

## Développement d'un ensemble de mesure de flux de sources neutroniques

Différents secteurs d'activités génèrent des neutrons nécessitant la mise en place d'une radioprotection associée : l'industrie nucléaire au travers des centrales, des installations de production et de retraitement du combustible ou des centres de recherches associés, mais également le secteur militaire, les laboratoires de recherche et le domaine médical (dans l'environnement des accélérateurs) ainsi que le spatial. Le nombre de personnes ainsi surveillées est de l'ordre de 20 000 en France et de 60 000 en Europe. Il est donc d'autant plus important de bien étalonner les sources neutroniques qui serviront au test de fonctionnement des dispositifs neutrons utilisés dans leur domaine respectif.

### 1. Introduction

Pour l'étalonnage de routine de dispositif de mesure des neutrons ayant déjà été soumis à l'ensemble des tests de fonctionnement sous rayonnement lors de leur conception ou homologation, les sources radioactives  $^{241}\text{AmBe}$  (neutrons produits par réaction  $(\alpha, n)$ ) et  $^{252}\text{Cf}$  (neutrons issus de la fission spontanée du radionucléide) sont recommandées par la norme ISO 8529-1 car l'énergie moyenne des neutrons (4,2 MeV pour AmBe et 2,1 MeV pour  $^{252}\text{Cf}$ ) est du même ordre que celle de neutrons produits par réaction de fission dans le cycle du combustible. Ces sources nécessitent d'être étalonnées et d'être reliées à la chaîne de métrologie nationale. Dans le domaine des rayonnements ionisants, le Laboratoire national Henri Becquerel (LNHB), est le laboratoire responsable de la métrologie fondamentale ainsi que des références primaires et de transfert. Bien que le laboratoire n'ait pas d'activité en dosimétrie des neutrons (la responsabilité pour les grandeurs dosimétriques neutroniques a été transférée à l'IRSN, laboratoire associé au LNE), il est en charge des référence du flux total d'émission des sources neutronique, c'est-à-dire sous un angle solide de  $4\pi$  sr.

La méthode de mesure de référence du flux d'émission sous  $4\pi$  sr de sources neutroniques se fonde sur la technique du bain de manganèse : la source est immergée dans une solution de sulfate de manganèse et les neutrons émis sont capturés par les constituants du bain. Dans une configuration classique (sphère de bain de manganèse de 1 m de diamètre et solution concentrée), environ la moitié de ces neutrons conduisent à la création de  $^{56}\text{Mn}$  par réaction  $(n, \gamma)$  sur  $^{55}\text{Mn}$ . Le radionucléide  $^{56}\text{Mn}$  a une période radioactive d'environ 2,6 heures et le bain de manganèse atteint son activité de saturation en  $^{56}\text{Mn}$  quand le nombre d'atomes radioactifs créés par unité de temps devient égal au nombre d'atomes se désintégrant pendant ce même temps. Le flux d'émission de la source peut alors être déduit de l'activité en  $^{56}\text{Mn}$  de la solution à saturation, via une modélisation ad hoc des réactions nucléaires se produisant dans le bain. Ce type de dispositif de mesure existe dans un nombre limité de

laboratoires de métrologie nationaux (UK, USA, Brésil, Chine, Russie, Corée et République Tchèque) et est en cours de développement en Italie et en Espagne.

Cette méthode d'étalonnage est utilisée depuis environ 40 ans dans le laboratoire (avec des périodes d'interruption). Une jouvence de l'installation de mesure a été réalisée récemment afin d'améliorer le système de mesure et d'analyse associé tout en se conformant aux conditions de sécurité et de radioprotection en accord avec les réglementations actuelles.

Le dispositif de mesure d'activité de  $^{56}\text{Mn}$  initialement utilisé est indirect et repose sur une spectrométrie gamma réalisée par un scintillateur NaI(Tl) sur un récipient placé dans une boucle de mesure extérieure au bain. La mise en œuvre traditionnelle de cette méthode de mesure requiert l'étalonnage du bain de manganèse par une mesure d'activité hors ligne, nécessitant l'utilisation d'une source spécifique de haute activité de  $^{56}\text{Mn}$ . La production de cette source nécessite un haut flux neutronique et est généralement réalisée par irradiation de manganèse dans un réacteur nucléaire. Du fait de la courte période de  $^{56}\text{Mn}$  (2,6 h), cet étalonnage est très contraignant et n'est en pratique réalisable que si l'installation de mesure n'est pas trop éloignée du réacteur de production. L'étude qui a été entreprise est de remplacer cet étalonnage du bain par une mesure primaire en ligne de l'activité en  $^{56}\text{Mn}$ , fondée sur une technique de mesure par coïncidences Cerenkov-gamma. L'objectif visé est d'une part de pouvoir se passer d'une opération d'étalonnage hors ligne qui nécessite de nombreuses opérations (notamment dilutions et mesures hors ligne), d'autre part d'utiliser une méthode primaire de mesure permettant d'avoir accès directement à l'activité massique du bain en  $^{56}\text{Mn}$  avec une bonne incertitude.

## 2. Principe de la mesure

### 1. Mesurande

Le mesurande est le débit d'émission neutronique sous  $4\pi$  sr. Les sources concernées sont soit des sources scellées contenant un mélange d'un radionucléide se désintégrant par transition alpha (américium, plutonium ou radium par exemple) et d'un corps présentant une bonne section efficace pour la réaction  $(\alpha, n)$  (béryllium ou carbone par exemple), soit des sources scellées de fission ( $^{252}\text{Cf}$  par exemple), soit des sources mixtes utilisant un radionucléide se désintégrant par transition alpha ou par fission spontanée, associée à une cible en béryllium (sources  $^{244}\text{Cm-Be}$  par exemple). La gamme de mesure visée s'étend de quelques  $10^4$  à quelques  $10^9 \text{ s}^{-1}$ , la limite basse étant déterminée par la limite de détection de  $^{56}\text{Mn}$  dans la boucle de mesure et la limite haute par des critères de radioprotection. Cette gamme couvre en pratique la plupart des besoins des utilisateurs et peut être étendue, si besoin, à des taux d'émission plus faibles en utilisant une mesure secondaire réalisée avec des compteurs à  $^3\text{He}$  dans un bain de thermalisation des neutrons.

