

REPUBLIQUE ALGERIENNE DEMOCRATIQUE ET POPULAIRE
Ministère de l'Enseignement Supérieur et de la Recherche Scientifique
Université M'hamed Bougara de Boumerdès

Faculté des Sciences
Département de Physique



THÈSE

de

DOCTORAT EN SCIENCES

Spécialité : Physique Nucléaire

présentée par

Fatma Zohra DEHIMI

THEME

**Application des Méthodes Bayésiennes
à la Caractérisation des Distributions Neutroniques**

soutenue publiquement le 24/02/2011

Devant le jury composé de :

K. BADDARI
D. MEDJADI
M. NEKKAB
S.E.H. ABAIDIA
A. SEGHOOR

Professeur/UMBB
Professeur/ENS-KOUBA
Professeur/UMB-M'SILA
Maître de Conférence A/UMBB
Maître de Recherche A/CRNA

Président
Examineur
Examineur
Co-Directeur de Thèse
Directeur de Thèse

Remerciements

Je remercie Monsieur A. Seghour pour avoir assuré la direction de ma thèse avec disponibilité et rigueur scientifique, je voudrais aussi le remercier pour le temps qu'il m'a consacré et la patience avec laquelle il a accompagné mon travail durant la préparation de cette thèse. Mes sincères remerciements vont également à Monsieur S.E.H. Abaidia pour avoir co-dirigé cette thèse.

Je remercie Monsieur le professeur K. Baddari de m'avoir fait l'honneur de présider le jury de soutenance. Je remercie également Messieurs les examinateurs, les professeurs D. Medjadi et M. Nekkab d'avoir accepté de faire partie du jury de soutenance et pour l'intérêt qu'ils ont accordé à mon travail.

Je tiens à remercier Monsieur B. Saichi pour son aide précieuse lors du déroulement de l'expérience réalisée au niveau du réacteur nucléaire NUR (Centre de Recherche Nucléaire de Draria). Mes remerciements vont également aux équipes en charge de la spectrométrie à fluorescence X et du microscope électronique (Centre de Recherche Nucléaire d'Alger) pour les analyses des échantillons.

Enfin j'ai une pensée pour tous ceux qui m'ont entourée au quotidien ces dernières années, mes enfants, ma famille ainsi que mes amies Nawel et Lila.

Merci à tous ceux qui, de près ou de loin, m'ont apportée leurs soutiens et leurs encouragements.

Résumé

La détermination des distributions spatiales des flux de neutrons ainsi que les techniques de spectrométrie neutronique se basent sur des mesures indirectes moyennant des réactions nucléaires induites par les neutrons. Les données expérimentales sont généralement exprimées par des relations de convolution des distributions énergétiques ou spatiales des champs neutroniques avec les fonctions de réponse des systèmes de détection, aboutissant à des problèmes inverses mal-posés. Dans ce travail de thèse, on se propose de développer deux méthodes de déconvolution des distributions neutroniques suivant une approche probabiliste d'inférence Bayésienne. La première méthode permet de restaurer les distributions spatiales des flux de neutrons à partir des distributions de densités de traces sur des détecteurs solides de traces nucléaires en utilisant la méthode d'optimisation du Maximum d'Entropie. La seconde méthode introduit l'application de la théorie de l'information de Fisher à la déconvolution des distributions énergétiques des flux de neutrons à partir des mesures obtenues par la technique de spectrométrie par activation neutronique.

Mots-clés: Problème inverse, Inférence bayésienne, Entropie maximale, Information de Fisher, Distribution spatiale du flux de neutrons, Distribution énergétique du flux de neutrons.

Abstract

The determination of neutron spatial distributions and the neutron spectrometry techniques are based on indirect measurements by means of nuclear reactions induced by neutrons. Experimental data are generally expressed as convolution relations of energy distributions or spatial distributions of neutron fields with response functions of the detection apparatus leading to ill-posed inverse problems. In this thesis work, we propose to develop two deconvolution methods of neutron distributions, following a probabilistic approach of Bayesian inference. The first method allows restoring neutron flux spatial distributions from track density distributions on solid state nuclear track detectors using Maximum Entropy optimization method. The second method introduces the application of Fisher information theory to the unfolding of neutron energy spectra from neutron activation spectrometry measurements.

