alla discretizzazione usata nel tema)
 Reticolo di B20.2, modello mono
 dimensionale.

Φ_1/Φ_2 (PUNTO 7) CELLA INSERITA

.90

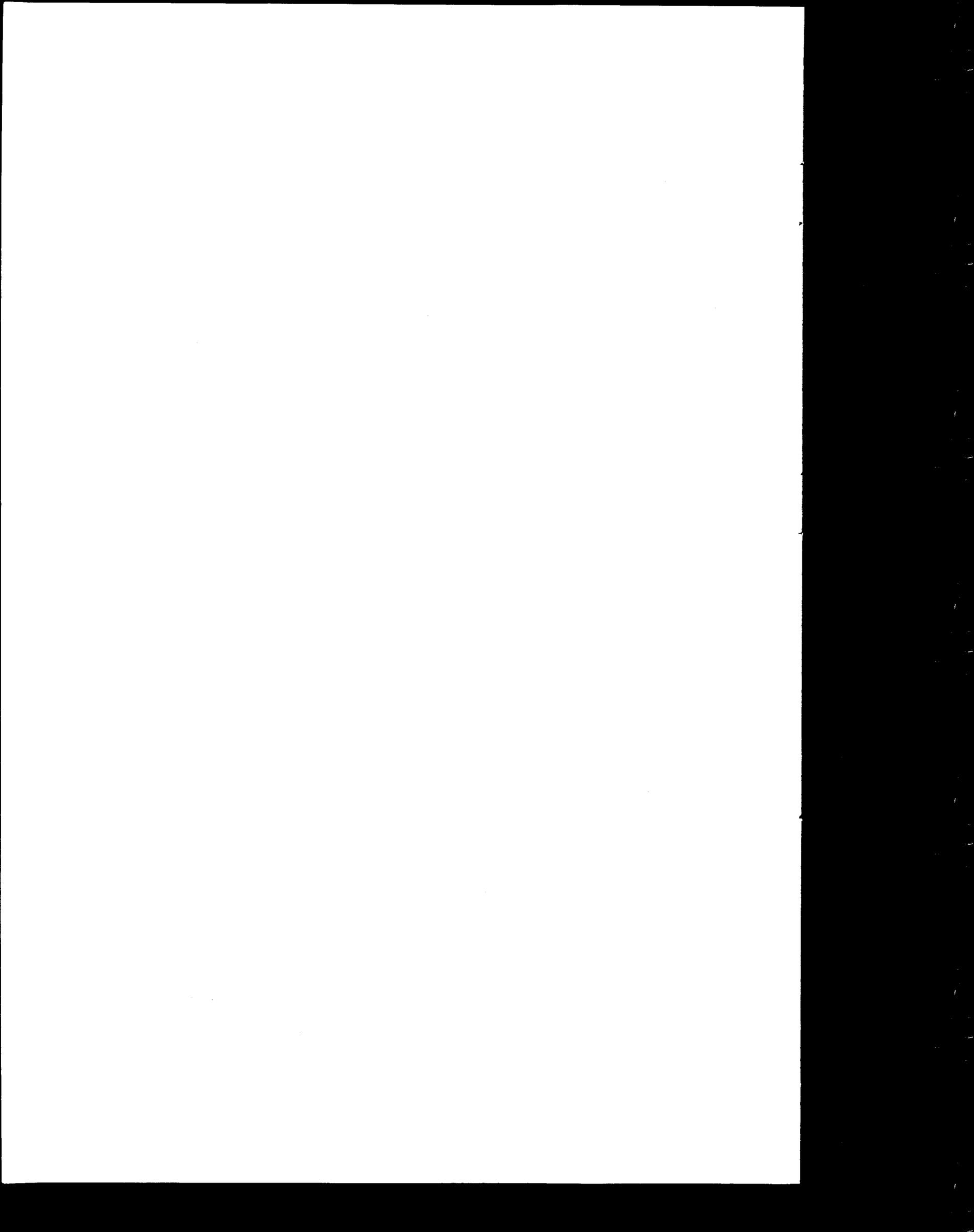
.80

.70

.60

.50

z



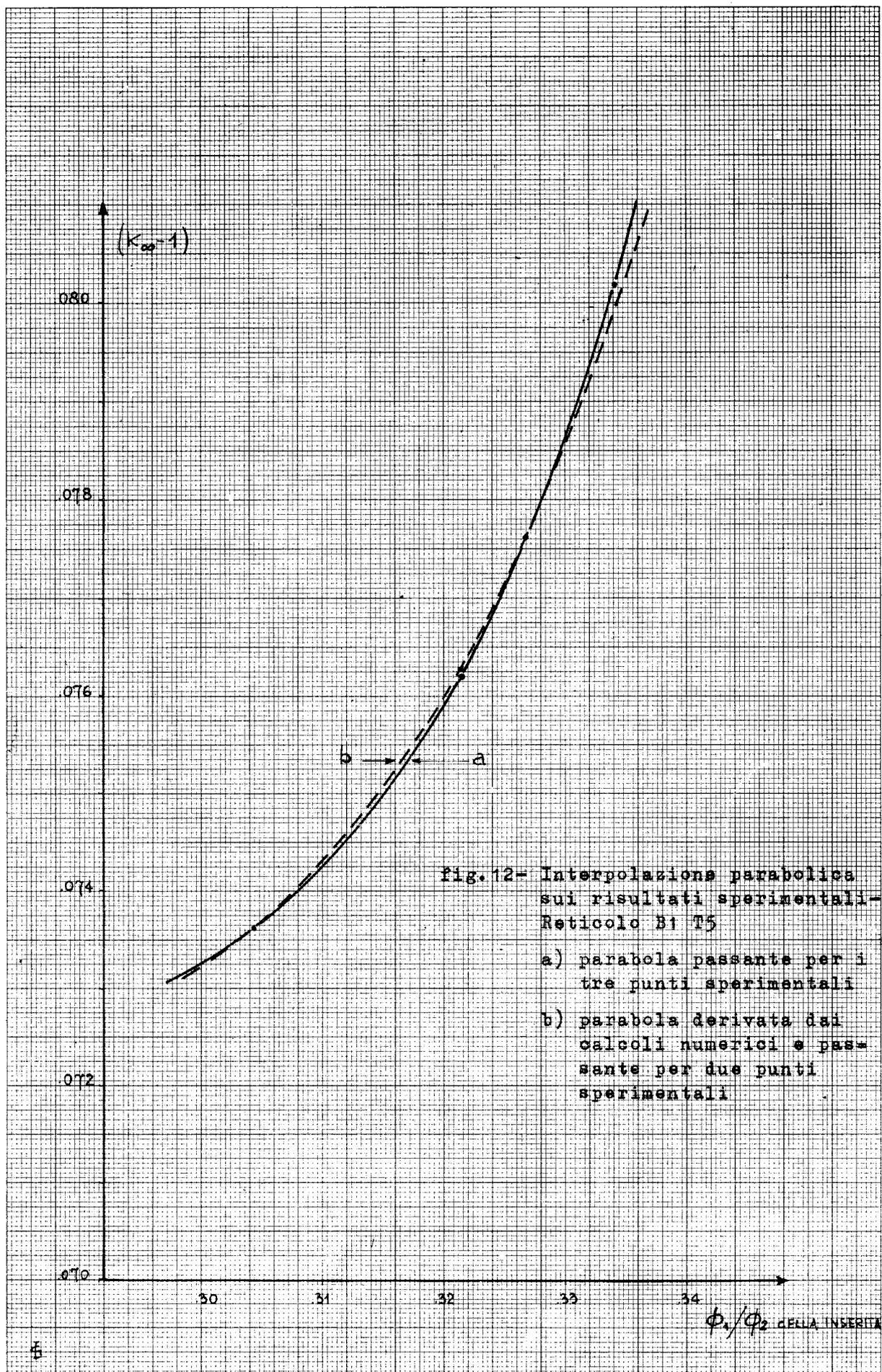


fig.12- Interpolazione parabolica sui risultati sperimentali- Reticolo B1 T5

- a) parabola passante per i tre punti sperimentali
- b) parabola derivata dai calcoli numerici e passante per due punti sperimentali