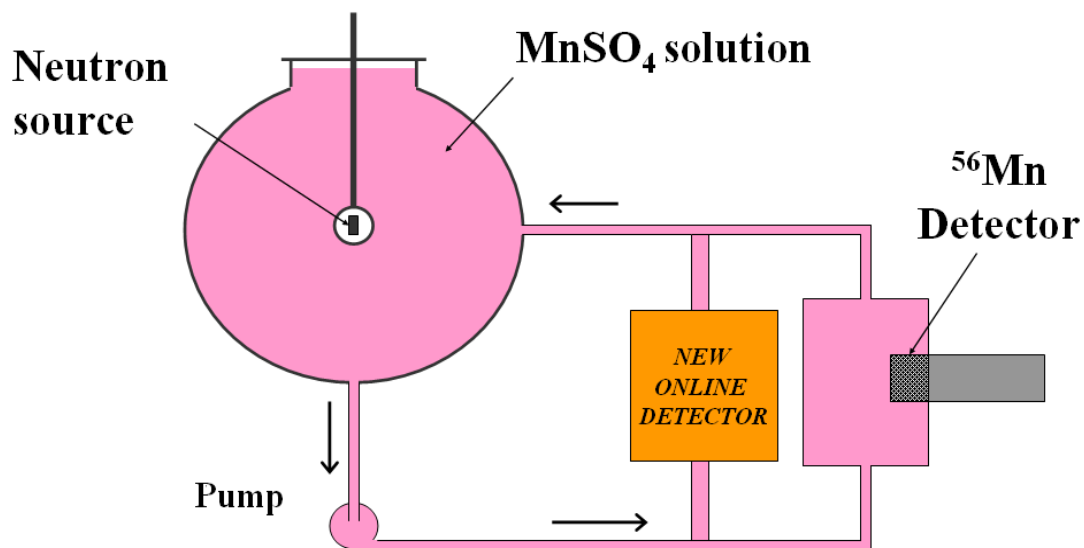


Figure 1 Schéma du bain de manganèse

## 2. Méthode de mesure

Une solution d'environ 500 L de sulfate de manganèse concentré est placée dans une sphère en acier inoxydable d'un diamètre de 1 m. La source neutronique à mesurer est placée au centre de cette sphère, dans un conteneur étanche. La sphère est reliée à une boucle de mesure comportant en série une pompe de circulation et un réservoir en matière plastique comportant un détecteur gamma (NaI(Tl)). Le nouveau dispositif de mesure en ligne de l'activité du bain se place également dans cette boucle (figure 1).

Les neutrons produits par la source interagissent avec le bain par des réactions nucléaires ou des diffusions, ou s'en échappent. Les principales réactions se font avec l'hydrogène et le manganèse, et dans une moindre mesure avec l'oxygène et le soufre. L'ordre de grandeur des proportions de ces différentes réactions apparaît sur la figure 2, dans l'exemple d'une source  $^{241}\text{Am-Be}$ .

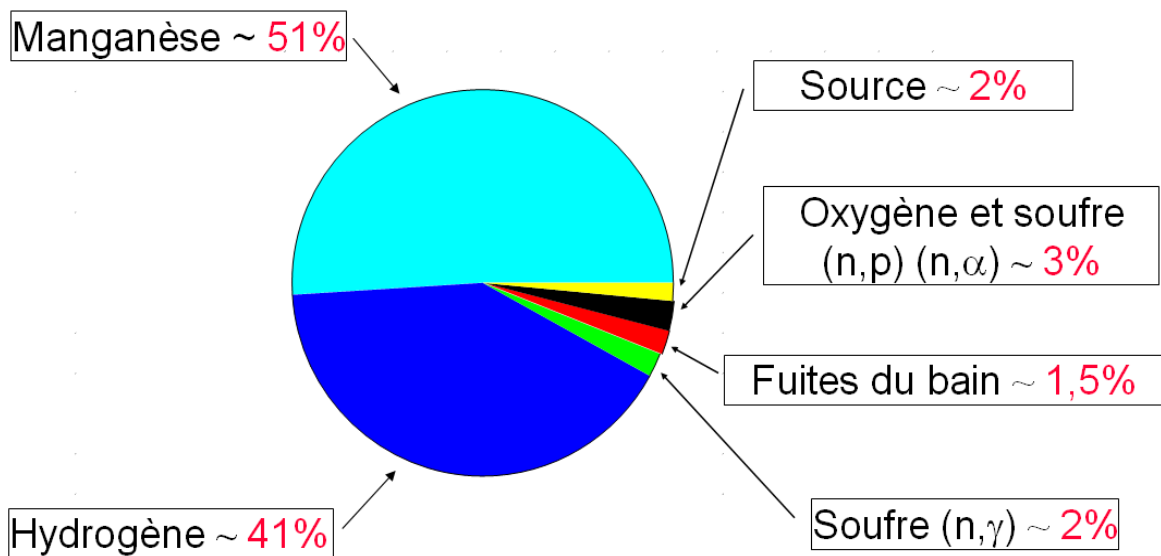


Figure 2 Proportions des réactions entre les neutrons et les constituants du bain (source Am-Be)

Pour ce qui concerne la réaction de capture radiative sur le manganèse, sa cinétique conduit à une augmentation de l'activité moyenne du bain en  $^{56}\text{Mn}$  dès l'introduction de la source, jusqu'à l'obtention d'une activité de saturation quand le nombre d'atomes de  $^{56}\text{Mn}$  créés par unité de temps est égal au nombre d'atomes de  $^{56}\text{Mn}$  se désintégrant pendant le même temps (figure 3).