Keywords: Inverse problem, Bayesian inference, Maximum entropy, Fisher information, Neutron flux spatial distribution, Neutron energy spectrum.

ملخص

تحديد توزع التدفق النيوتروني و تقنيات قياس طاقة النيوترون تعتمد على قياسات غير مباشرة ناتجة عن تفاعلات نووية تحدثها النيوترونات . المعطيات التجريبية تمثل على العموم على شكل علاقات تكاملية ما بين التدفق النيوتروني حسب الطاقة أو التوزع الفضائي من جهة و دالة استجابة الكاشف من جهة أخرى و التي توصل إلى معادلات من صنف المسائل العكسية السية العرض . نقترح في هذه الأطروحة تفصيل طريقتين لتحديد طاقة النيوترونات و التوزع الفضائي للنيوترونات باستعمال طريقة الاحتمالات التي تقوم على الاستنتاج البايزي . الطريقة الأولى تمكن من تعيين التوزع الفضائي للتدفقات النيوترونية اعتماداً على تغيرات كثافة الآثار على الكاشفات الصلبة للآثار النووية بإتباع طريقة أقصى قصور حراري . الطريقة الثانية تستند إلى تطبيق نظرية المعلومات ليفشر للحصول على طاقة التدفق النيوتروني اعتماداً على قياسات لشدة التدفق النيوتروني عن طريق التفعيل النيوتروني .

الكلمات المفتاحية :

مسألة عكسية، استنتاج بايزي، أقصى قصور حراري، معلومات فيشر، التوزع الفضائي للتدفق النيوتروني، طاقة التدفق النيوتروني .

Table des matières

Introduction générale	1
I Rappels de neutronique	5
I.1 Sources de neutrons	6
I.1.1 Les sources radioactives	6
I.1.2 Les Accélérateurs	7
I.1.3 Les réacteurs nucléaires	8
I.2 Interactions des neutrons avec la matière	8
I.2.1 Réaction de diffusion	8
I.2.2 Réaction d'absorption	9
I.2.3 Section efficace de réaction aux neutrons	10
I.3 Equation de transport des neutrons	12
I.3.1 Définitions de quelques grandeurs neutroniques	12
I.3.2 Etablissement de l'équation de transport neutronique	14
I.4 Distributions énergétiques des neutrons	16
I.4.1 Distribution énergétique des neutrons dans un réacteur nucléaire .	16
I.5 Distribution spatiale des neutrons	20

II Problèmes Inverses, Inférence Bayésienne et Théorie de l'Information 26

II.1	Introduction aux problèmes inverses	27
II.2	Problème inverse mal-posé	29
II.3	Inférence statistique bayésienne	31
II.3.1	Règle de Bayes	31
II.3.2	Résolution d'un problème inverse par la règle de Bayes	32
II.3.3	Méthode déterministe de régularisation	34
II.3.4	Analyse bayésienne séquentielle	35
II.4	Information <i>a priori</i>	35
II.4.1	Théorie de l'information et entropie	36
II.4.2	Modèles entropiques	38
II.4.3	Information de Fisher	40
II.5	Méthode de résolution du problème inverse	42
II.5.1	L'algorithme du recuit simulé	42

III Détermination des distributions spatiales des flux de neutrons 46

III.1	Détecteurs solides de traces Nucléaires	47
III.1.1	Formation des traces latentes	48
III.1.2	Révélation chimique des traces enregistrées dans les DSTN	51
III.1.3	Géométries des traces révélées	51
III.2	Caractérisation d'une distribution spatiale de flux de neutrons	55

III.2.1	Distribution énergétique du flux de neutrons	55
III.2.2	Taux de réactions dans le dispositif de détection	57
III.2.3	Modélisation de la densité des traces révélées	59
III.3	Description d'une méthode bayésienne de déconvolution	62
III.3.1	Réalisation d'un code de déconvolution des distributions spatiales des flux de neutrons	64
III.4	Validation de la méthode de déconvolution des distributions spatiales des flux de neutrons	65
III.4.1	Traitement des images bruitées	66
III.4.2	Distribution spatiale du flux de neutrons du canal neutronogra- phique du réacteur NUR	68
III.5	Mesure de flux par activation neutronique	68
III.6	Conclusion	73
IV	Détermination des distributions énergétiques des flux de neutrons	74
IV.1	Spectrométrie neutronique	75
IV.1.1	Spectrométrie par proton de recul	76
IV.1.2	Spectrométrie par multi-sphères	77
IV.1.3	Spectrométrie par activation neutronique	77
IV.2	Description de quelques méthodes de déconvolution des distributions éner- gétiques des flux de neutrons	82
IV.2.1	SPECTRA	82
IV.2.2	STAY'SL	83