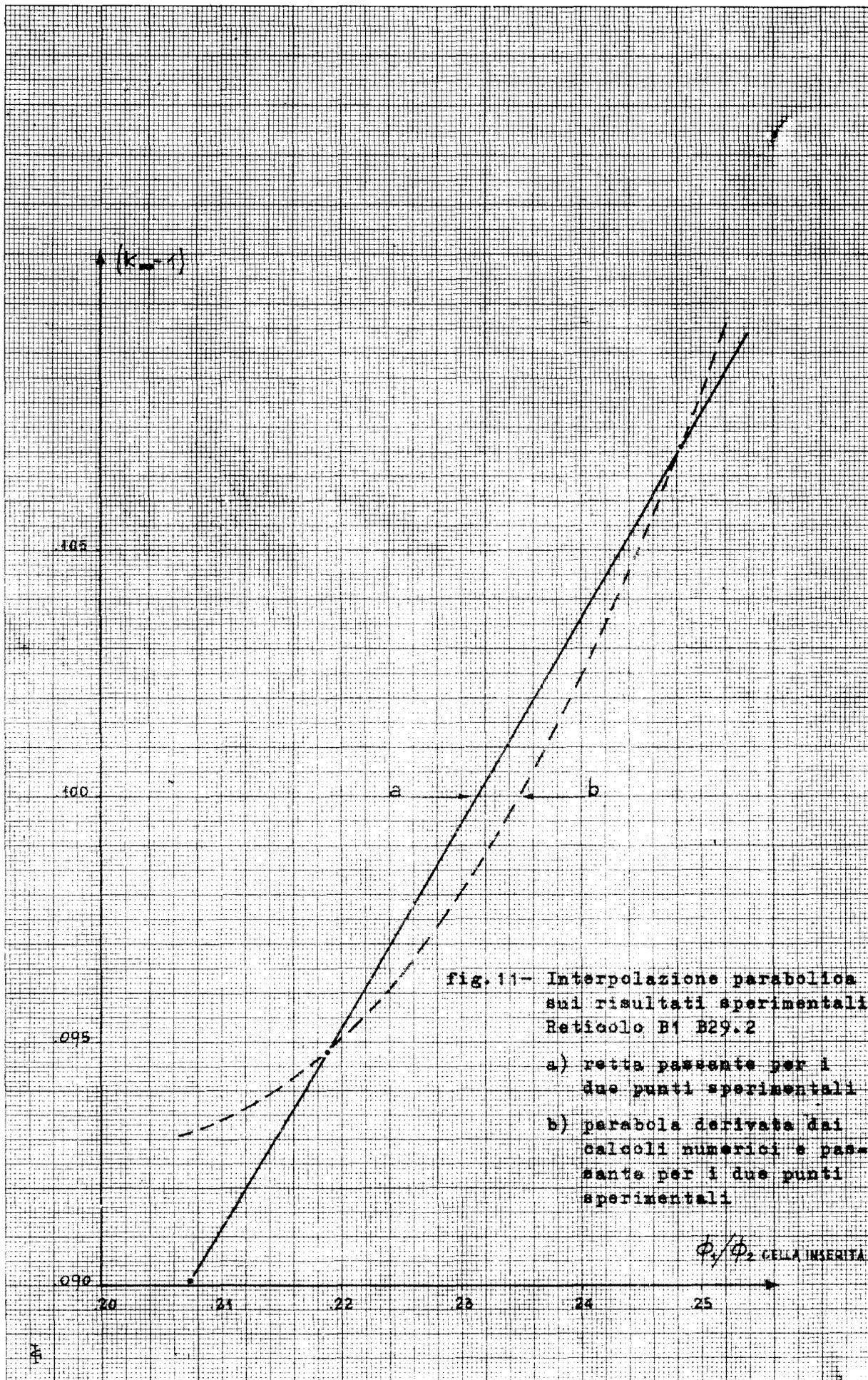
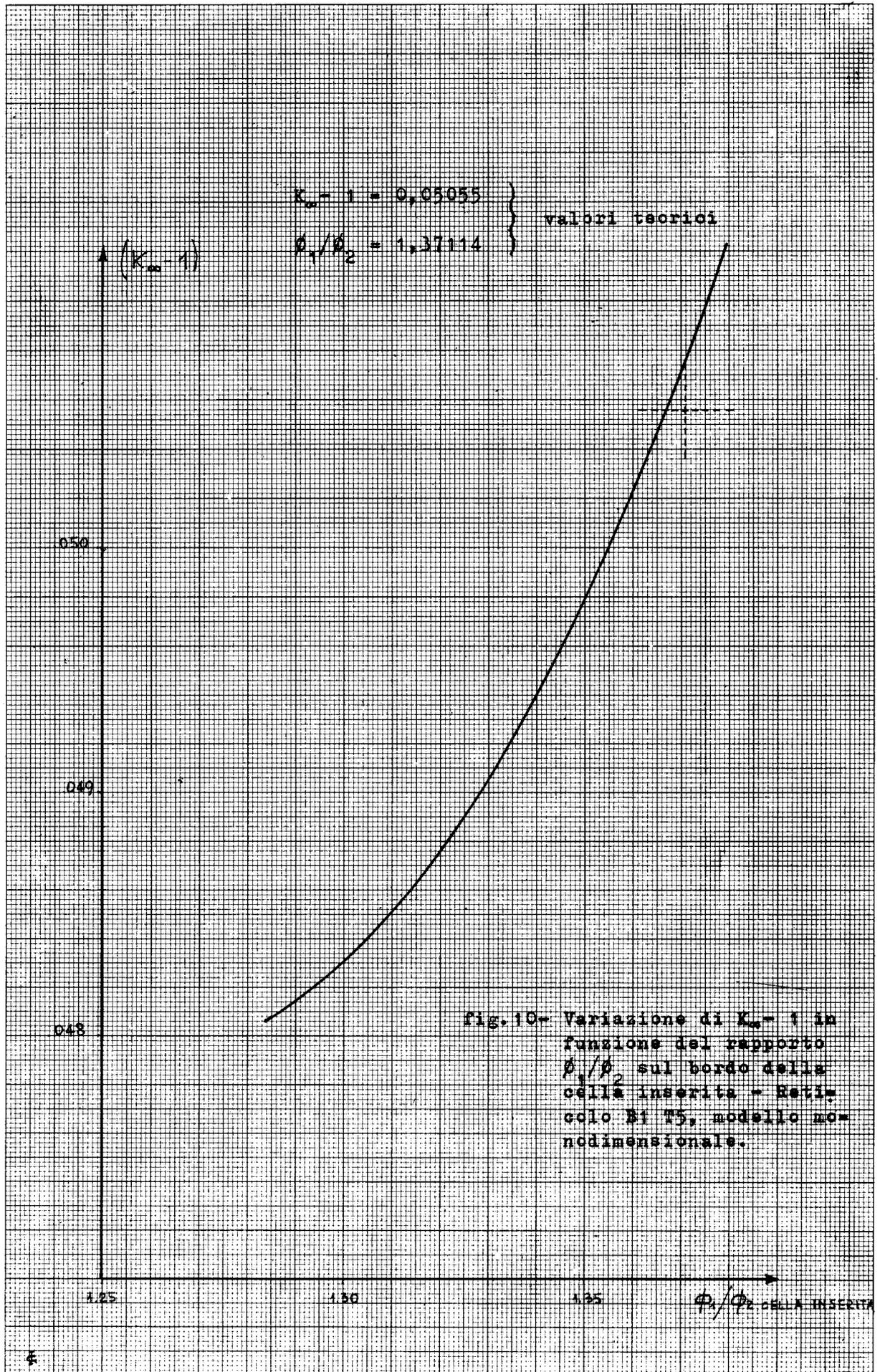