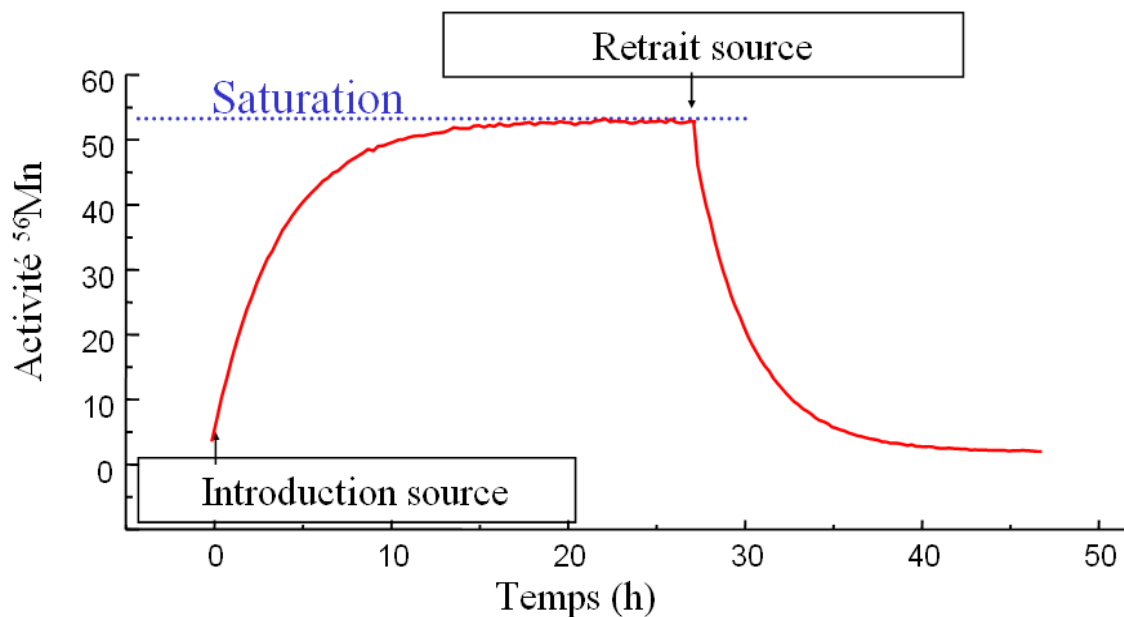


Figure 3 Evolution de l'activité en  $^{56}\text{Mn}$  du bain avec le temps

Une modélisation des interactions entre les neutrons, le bain de manganèse et ses structures associées (porte-source, sphère en acier inoxydable, environnement...) permet de relier le nombre de neutrons émis à la quantité de  $^{56}\text{Mn}$  produit et pour l'état stationnaire atteint à la saturation, de relier l'activité du bain en  $^{56}\text{Mn}$  au taux d'émission de la source sous  $4\pi$  sr. Cette modélisation qui se faisait anciennement grâce à un code de calcul déterministe de transport de neutrons (code CEA APOLLO), se fait maintenant à l'aide de programmes stochastiques d'interaction rayonnement-matière tels que FLUKA, MCNPX ou GEANT4. Cette modélisation nécessite d'une part une bonne connaissance du spectre en énergie des neutrons émis par la source d'autre part les valeurs des sections efficaces de réaction des neutrons avec les composants du bain et des structures associées.

### 3. Etalonnage du bain

L'étalonnage du bain est effectué par ajout d'une quantité connue de  $^{56}\text{Mn}$  étalonnée par une mesure d'activité primaire hors-ligne, utilisant la technique des coïncidences bêta-gamma. En effet, le  $^{56}\text{Mn}$  étant un radionucléide se désintégrant par transitions bêta vers des niveaux excités de  $^{56}\text{Fe}$ , il est assez classique de mesurer l'activité en détectant ces deux rayonnements en coïncidences. Des sources solides sont réalisées par dépôt de quelques gouttes de  $\text{MnSO}_4$  activé, sur un film mince placé dans un compteur proportionnel  $4\pi$ . Le comptage en voie gamma est effectué à l'aide d'un détecteur NaI(Tl) ou germanium. Cette technique permet d'obtenir des activités massiques en  $^{56}\text{Mn}$  avec une incertitude-type relative de quelques  $10^{-3}$ .

Cette méthode d'étalonnage a peu évolué au cours du temps et peut se résumer en cinq étapes, comme suit :

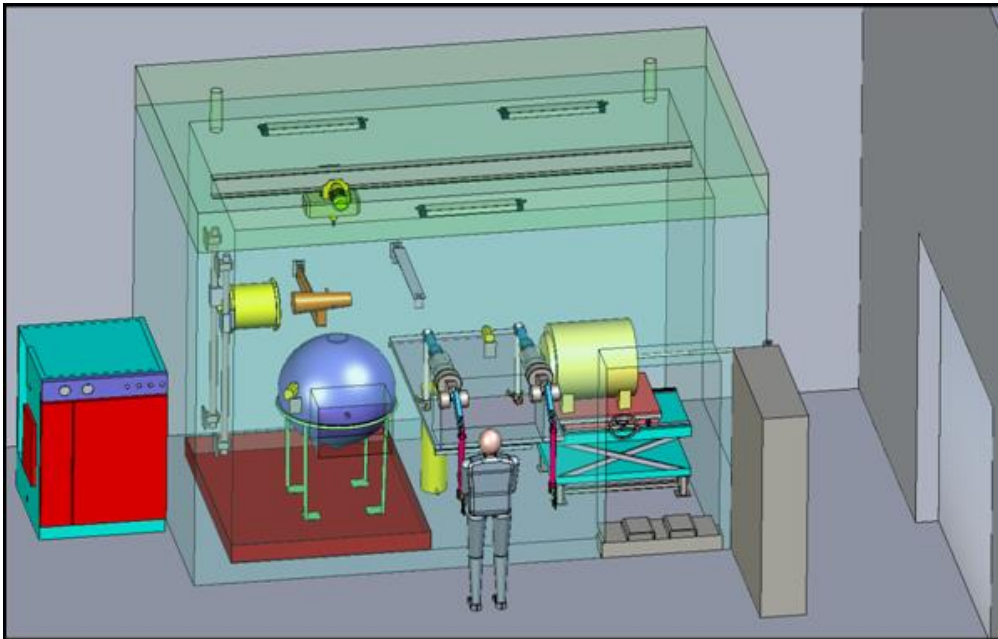
1. Irradiation en réacteur (ou toute source intense de neutrons) d'une cible de manganèse métallique de haute pureté.
2. Dissolution de la cible en milieu sulfurique et dilution en 2 solutions de sulfate de manganèse d'activités traçables entre elles (A et B).
3. Détermination de l'activité massique de l'aliquote A par la méthode des coïncidences  $4\pi\beta-\gamma$ .
4. Ajout quantitatif de l'aliquote B dans le bain de manganèse et homogénéisation.
5. Etalonnage du détecteur gamma de la boucle de comptage : taux de comptage du détecteur gamma en fonction de l'activité totale en  $^{56}\text{Mn}$  du bain.

Cette méthode s'avère très lourde à réaliser d'une part parce qu'elle nécessite une irradiation en réacteur, d'autre part car la source produite a une courte période et doit avoir une activité de quelques dizaines de MBq, ce qui pose des problèmes de transport et de radioprotection.

### 4. Rénovation de l'installation et possibilité d'amélioration

En 2009, le laboratoire a été rénové avec notamment la construction d'une casemate de radioprotection. Cette dernière a été dimensionnée de façon à pouvoir accueillir des sources de débit d'émission neutronique maximal de  $10^9 \text{ s}^{-1}$ . La sphère est placée à l'intérieur de la casemate où des bras télémanipulateurs ainsi qu'un palan permettent la préparation et l'installation de la source neutronique au centre de la sphère. Le compteur long (BF3) de

mesure des fuites de neutrons hors du bain est placé à proximité immédiate de la cuve et peut être déplacé à distance pour être positionné dans l'axe d'un support (à  $\pm 5$  mm) permettant la mesure de l'anisotropie par la méthode du cône d'ombre (figures 4 et 6).