IV.2.3 SAND II	84
IV.2.4 SWIFT	85
IV.2.5 FRUIT	87
IV.2.6 MAXED	88
IV.3 Description d'une méthode Bayésienne de déconvolution	89
IV.3.1 Réalisation d'un code de déconvolution des distributions énergé- tiques des flux de neutrons	91
IV.4 Validation de la méthode développée	93
IV.4.1 Validation de la méthode pour un cas simulé	93
IV.4.2 Validation de la méthode pour des données expérimentales	96
IV.5 Conclusion	102
Conclusion générale	103
Bibliographie	106
Table des figures	113
Liste des tableaux	115
Annexes	116
A Publication nationale	116
B Publication principale	130

Introduction générale

Les distributions spatiales et spectrales des neutrons constituent des données essentielles pour la physique neutronique dans ses aspects théorique et expérimental. En effet, d'une part la distribution énergétique du flux de neutrons permet de quantifier les taux d'interactions des neutrons avec la matière. D'autre part, la caractérisation spatiale d'un champ neutronique fournit des informations sur l'uniformité du flux et sur les gradients qu'il peut présenter en des endroits donnés de l'espace.

Les techniques de spectrométrie neutronique et de mesures des distributions spatiales des flux de neutrons sont diverses et variées. Elles se basent sur la détection des particules chargées induites par les réactions nucléaires impliquant les neutrons. Ces techniques de mesure conduisent le plus souvent à l'obtention d'une relation de convolution entre la distribution neutronique et la fonction de réponse du système de détection. Cette convolution est généralement linéaire du type intégrale de Fredholm de première espèce. La résolution de cette intégrale connue aussi sous le terme du problème inverse reste un sujet d'actualité et n'a toujours pas reçue de solution générale.

Les problèmes inverses se présentent généralement sous forme de problèmes mal-posés. De ce fait, ils ont longtemps été considérés comme dénués de sens physique et donc ignorés. La perception mathématique actuelle les considère comme des problèmes résolubles par des méthodes dites de déconvolution qui se basent sur l'inférence statistique ou la régularisation. La méthode d'inférence bayésienne constitue une méthode rigoureuse et robuste de résolution des problèmes inverses fortement sous-déterminés, tels que ceux souffrant d'un manque de données ou ceux dont les données sont imprécises.

Dans ce travail de thèse, deux méthodes de déconvolution des distributions des champs neutroniques selon le volet spatial et spectral sont présentées et détaillées.

En ce qui concerne le volet spatial, le problème de déconvolution des distributions spatiales des flux de neutrons, à partir des distributions de densités de traces sur les détecteurs solides de traces nucléaires, a été résolu par analogie avec les problèmes de déconvolution rencontrés dans le domaine du traitement des images. En effet, nous avons adapté la méthode du maximum d'entropie, très utilisée pour le traitement des images fortement bruitées, à la résolution de notre problème de déconvolution. La méthode de déconvolution des distributions spatiales des flux de neutrons ainsi développée a donné lieu à un article publié dans la revue *Algerian Review of Nuclear Sciences* (cf. annexe A).

Le deuxième volet porte sur la détermination des distributions spectrales des champs neutroniques à l'aide de mesures effectuées par la technique de spectrométrie par activation neutronique ou par les sphères de Bonner. Une multitude de méthodes ont été développées par différents laboratoires pour résoudre ce problème de déconvolution. La plupart de ces méthodes adoptent la procédure des moindres carrés selon sa variante linéaire ou non-linéaire. Certaines se basent sur des procédures itératives ou sur des techniques dites de Monte Carlo. On peut citer les codes SAND II (Spectrum Adjustment for Neutron Dosimetry), MAXED (MAXimum Entropy Deconvolution), etc... Toutes ces méthodes ont une caractéristique commune qui est l'ajustement d'une solution initiale.