fig. 11- Interpolazione parabolica sui risultati sperimentali- Reticolo B1 B29.2

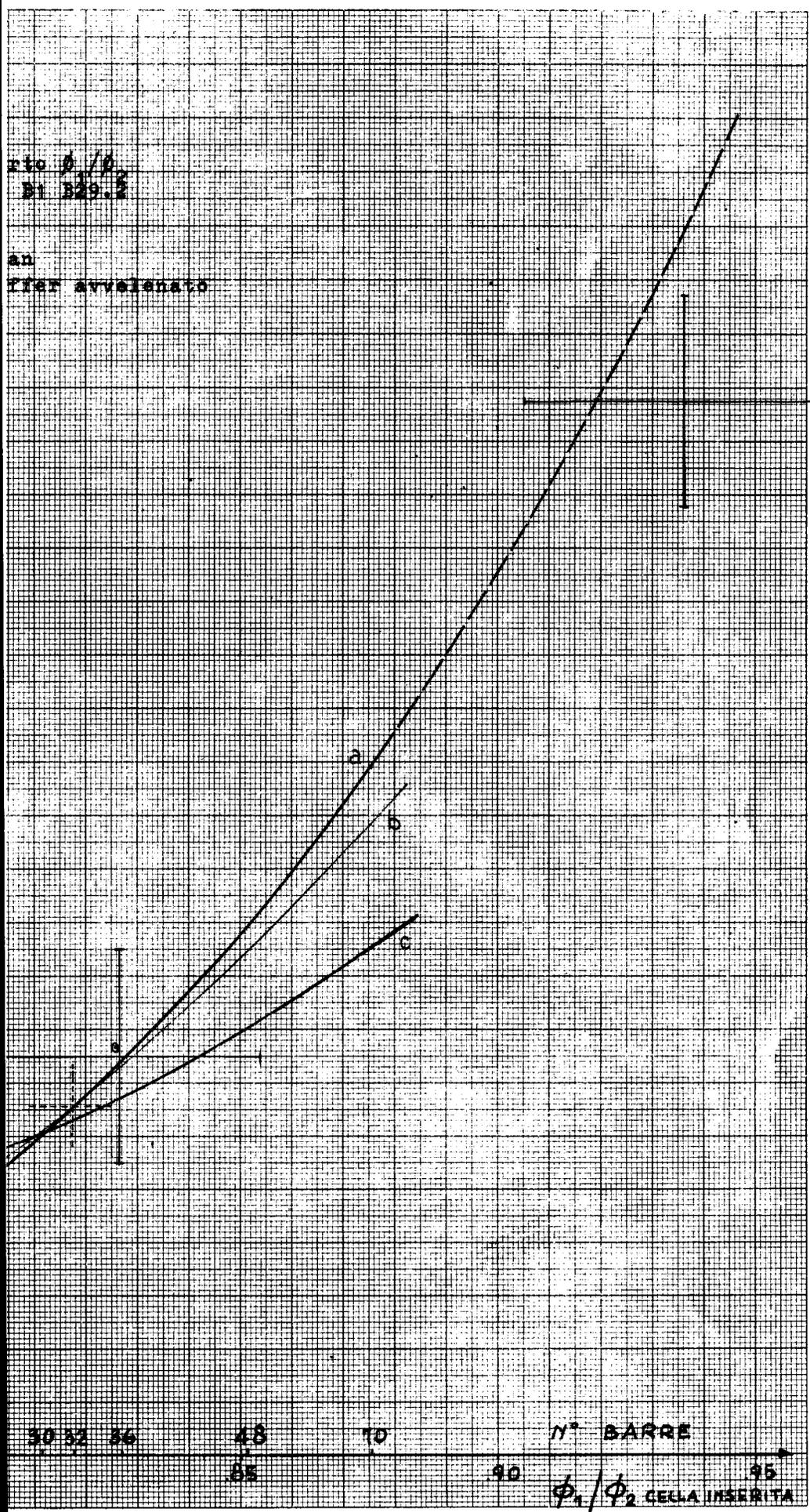
- a) retta passante per i due punti sperimentali
- b) parabola derivata dai calcoli numerici e passante per i due punti sperimentali