**Figure 4** Schéma de l'installation de mesure



**Figure 5** Face avant de la cellule de radioprotection

Au vu de l'état actuel de la technique et de l'ensemble des publications étudiées, plusieurs voies d'amélioration étaient possibles afin de garder le processus d'étalonnage sous contrôle



statistique (*i.e.* les fluctuations de mesure observées étant compatibles avec les causes d'incertitude et de variabilité théoriques) et en diminuant le plus possible les incertitudes de mesure, ou, tout au moins, en étudiant rigoureusement leurs causes et origine. Cela passait tout d'abord par l'étude approfondie des sections efficaces des réactions nucléaires nécessaires au calcul des facteurs correctifs. En étudiant la fiabilité des bibliothèques (validations expérimentales, comparaisons, calculs, simulations) il est ainsi possible de réduire le choix des bibliothèques et les incertitudes associées.

Afin d'améliorer la fiabilité des calculs par les codes Monte-Carlo, il était également nécessaire de connaître la quantité d'impuretés présentes dans le bain et la concentration de chaque élément. La simulation du système pouvait par ailleurs être améliorée en modélisant de manière plus complète et précise les différents éléments présents et qui peuvent influencer les interactions neutroniques. Cela passait par une modélisation des objets présents dans la casemate ainsi que du détail de l'ensemble source et porte-source. Chaque modélisation devrait également être validée expérimentalement et de façon indépendante, sans faire appel à un paramètre issu de la méthode du bain de manganèse ou de modélisations informatiques. Cette étude de modélisation a été réalisée mais ne sera pas présentée dans ce dossier.

Enfin, l'amélioration principale à apporter à la méthode du bain de manganèse consistait à utiliser une méthode de mesure directe en ligne de l'activité en  $^{56}\text{Mn}$  du bain. En effet, outre les problèmes de radioprotection qu'implique un étalonnage par activation en réacteur, une mesure directe doit permettre d'accroître la précision du système tout en simplifiant la mesure et en réduisant les étapes intermédiaires d'étalonnage.

### 3. Développement d'un système de mesure primaire en ligne de l'activité de $^{56}\text{Mn}$

La nouvelle méthode de mesure développée pour la mesure primaire en ligne de l'activité massique de la solution en  $^{56}\text{Mn}$  repose sur une technique de comptage par coïncidences  $\beta$ - $\gamma$ . Cette technique largement utilisée pour l'étalonnage de radionucléides présentant une émission corrélée de deux types de rayonnement différents, peut très schématiquement se décrire par ce qui suit.

Une source radioactive est placée devant deux détecteurs différents, l'un sensible par exemple au rayonnement  $\beta$  et l'autre au rayonnement  $\gamma$ . Le taux de comptage  $N$ , observé sur chaque détecteur est égal au produit de l'activité vraie de la source,  $A$ , qui est inconnue et du rendement de détection de chaque détecteur,  $R$ , également inconnus (équations 1 et 2).

$$N_{\beta} = A \cdot R_{\beta} \quad (1)$$

$$N_{\gamma} = A \cdot R_{\gamma} \quad (2)$$

Le taux de comptage mesuré en coïncidence,  $N_c$ , est égal au produit de l'activité de la source et des rendements de détections des deux détecteurs, si les détections ne sont pas corrélées (équation 3).

$$N_c = A \cdot R_\beta \cdot R_\gamma \quad (3)$$

Le produit de  $N_\beta$  et  $N_\gamma$  divisé par  $N_c$  donne alors l'activité de la source (équation 4).

$$\frac{N_\beta \cdot N_\gamma}{N_c} = \frac{A^2 \cdot R_\beta \cdot R_\gamma}{A \cdot R_\beta \cdot R_\gamma} = A \quad (4)$$

En pratique, l'application de cette méthode nécessite l'emploi de termes correctifs, notamment du fait qu'il existe une diaphonie entre les détecteurs, un rayonnement d'une nature pouvant être détecté par le détecteur du rayonnement de l'autre nature, mais le principe de base reste identique. Cette technique de mesure est bien adaptée au  $^{56}\text{Mn}$  qui se désintègre par transitions bêta suivies de désexcitations gamma. Comme les transitions bêta ont des énergies maximales importantes, il est apparu qu'une bonne partie des électrons bêta émis avaient une énergie supérieure au seuil d'émission Cerenkov dans la solution. Cette émission de lumière par effet Cerenkov est en effet possible lorsque la vitesse de phase des électrons est supérieure à celle de la lumière dans le milieu. L'avantage principal de ce phénomène est qu'une partie du rayonnement bêta peut être détectée *in situ* dans la solution, par la seule adjonction de détecteurs optiques. Le rayonnement gamma est quant à lui détecté grâce à un scintillateur NaI(Tl) ou un détecteur à semi-conducteur. Le schéma du système de détection retenu apparaît sur la figure 6.

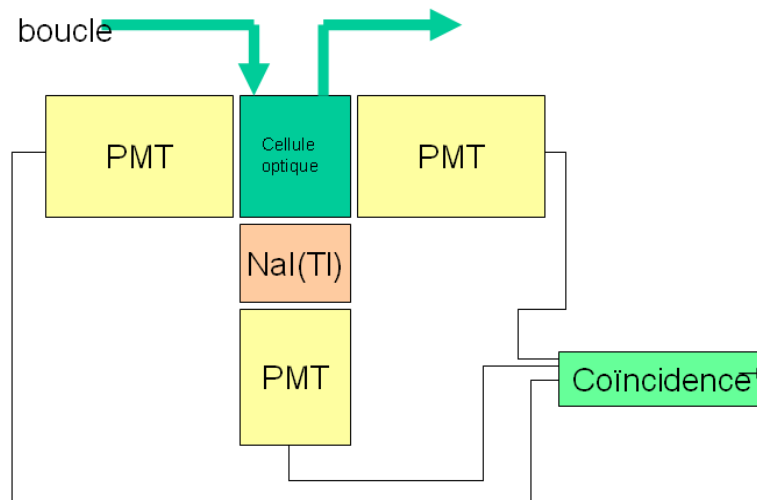
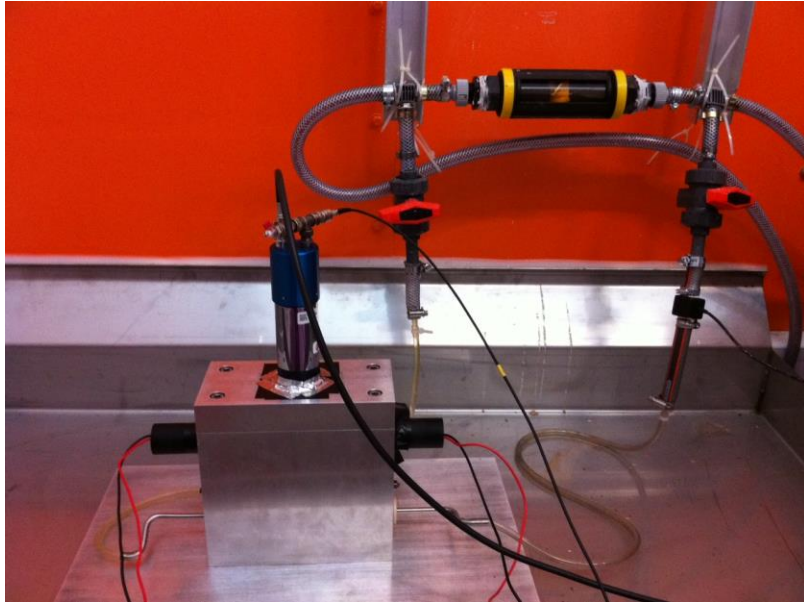