La méthode que nous avons développée se base sur une approche bayésienne combinée à un principe inspiré de la théorie de l'information de Fisher qui est appliquée pour la première fois pour un problème sous-déterminé dit de déconvolution à "faible nombre de canaux". La minimisation de cette quantité d'information garantit l'obtention d'une solution dont l'erreur est la plus faible possible. De plus la technique Monte Carlo que nous avons adoptée présente l'avantage d'atteindre la solution du problème sans être dépendante d'une solution a priori.

La méthode Bayésienne de déconvolution des distributions énergétiques des flux de neutrons a fait l'objet d'un article publié dans la revue *IEEE Transactions on Nuclear Science* (cf. annexe B).

Le présent manuscrit est scindé en quatre chapitres. Dans le premier chapitre, nous allons présenter brièvement les différentes sources de neutrons, ainsi que l'étude des mécanismes d'interaction des neutrons avec la matière. Nous établirons l'équation de transport des neutrons et l'équation de diffusion pour déduire les distributions énergétiques et spatiales des champs neutroniques.

Le second chapitre porte sur la modélisation des problèmes inverses et les conditions sous lesquelles un problème inverse mal-posé peut être résolu. Il porte aussi sur l'inférence bayésienne, sur des notions de la théorie de l'information et du maximum d'entropie ainsi que l'information de Fisher. Une description d'une méthode d'optimisation globale qui est celle du recuit simulé est donnée à la fin de ce chapitre.

Le troisième chapitre de cette thèse traite de la caractérisation d'une distribution spatiale d'un flux de neutrons. Il passe en revue le mécanisme de formation des traces latentes dans les détecteurs solides de traces nucléaires (DSTN) et décrit la modélisation mathématique de la densité des traces révélées. Il présente les détails de la méthode

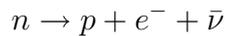
bayésienne de déconvolution de la distribution spatiale d'un flux neutronique à partir des distributions des densités de traces nucléaires sur des DSTN. La technique développée est appliquée pour un cas simulé de traitement d'images, puis à la caractérisation du flux neutronique du canal neutronographique du réacteur NUR (Nuclear University Reactor).

Enfin le quatrième et dernier chapitre est consacré à l'étude de quelques techniques de spectrométrie neutronique dont celle par activation neutronique. Il passe en revue quelques codes de déconvolution du flux neutronique très réputés et largement cités dans la littérature tels que SAND II et MAXED. Il présente ensuite une étude détaillée de la méthode de déconvolution proposée qui est basée sur une approche bayésienne pour la détermination de la distribution énergétique du flux de neutrons à partir des mesures de spectrométrie par activation neutronique. Cette méthode est validée par des activités synthétiques ainsi que par des données expérimentales de référence neutronique (NMF-90 : Neutron Metrology File) et de mesures de spectrométrie neutronique puisées de la littérature (MEDAPP facility : Medical Applications facility).

Chapitre I

Rappels de neutronique

Le neutron a été découvert par Chadwick en 1932. C'est une particule non chargée ayant une masse de $939.566 \text{ MeV}/c^2$. Le neutron est un fermion de spin $1/2$. Il est composé de trois quarks, deux quarks down et un quark up, liés par l'interaction forte. A l'état libre, il est instable et subit une désintégration β^- avec émission d'un proton, d'un électron et d'un anti-neutrino :



I.1 Sources de neutrons

Les neutrons peuvent être produits par des sources radioactives, par des accélérateurs des particules chargées, ou dans des réacteurs nucléaires selon un processus de fissions induites.

I.1.1 Les sources radioactives

Les sources radioactives produisant des neutrons sont de deux types : les sources de fission spontanée et les sources par réactions nucléaires induites.

Sources de fission spontanée :

La plus couramment utilisée est celle à base de ^{252}Cf , qui est un radio-isotope produit artificiellement d'une demi-vie de 2.645 ans. Le ^{252}Cf décroît par émission α à 96.91% et par fission spontanée à 3.09%. Le nombre moyen de neutrons émis par fission est de ≈ 3.7 . Les neutrons produits par une source de ^{252}Cf sont des neutrons rapides avec une énergie moyenne d'environ 2.1 MeV [1].

Sources de neutrons par réactions induites :

- Sources par réactions (α, n) :

Les sources de neutrons par réactions induites (α, n) consistent en des sources à base de béryllium mélangé avec un émetteur de particules α tels que le radium, le plutonium, l'américium ou le polonium. La production des neutrons se fait par la réaction ${}^9\text{Be}(\alpha, n){}^{12}\text{C}$. Le choix de l'élément émetteur α fixera la durée de vie de la source, son activité et sa gamme d'énergie.