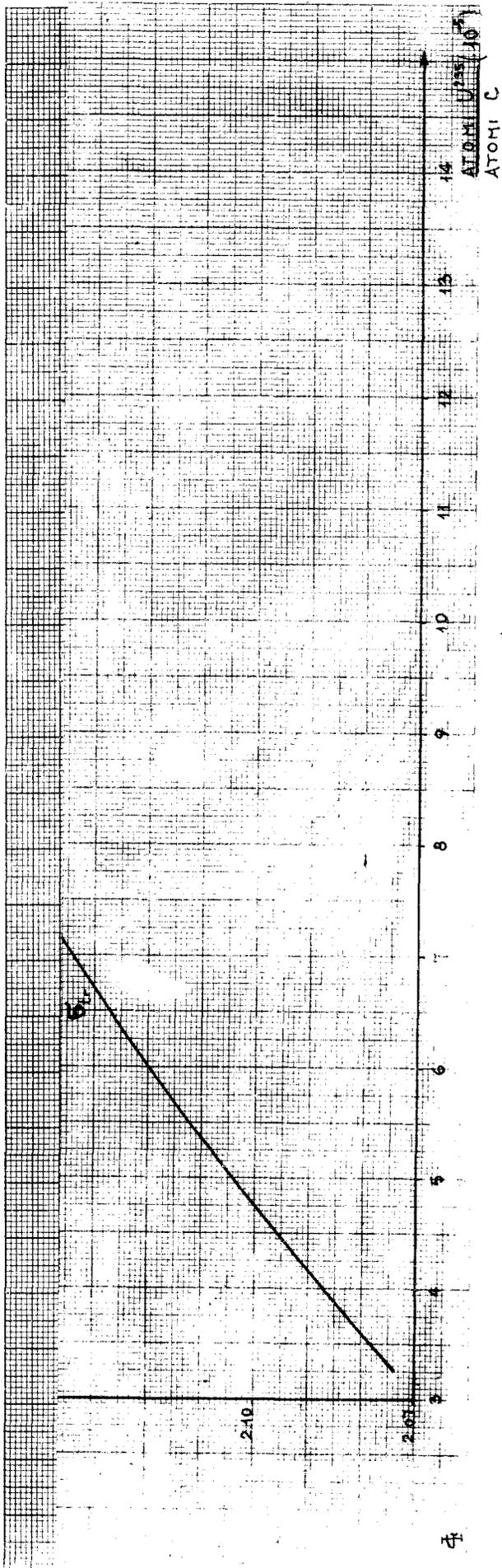
ϕ_1/ϕ_2 CELLA INVERITA



rio ϕ_1/ϕ_2
Di 329.2