Figure 6 Schéma du système de mesure en ligne de l'activité de  $^{56}\text{Mn}$

La solution de sulfate de manganèse issue de la boucle de mesure circule dans une cellule optique transparente accolée à deux photomultiplicateurs fonctionnant en coïncidence afin de rejeter leur bruit thermique. Un détecteur  $\gamma$  est accolé à cette cellule et les comptages s'effectuent pour chaque détecteur (*i.e.* photomultiplicateurs en coïncidence et détecteur gamma) et pour les deux types de détecteurs en coïncidence.

Un prototype de ce détecteur a été réalisé afin de valider le concept et la réalisation du détecteur définitif apparaît sur la figure 7.





**Figure 7** Détecteur Cerenkov-gamma dans la boucle de mesure

Le détecteur a été initialement utilisé avec un système d'acquisition classique composé avec des modules commerciaux et est maintenant connecté à un système d'acquisition numérique développé au LNE-LNHB dans le cadre de la fiche étude consacrée à la gestion numérique des temps morts.

Le test de ce détecteur a été effectué dans le cadre d'un exercice d'étalonnage du bain, en comparant les mesures d'activité en ligne avec des mesures hors ligne. Le schéma de cet exercice apparaît sur la figure 8.

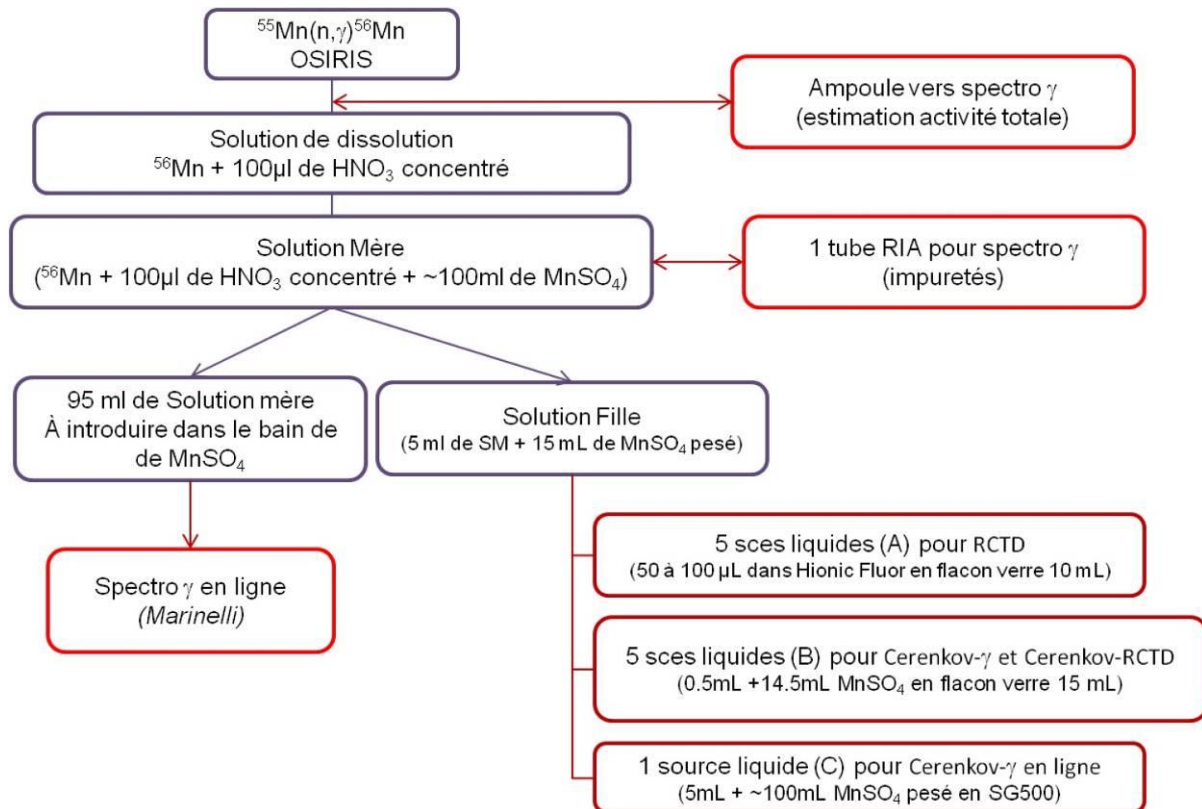


Figure 8 *Schéma de l'exercice d'étalonnage du bain de manganèse*

Trois méthodes de mesures d'activité ont ainsi été utilisées pour mesurer une solution issue de la même solution mère : la méthode Cerenkov-gamma en ligne, la méthode RCTD (rapport des coïncidences triples à doubles, méthode primaire), et la méthode Cerenkov-gamma hors ligne (méthode primaire également). Toutes les activités sont ramenées à la même date de référence.

Pour la méthode RCTD primaire, la moyenne sur les 5 sources issues de la solution fille donne une activité de  $(93,82 \pm 0,47) \text{ Bq.g}^{-1}$ .

Pour la méthode Cerenkov-gamma hors ligne, deux sources constituées d'un échantillon de solution fille diluée ont été mesurées. Comme pour la méthode Cerenkov-gamma en ligne, la méthode de la courbe d'extrapolation a été utilisée afin d'obtenir une valeur de l'activité de la source mesurée. Deux séries d'extrapolation ont été réalisées pour deux "fenêtres" gamma différentes : une fenêtre "large", comprenant les émissions gamma les plus intenses (846 keV, 1810 keV et 2113 keV) et le front Compton, et une fenêtre "moyenne", ne prenant en compte que l'émission de 846 keV et le front Compton qui la précède sur le spectre. Ces deux "fenêtres" sont présentées sur la figure 9.