L'américium-241 est un radio-isotope artificiel, il se désintègre en émettant deux particules α d'énergies 5.48 MeV à 85% et 5.44 MeV à 13%, accompagnées d'un

rayonnement γ , sa demi-vie est de 433 ans. Lorsqu'il est mélangé avec du béryllium, la source ainsi produite $^{241}\text{Am}-\text{Be}$ est de forte intensité, de longue période et émet des neutrons dans la gamme des énergies rapides.

- **Sources par réactions (γ, n) :**

Les sources photo-neutroniques telles que $^{124}\text{Sb}-\text{Be}$ et $^{24}\text{Na}-\text{Be}$ émettent des neutrons mono-énergétiques selon la réaction $^9\text{Be}(\gamma, n)^8\text{Be}$. Ces sources sont utiles pour certaines applications comme la calibration d'instruments de mesures et la dosimétrie des neutrons. Toutefois, elles sont de faibles intensités et ont une courte durée de vie car les demi-vie de ^{124}Sb et de ^{24}Na sont respectivement de 60.20 j et de 14.95 h.

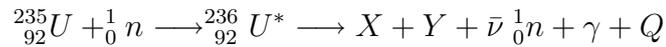
I.1.2 Les Accélérateurs

Les accélérateurs, utilisés comme sources de neutrons, ont l'avantage de produire des neutrons mono-énergétiques à des intensités supérieures à celles des sources radioactives et avec une bonne résolution en énergie.

- le générateur deutérium-tritium (D-T), consiste en une cible en tritium bombardée par des deutériums accélérés à environ 220 keV, selon la réaction exothermique $\text{T}(\text{d}, \text{n})^4\text{He}$. Ce type de générateur produit des neutrons d'énergies élevées ≈ 14 MeV.
- le cyclotron deutérium-béryllium (D-Be), consiste en une cible en béryllium bombardée par des deutériums selon la réaction $^9\text{Be}(\text{d}, \text{n})^{10}\text{B}$. Les neutrons produits sont mono-énergétiques.
- La réaction de spallation peut être utilisée comme source intense de neutrons. Elle consiste à bombarder une cible d'un métal lourd tel que : le tungstène, le bismuth, le mercure ou le thorium, par des nucléons issus d'un accélérateur de particules de hautes énergies. Cette réaction produit des fragments légers, généralement des isotopes de l'hydrogène, de l'hélium ou du lithium et une vingtaine de neutrons.

I.1.3 Les réacteurs nucléaires

Les réacteurs nucléaires constituent la source la plus intense de neutrons. Ces derniers sont produits par les fissions induites de l'uranium-235, de l'uranium-238 ou du plutonium-239. Dans le cas de la fission de l'uranium-235. Ce dernier absorbe un neutron pour créer de l'uranium-236 instable, qui va rechercher son état stable en se désintégrant en deux fragments de fission radioactifs X et Y , accompagnés de deux à trois neutrons, d'un rayonnement γ et d'un dégagement d'énergie Q :



avec $\bar{\nu} \approx 2.5$ et $Q \approx 207$ MeV.

I.2 Interactions des neutrons avec la matière

N'étant porteurs d'aucune charge, les neutrons n'ont pratiquement pas d'interactions avec le cortège électronique des atomes, leurs principales interactions se font lors de leurs rencontres avec les noyaux [2].

I.2.1 Réaction de diffusion

La réaction de diffusion se produit lorsqu'un neutron vient heurter un noyau au repos. Ce dernier émet un neutron unique qui peut être différent du neutron initial. La diffusion peut être élastique ou inélastique et dans les deux cas elle permet de ralentir les neutrons.

diffusion élastique (n, n) :

Dans une réaction de diffusion élastique entre un neutron et un noyau cible, il n'y a pas d'énergie transmise pour une excitation nucléaire. Le moment et l'énergie cinétique sont conservés. La diffusion élastique peut se faire de deux manières :

- Un neutron frappe un noyau, lui transfère de l'énergie et rebondit dans une direction différente. Le noyau cible absorbe l'énergie perdue par le neutron et se met en mouvement, c'est la diffusion élastique potentielle.
- Parfois, le noyau absorbe le neutron pour former un noyau composé, puis le réémet avec la même énergie cinétique, c'est la diffusion élastique résonnante.

diffusion inélastique (n, n') :

Dans une diffusion inélastique, le neutron incident est absorbé par le noyau cible pour former un noyau composé. Ce dernier va se désexciter en émettant un nouveau neutron, moins énergétique, et un photon γ . La somme de l'énergie cinétique du neutron émis, celle du noyau cible et de l'énergie du rayon gamma est égale à l'énergie cinétique du neutron incident.