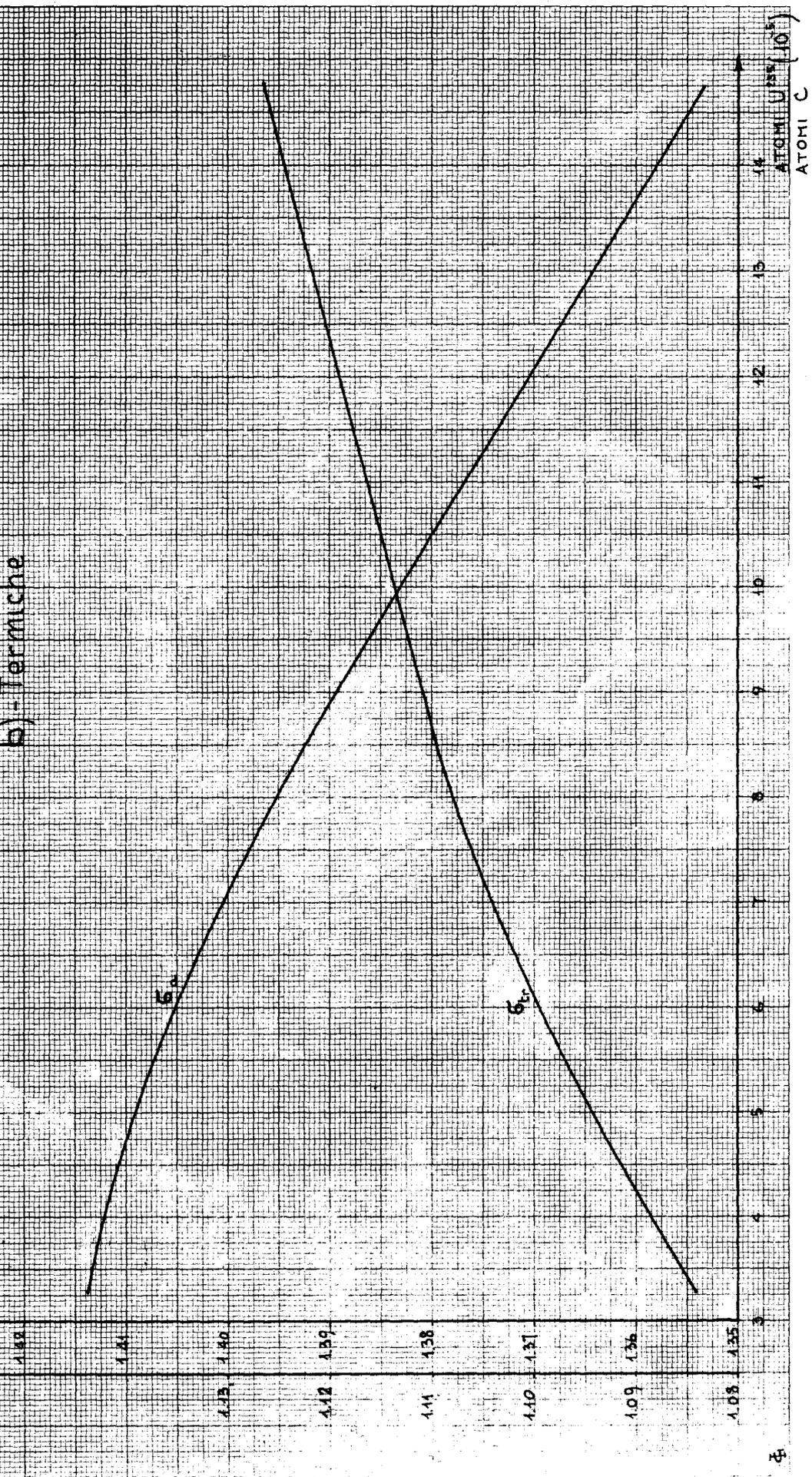
an
rier avvelenato

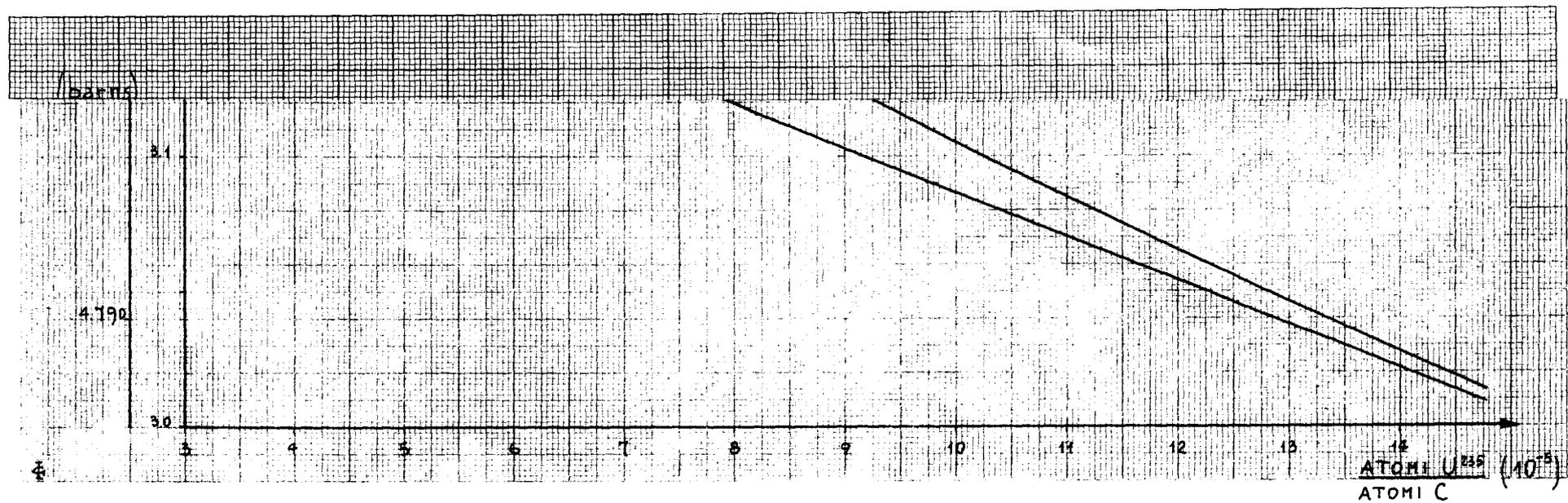