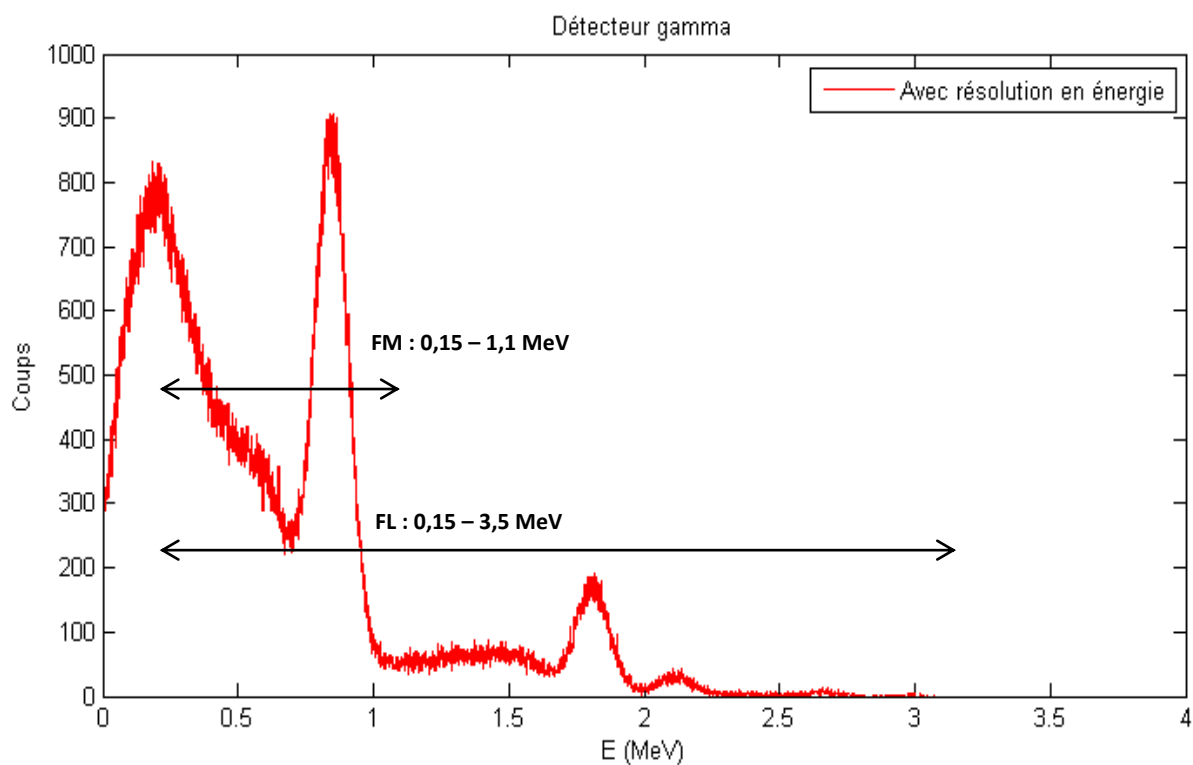


Figure 9 *Fenêtres gamma large (FL) et moyenne (FM) utilisée pour la méthode de la courbe d'extrapolation appliquée aux coïncidences Cerenkov-gamma hors ligne*

Les rendements obtenus en voie Cerenkov sont d'environ 45 % aux conditions nominales de fonctionnement. Pour chacune des fenêtres gamma, une extrapolation linéaire a été effectuée, et est présentée dans la figure 10.

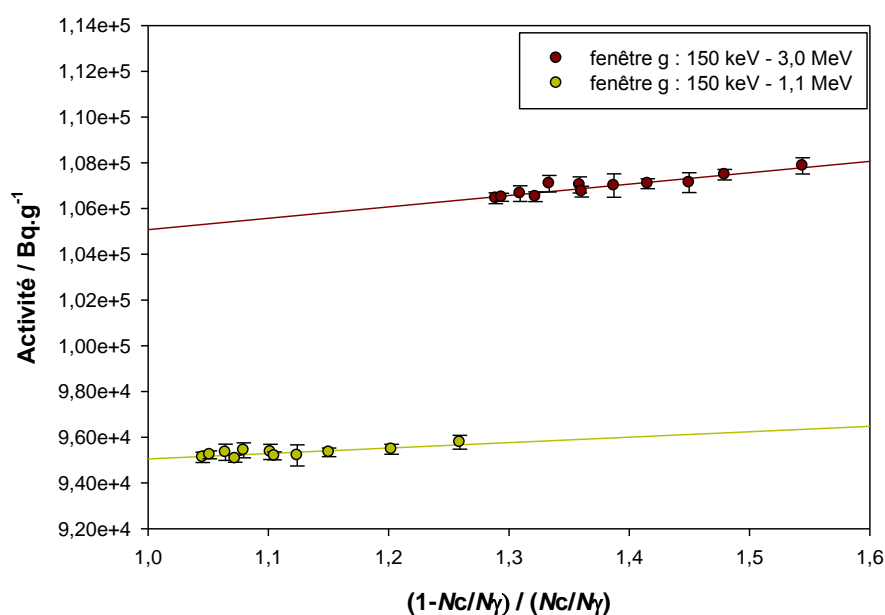


Figure 10 **Courbes d'extrapolations obtenues pour la méthode des coïncidences Cerenkov-gamma hors-ligne**

Par extrapolation, les valeurs d'activité massique sont les suivantes :

- $(101,1 \pm 1)$  kBq.g<sup>-1</sup> ( $k=1$ ) pour la fenêtre large,
- $(93,7 \pm 0,9)$  kBq.g<sup>-1</sup> ( $k=1$ ) pour la fenêtre moyenne,

Les valeurs d'activités massiques obtenues par les deux méthodes primaires sont donc compatibles, aux incertitudes de mesure près, si l'on ne considère que le résultat obtenu avec la fenêtre gamma moyenne. Cependant, il existe une forte incertitude quant à l'extrapolation à effectuer dans le cas des coïncidences Cerenkov-gamma hors-ligne, compte tenu de l'incertitude sur la forme de la courbe de rendement entre le rendement maximum obtenu par mesure (environ 45 %) et le rendement de 100 % pour lequel la valeur d'activité par extrapolation est obtenue. Par ailleurs, la valeur non compatible obtenue avec la fenêtre gamma large n'est pas expliquée à ce jour et devra faire l'objet d'investigations supplémentaires.

En parallèle de ces mesures effectuées par les méthodes primaires, une partie de la solution fille a également été mesurée par le détecteur Cerenkov-gamma en ligne. La méthode de la courbe d'extrapolation a également été appliquée en modifiant le rendement bêta par variation de la tension d'alimentation des photomultiplicateurs. Malheureusement, la courte période du <sup>56</sup>Mn n'a permis de réaliser que 4 points de mesure, pour les tensions d'alimentation 1500 V (tension nominale), 1400 V, 1300 V et 1200 V. Les points obtenus sont présentés dans la figure 18.