I.2.2 Réaction d'absorption

La plupart des réactions d'absorption résultent de la capture d'un neutron accompagnée de l'émission d'une particule chargée, d'un ou de plusieurs neutrons, ou d'un rayonnement γ .

- La capture radiative est la réaction nucléaire la plus courante. Le noyau absorbe le neutron incident pour former un noyau composé qui se désexcite en émettant un rayonnement γ . Le noyau produit est un isotope du noyau cible.
- Réactions de transmutation (n, p) ou (n, α) : un noyau peut absorber un neutron pour former un noyau composé qui se désexcitera en émettant une particule chargée : un proton ou une particule α , et un élément pouvant être stable, radioactif, ou dans un état excité. Ces réactions sont dites réactions à seuil, elles ne se produisent qu'à partir d'une certaine énergie spécifique au type de noyau cible. Les réactions ${}^6\text{Li}(n,t)\alpha$ et ${}^{10}\text{B}(n,\alpha){}^7\text{Li}$ en sont des exceptions.
- Réactions (n, xn), $x = 2, 3, \dots$: la plupart de ces réactions sont endoénergétiques, le neutron doit disposer d'une énergie suffisante supérieure à l'énergie seuil pour que la réaction se produise. L'énergie cinétique du neutron incident doit être supérieure à 10 MeV dans l'exemple de la réaction ($n, 2n$).
- Réaction de fission : elle se produit à la suite d'une collision d'un neutron avec certains noyaux lourds tel que l'uranium (${}^{235}\text{U}$). Le noyau lourd se divise en deux noyaux plus légers avec éjection de neutrons supplémentaires et libération d'énergie.

I.2.3 Section efficace de réaction aux neutrons

La probabilité qu'un neutron interagisse avec un noyau selon une réaction donnée dépend non seulement du type de noyau mais aussi de l'énergie du neutron. La probabilité qu'une réaction ait lieu entre un neutron et un noyau est appelée section efficace microscopique σ . Elle est fonction de l'énergie du neutron et s'exprime le plus souvent en barn (1 barn = 10^{-24} cm²).

La figure (I.1) représente les sections efficaces de fission, de diffusion et d'absorption de quelques éléments très utilisés en activation neutronique. Elles ont été obtenues à l'aide du code PREPRO-2007⁽¹⁾ [3] et de la base de données ENDF-B-VII⁽²⁾ [4].

Lorsque, le neutron interagit avec un volume de matière, l'interaction dépend de la section efficace microscopique d'un noyau individuel et du nombre de noyaux présents dans ce volume. Dans ce cas, on parle de section efficace macroscopique qui est donnée par la relation :

$$\Sigma = \frac{\rho \mathcal{N}_a}{M} \sigma$$

où :

ρ : densité du matériau (g cm⁻³);

\mathcal{N}_a : nombre d'Avogadro : (6.022×10^{23} mol⁻¹);

M : masse atomique du matériau (g mol⁻¹);

σ : section efficace microscopique (cm²).

(1). Le code PREPRO-2007 est un ensemble de codes de "prétraitement" des sections efficaces écrites sous un format ENDF. Chaque code effectue une ou plusieurs opérations indépendantes sur les données en vue de leur utilisation dans diverses applications sous une forme plus simple.

(2). Le format ENDF "Evaluated Nuclear Data Files" est hiérarchisée par un enregistrement d'un ensemble de données sur un groupe de matériau, et subdivisée en sections représentées par les entiers MAT, MF et MT qui repèrent respectivement le matériau, le type de données et le type de réaction.