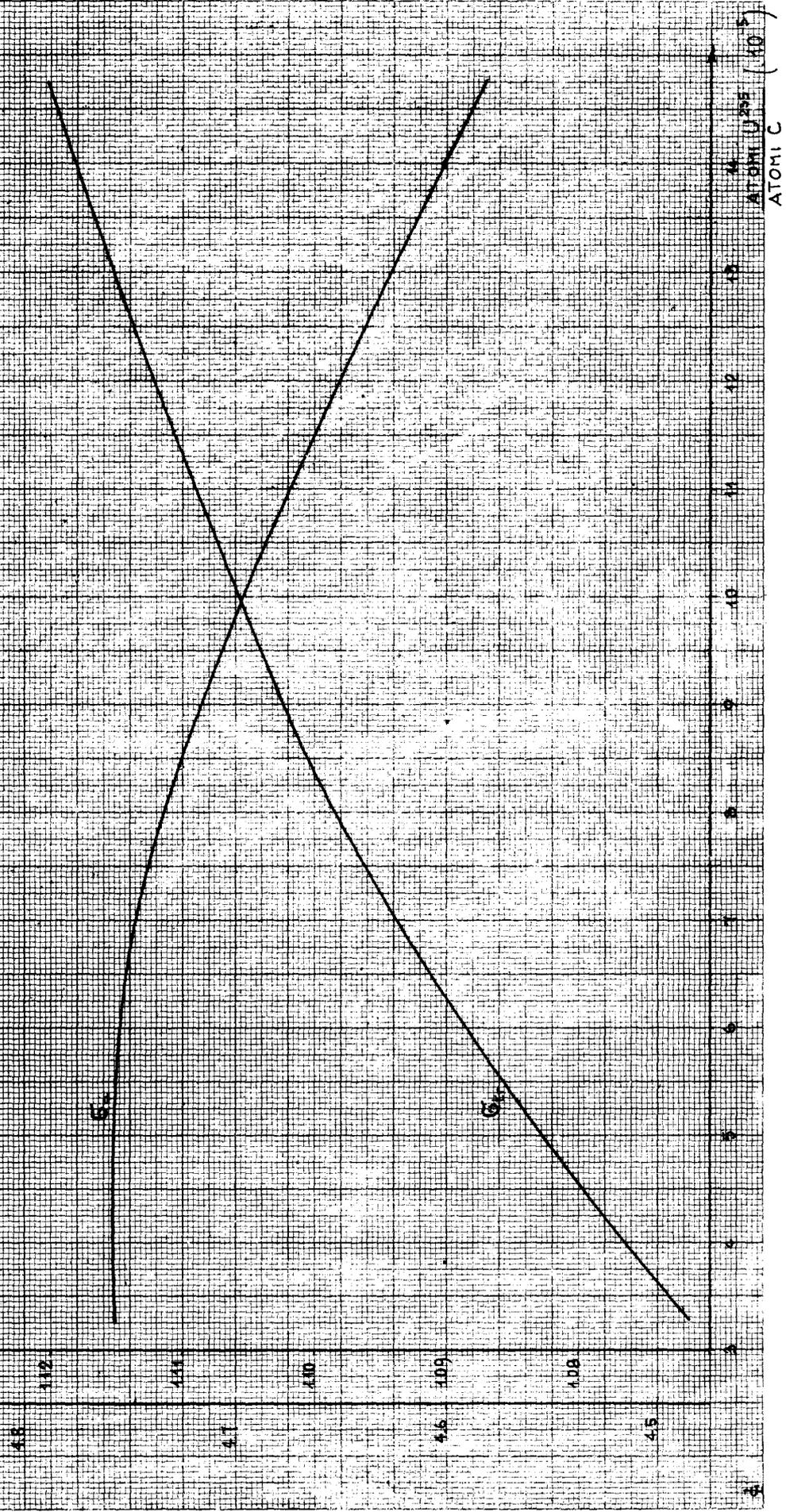
4

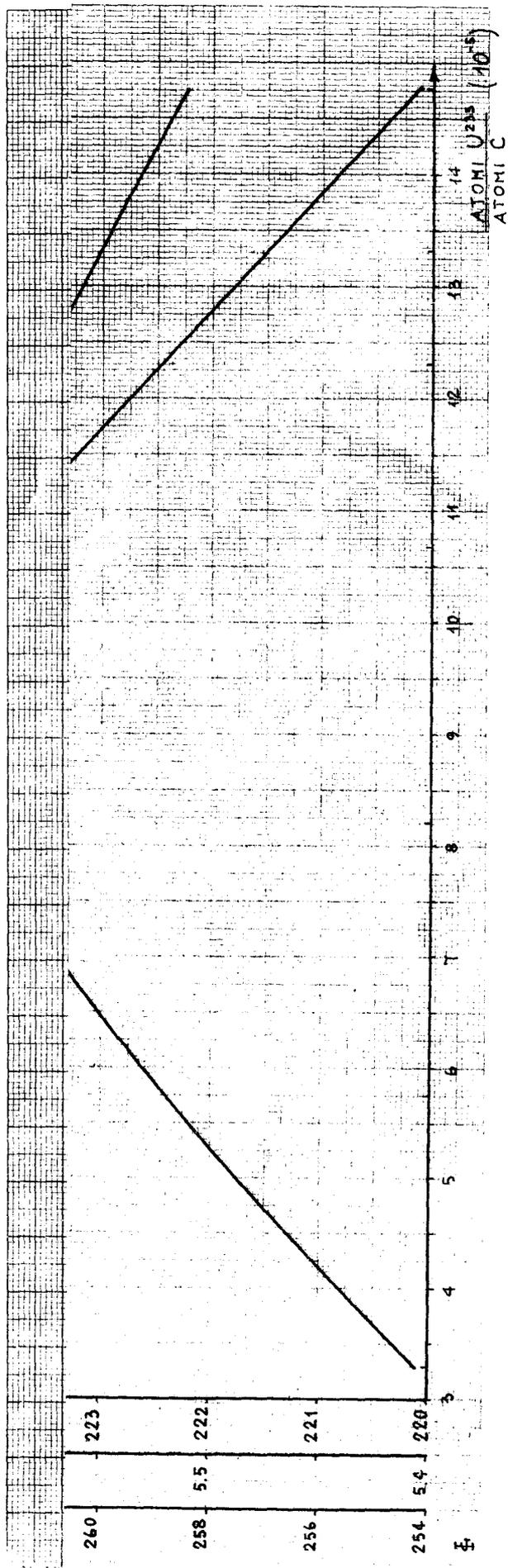
b) - Termiche