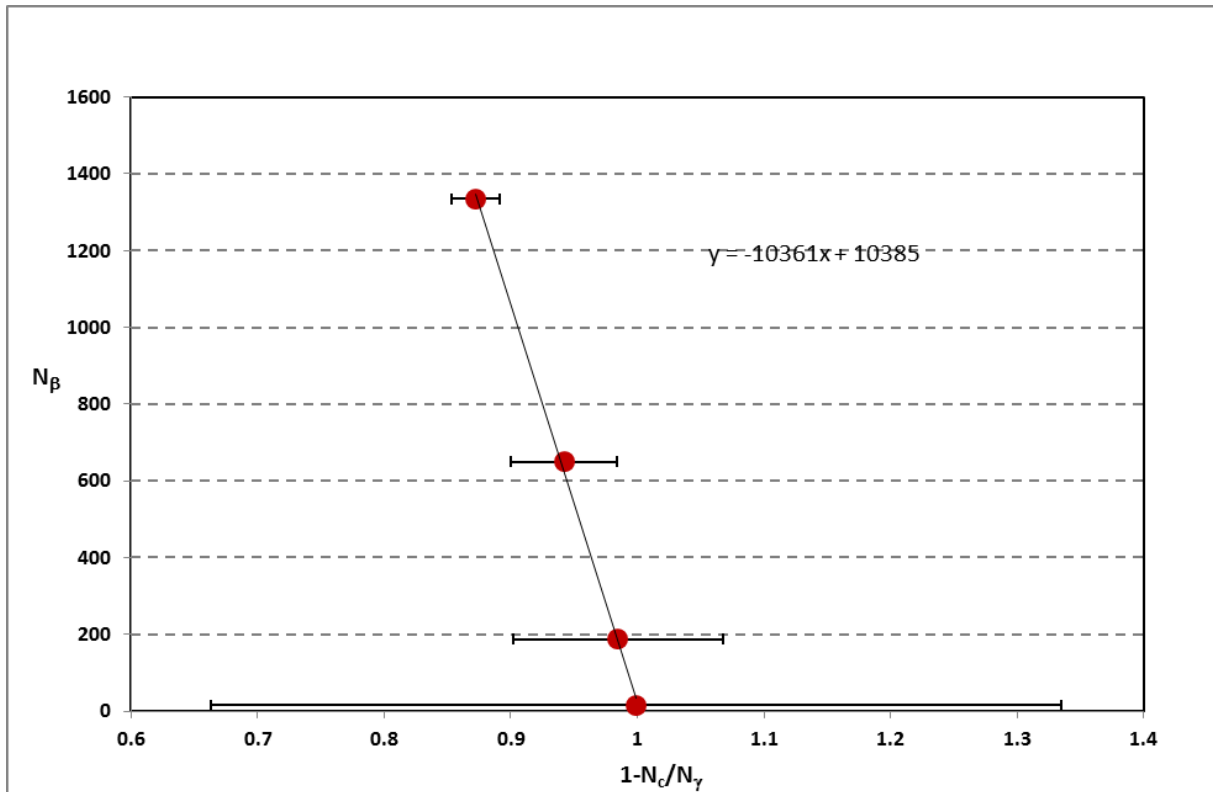


Figure 11 **Résultats de la méthode de la courbe d'extrapolation pour les coïncidences Cerenkov-gamma en ligne**

Les fortes incertitudes pour le rendement en voie bêta ( $1 - N_c/N_\gamma$ ) sont dues au faible taux de comptage en coïncidences, lui même dû au faible taux de comptage en voie gamma. De plus, la courte période du  $^{56}\text{Mn}$  n'a pas permis de réaliser des temps de comptage suffisamment longs (de plus de 10 000 secondes), qui auraient pu limiter ces incertitudes statistiques. Le rendement en voie Cerenkov est également un facteur limitant fortement l'extrapolation, le rendement pour la tension d'alimentation nominale (1500 V) des photomultiplicateurs étant de 13 %. Il est donc très difficile d'extrapoler linéairement au rendement 100 % avec une incertitude acceptable (inférieure au pourcent) sur la valeur d'activité. De plus, bien qu'une extrapolation linéaire semble donner une activité compatible avec celle donnée par la méthode primaire RCTD, l'évolution du rendement entre 45 % et 100 % reste inconnue et inaccessible par des méthodes expérimentales (l'effet du seuil Cerenkov limite les rendements de détection à environ 53-55 % dans le meilleur des cas, c'est à dire pour une réflectivité des photons de 100 %). Des études complémentaires sont donc nécessaires afin d'affiner le modèle utilisé a priori pour déterminer l'activité, en vue de valider la méthode Cerenkov-gamma en ligne pour l'étalonnage de sources neutroniques.

## 4. Conclusion et perspectives

La jouvence de l'installation de mesure de débit d'émission de sources neutroniques et le développement d'un système innovant de mesure directe et en ligne de l'activité du bain permettra au LNE-LNHB d'améliorer les références nationales de débit d'émission de sources neutroniques et de répondre aux demandes des utilisateurs dans le domaine de la dosimétrie de neutrons, de la radioprotection, des applications industrielles, notamment pour la prospection pétrolière et de la défense. L'analyse des résultats donnés par le système de mesure en ligne d'activité de  $^{56}\text{Mn}$  par coïncidences Cerenkov-gamma a été faite en comparaison avec des mesures hors-ligne. Il apparaît que la précision de ce système est limitée par plusieurs facteurs : la statistique de comptage est faible du fait du faible volume de la cellule de mesure, le rendement de détection est limité en voie Cerenkov et en voie gamma et enfin, l'analyse des résultats nécessite une modélisation fine du système afin de déterminer l'influence d'effets comme la diaphonie entre les voies ou d'éventuelles inhomogénéités de rendement de détection au sein du dispositif de mesure. Il est prévu que le LNE-LNHB participe prochainement à une comparaison bilatérale de mesure de débit d'émission d'une source de  $^{252}\text{Cf}$  ainsi qu'à une comparaison internationale de mesure d'une source AmBe.

## 5. Publications

F. Ogheard and P. Cassette. Development of a Cerenkov-Gamma coincidences detector for online primary activity measurement of  $^{56}\text{Mn}$  and its application to a manganese bath facility for neutron source standardization, , Symposium on Radiation Measurements and Applications, Ann Arbor, Michigan, USA (2009).

F. Ogheard and P. Cassette. Development of a Cerenkov-Gamma Coincidence detector for online primary activity measurement of  $^{56}\text{Mn}$ . Advances in Liquid Scintillation Counting, Paris, France (2010).

F. Ogheard, J. L. Chartier et P. Cassette. Monte-Carlo simulations of the new LNHB manganese bath facility. *Applied Radiation and Isotopes*, 70:794–801, (2012).

F. Ogheard, P. Cassette . Gamma Coincidence Detector for the Direct Activity Measurement of  $^{56}\text{Mn}$  Conference SORMA WEST 2012, Oakland, California, USA (2012).