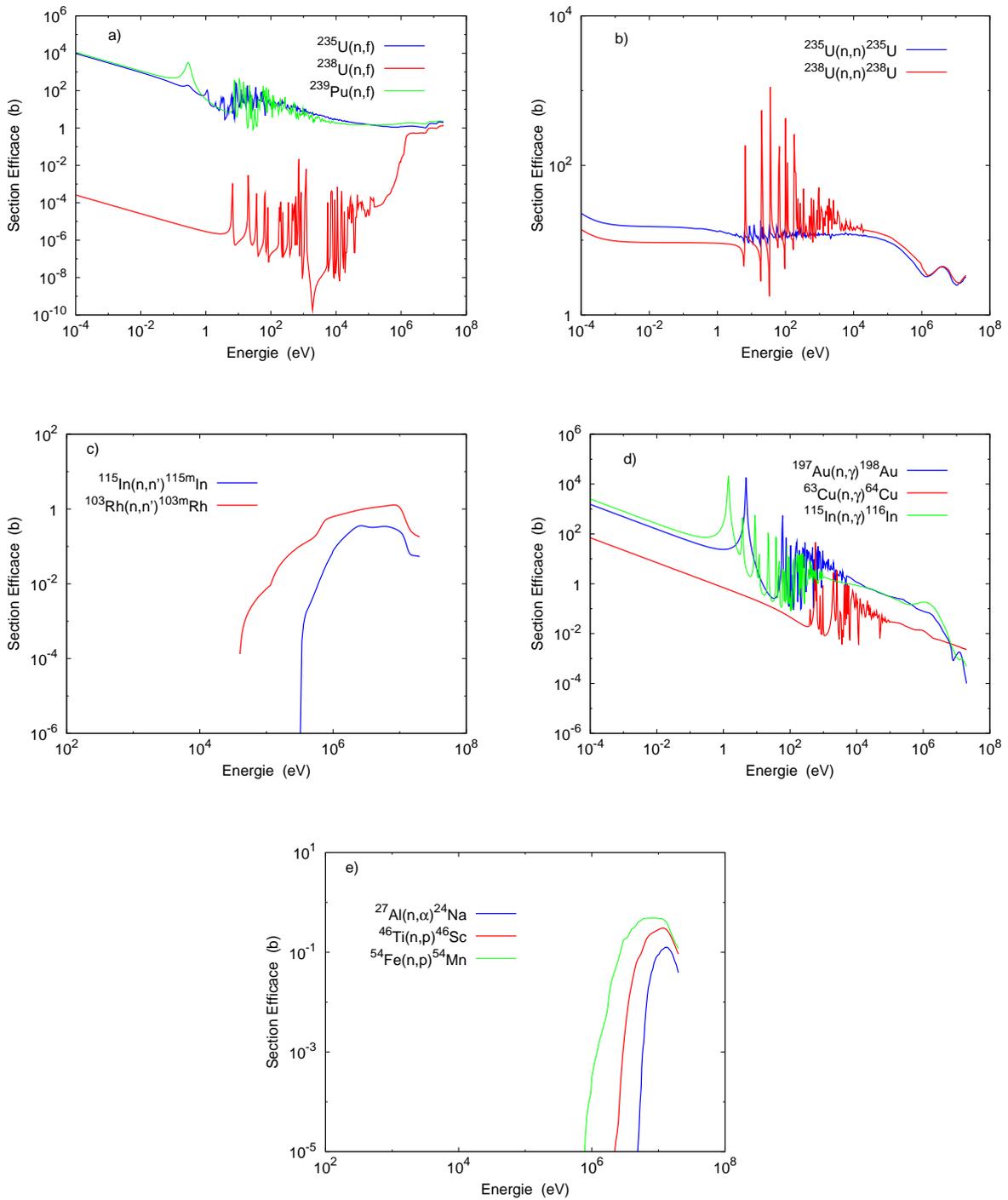


FIGURE I.1 – Sections efficaces types : a) de fission, b) de diffusion élastique, c) de diffusion inélastique, d) de capture et e) de transmutation.