b) - Termična





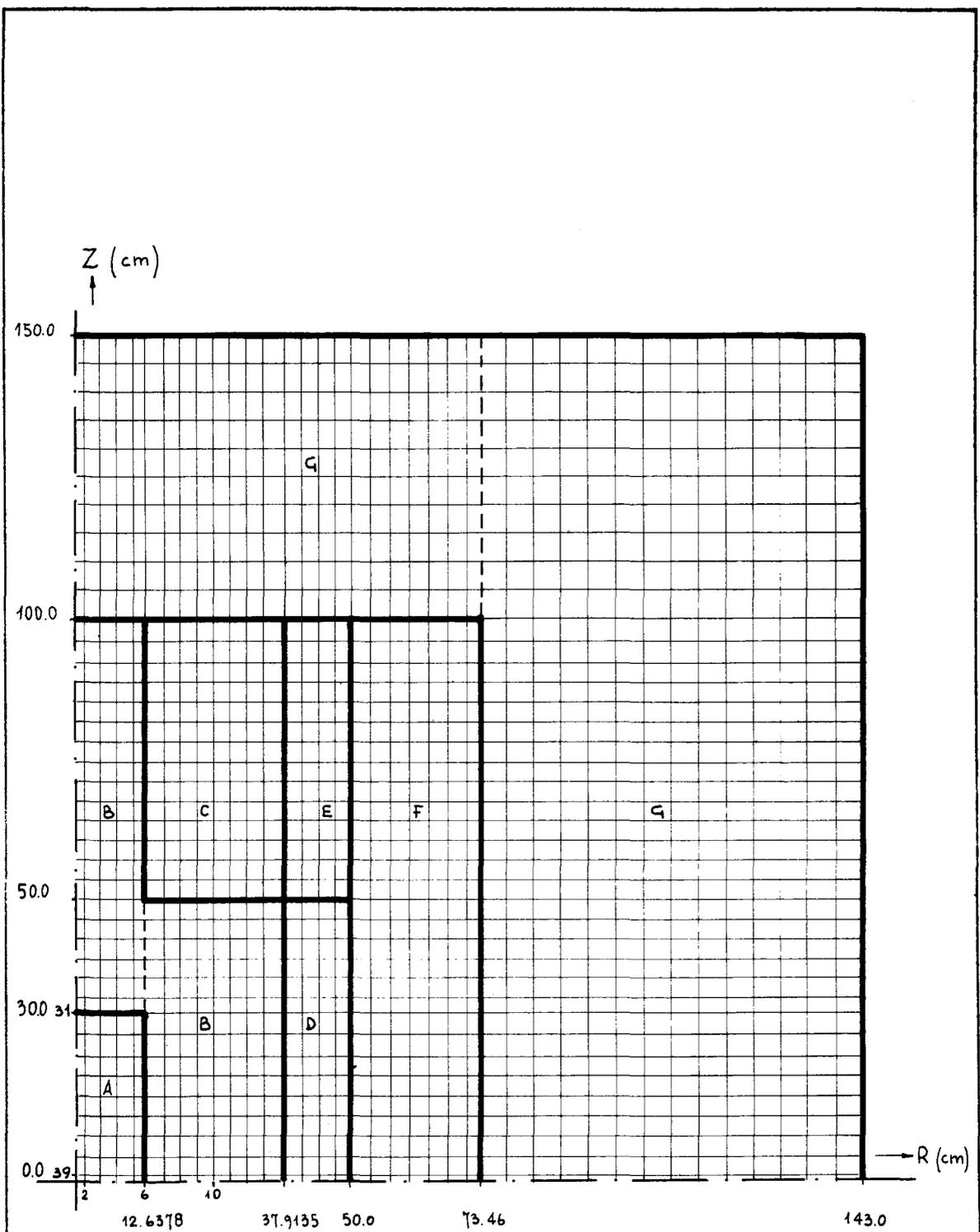
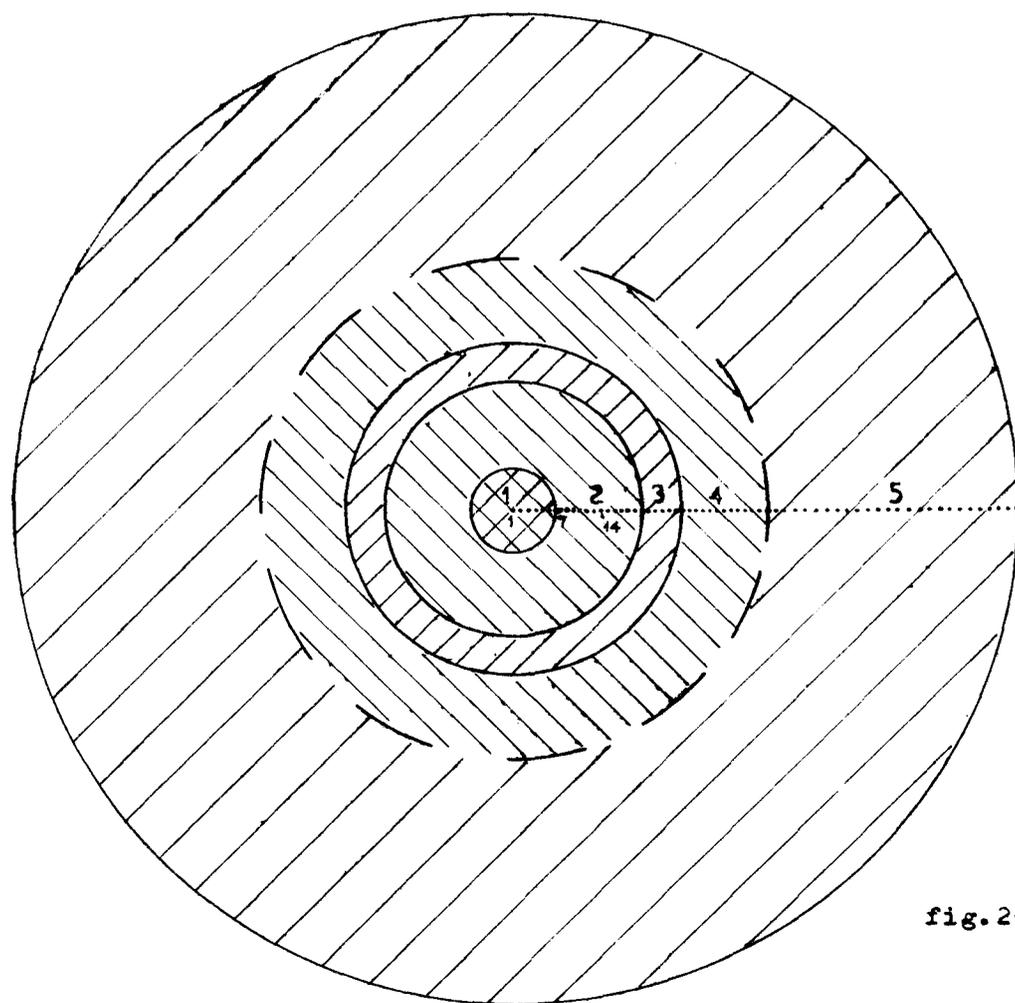