F. Ogheard. Développement d'un système de mesure directe du débit d'émission de sources neutroniques. Thèse de doctorat, Université Paris XI (2012).

[http://tel.archives-ouvertes.fr/index.php?halsid=f2qm4gs9fbd5qi0t5gbaleppu1&view\\_this\\_doc=tel-00740509&version=1](http://tel.archives-ouvertes.fr/index.php?halsid=f2qm4gs9fbd5qi0t5gbaleppu1&view_this_doc=tel-00740509&version=1)

## 6. Bibliographie

N.J. Roberts, L.N. Jones, Z. Wang, Y. Liu, Q. Wang, X. Chen, H. Luo, C. Rong, M. Kralik, H. Park, K.O. Choi, W.W. Pereira, E.S. da Fonseca, P. Cassette, M.S. Dewey, N.N. Moiseev, I.A. Kharitonov : International key comparison of measurements of neutron source emission rate (1999-2005) - CCRI(III)-K9.AmBe. Metrologia, 48, 2011.

A. G. Bardell, K. J. Zieba, R. Bottger et H. Klein : Bilateral intercomparison of the neutron emission rate of a  $^{252}\text{Cf}$  spontaneous fission source between the National Physical Laboratory, Teddington, UK and the Physikalisch-Technische Bundesanstalt, Braunschweig. NPL Report RSA(EXT), 47, 1994.

R. D. O'Neal et G. Scharff-Goldhaber : Determination of Absolute Neutron Intensities. Physics Reviews, 56:R368, 1942.

K. W. Geiger et G. N. Whyte : Absolute standardization of radioactive neutron sources. Canadian Journal Of Physics, 37:256, 1959.

V. Naggiari : Report on international comparison of the neutron emission rate of national research council RaBe source No 200-1 by the method of slowing down neutrons in a manganese sulphate solution. BIPM report, 5:128, 1967.

A. De Volpi : Absolute calibration of neutron sources having a wide range of emission spectra. Metrologia, 1969.

J. M. Adams : Present and future trends for neutron source calibrations at the National Insititute of Standards and Technology. Nuclear Instruments and Methods in Physics Section B, 213:218, 2004.

H. Park, K-O. Choi, J-M. Lee, K. B. Lee et M. S. Hahn : Absolute measurement of the neutron emission rate with a manganese sulphate bath system. Journal of the Korean Physical Society, 47:603, 2005.

Sun-Tae Hwang et Kun Jai Lee : Absolute neutron emission rate measurementof a  $^{252}\text{Cf}$  source by the manganese sulfate bath method. Nuclear Instruments and Methods in Physics Section A, 273:381, 1988.

W. M. Murphey : The correction factor for fast neutron reactions on sulfur and oxygen in the manganese sulfate bath calibration of neutron sources. Nuclear Instruments and Methods, 37:13–21, 1965.150

Mien-Win Wu et Jen-Chang Chou : Absolute Determination of the Fast Neutron Fluxes by Using the Flow-Type Manganese Bath Method. Chinese Journal of Physics, 1973:97, 1965.

E. J. Axton et A. G. Bardell : Re-evaluation of Neutron Source Emission Rates Measured at the National Physical Laboratory. Metrologia, 18:97–102, 1982.

E. J. Axton, A. G. Bardell, S. J. Felgate et E. M. R. Long : The Ratio of the Thermal Neutron Capture Cross-Sections for Hydrogen and Manganese and its Impact on the Measurement of



Neutron Source Emission Rates by Manganese Bath Techniques. *Metrologia*, 21:181–191, 1985.

E. J. Axton : Intercomparison of Neutron-Source Emission Rates (1979- 1984). *Metrologia*, 23:129–144, 1987.

Kyung-Ju Lee, Kil-Oung Choi, Sun-Tae Hwang et Kun Jai Lee : Determination of Neutron Absorption fraction factor in manganese sulfate bath system. *Journal of the Korean Nuclear Society*, 21:12, 1989.

Kil-Oung Choi, Sun-Tae Hwang, Young-Seok Lee, Kwang pil Lee et Keung-Shik Park: Impurity correction factor of MnSO<sub>4</sub> compound for the determination of neutron emission rate on the manganese bath method. *Journal of radioanalytical and nuclear chemistry*, 239:605–608, 1999.

Guilherme Rodrigues Bittencourt, Karla Cristina de Souza Patrao, Sandro Passos Leite, Walsan Wagner Pereira et Evaldo Simoes da Fonseca: Determining of semi-empirical relationship between the manganese and hydrogen atoms ratio, physical density and concentration in an aqueous solution of manganese sulphate. *Radiation Measurements*, 45:1505–1508, 2010.

N. J. Roberts : MCNP Calculations of Correction Factors for Radionuclide Neutron Source Emission Rate Measurements using the Manganese Bath. Report of the National Physical Laboratory, UK, 2001.

N. J. Roberts et Lawrence N. Jones : Recent developments in radionuclide neutron source emission rate measurements at the National Physical Laboratory. *Applied Radiation and Isotopes*, 68:626–630, 2009.

Sandro P. Leite, Walsan W. Pereira, Evaldo S. Fonseca et Karla C.S. Patrao : Emission rate corrections for <sup>241</sup>AmBe sources in manganese bath of LNMRI/IRD. Proceedings of the IMEKO XVIII World Congress, 2006.

S. Agostinelli et al. : GEANT4 - a simulation toolkit. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research A*, 506:250–303, 2003.

G. Battistoni et al. : The FLUKA code : description and benchmarking. *American Institute of Physics Conference Proceedings*, 896:31–49, 2007.

A. D. Carlson et al. : International Evaluation of Neutron Cross Section Standards. *Nuclear Data Sheets*, 110:3215–3324, 2009.

M. Chadwick et al. : ENDF/B-VII.0 : next generation evaluated nuclear data library for nuclear science and technology. *Nuclear Data Sheets*, 107:2931–3060, 2006.

C. Ferguson : General purpose source particle module for GEANT4/SPARSET. Technical note, UoS-GSPM-Tech, 2000.

R. Lemrani et al. : Low energy neutrons propagation in MCNPX and GEANT4. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research A*, 560:454–459, 2006.

Yung-Shun Yeh : simulating neutrons propagations with FLUKA, GEANT4 and MCNP. IEEE Nuclear Science Symposium Conference Record, 2007.152.

M.-M. Bé, V. Chisté, C. Dulieu, E. Browne, V. Chechev, N. Kuzmenko, R. Helmer, A. Nichols, E. Schönfeld et R. Dersch : Table of Radionuclides. Monographie BIPM-5, 2004.

A. P. Baerg : Measurement of Radioactive Disintegration Rate by the Coincidence Method. Metrologia, 2, 1966.

C. Bobin : Primary standardization of activity using the coincidence method based on analogue instrumentation. Metrologia, 44:27–31, 2007.