fig.3- Schematizzazione del reattore RB1 per calcoli bidimensionali.



- | | |
|--------------------|-----------------|
| 1 - cella prova | $r = 12.64$ cm. |
| 2 - buffer interno | $r = 37.91$ |
| 3 - buffer esterno | $r = 50$ |
| 4 - driver | $r =$ variabile |
| 5 - riflettore | $r = 143$ |

fig.2- Sezione orizzontale del reattore RB1- Schematizzazione per i calcoli.

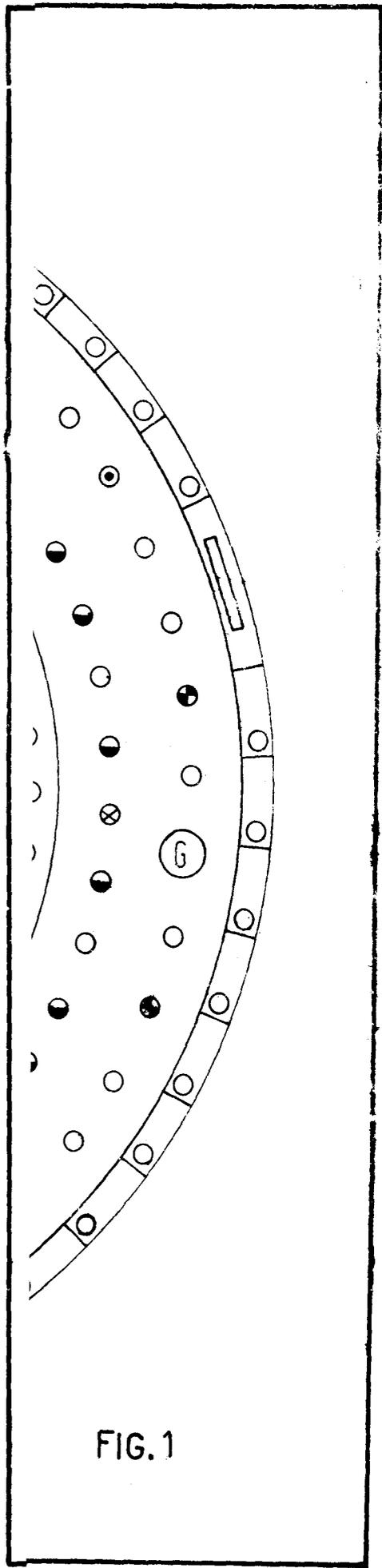


FIG. 1