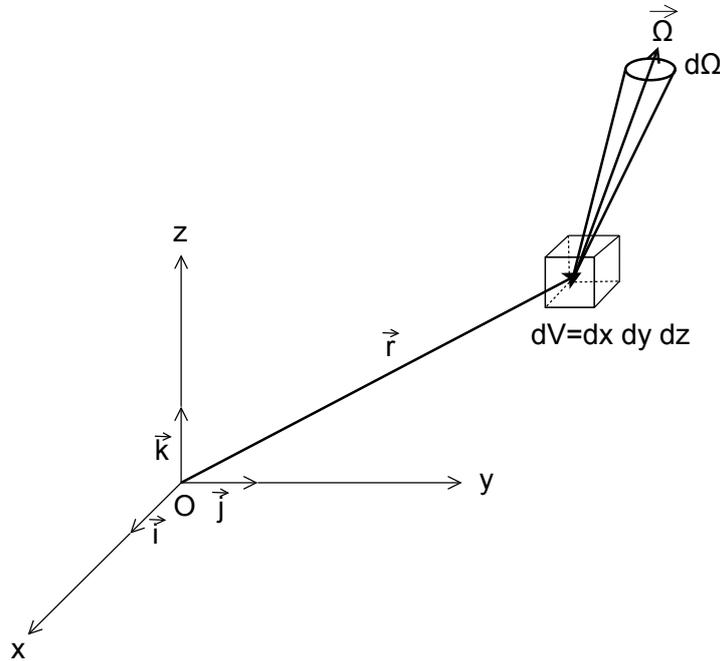


FIGURE I.2 – Élément de volume contenant des neutrons.

I.3 Equation de transport des neutrons

Nous allons faire quelques rappels de neutronique pour définir les différentes grandeurs que nous utiliserons par la suite, pour mettre l'accent sur les concepts clés de notre étude, à savoir les distributions énergétiques et spatiales des flux de neutrons.

La neutronique vise à décrire le comportement des neutrons dans les milieux, et pour pouvoir faire cette description, il est nécessaire de définir certains concepts [5].

I.3.1 Définitions de quelques grandeurs neutroniques

Un neutron est considéré comme étant un objet ponctuel, caractérisé par sa position \vec{r} et sa vitesse \vec{v} . Celle-ci est généralement définie par sa norme v (qui ne dépend que de l'énergie E du neutron) et sa direction $\vec{\Omega}$ (cf. Fig. I.2).

La densité angulaire de neutrons $N(\vec{r}, \vec{\Omega}, E, t)$ est telle que $N(\vec{r}, \vec{\Omega}, E, t) \, dV \, d\vec{\Omega} \, dE$ représente le nombre de neutrons d'énergie comprise entre E et $E+dE$ se trouvant à l'instant

t dans le volume dV autour de \vec{r} et se déplaçant dans la direction $\vec{\Omega}$ à $d\vec{\Omega}$.

Le flux angulaire de neutrons $\Psi(\vec{r}, \vec{\Omega}, E, t)$ est défini à partir de la densité angulaire de neutrons par :

$$\Psi(\vec{r}, \vec{\Omega}, E, t) = v N(\vec{r}, \vec{\Omega}, E, t) \quad (\text{I.1})$$

$\Psi(\vec{r}, \vec{\Omega}, E, t) d\vec{\Omega} dE$ représente le nombre de neutrons d'énergie comprise entre E et $E + dE$, se déplaçant dans la direction $\vec{\Omega}$ à $d\vec{\Omega}$ et qui traversent à l'instant t une surface de 1 cm^2 centrée sur \vec{r} et perpendiculaire à $\vec{\Omega}$.

Le vecteur courant de neutrons $\vec{J}(\vec{r}, \vec{\Omega}, E, t)$ est défini par :

$$\vec{J}(\vec{r}, \vec{\Omega}, E, t) = \vec{\Omega} \Psi(\vec{r}, \vec{\Omega}, E, t) \quad (\text{I.2})$$

Le flux scalaire $\Phi(\vec{r}, E, t)$ est défini en intégrant le flux angulaire sur toutes les directions :

$$\Phi(\vec{r}, E, t) = \int_{4\pi} \Psi(\vec{r}, \vec{\Omega}, E, t) d\vec{\Omega} \quad (\text{I.3})$$

La section efficace macroscopique d'une réaction est notée $\Sigma(\vec{r}, \vec{\Omega}, E, t)$.

La probabilité qu'un neutron de vitesse \vec{v} interagisse avec le milieu selon une réaction donnée, lorsqu'il parcourt au temps t une distance infinitésimale dx en \vec{r} , est donnée par :

$$\Sigma(\vec{r}, \vec{\Omega}, E, t) dx = \Sigma(\vec{r}, \vec{\Omega}, E, t) v dt$$

Etant donné qu'il y a $N(\vec{r}, \vec{\Omega}, E, t)$ neutrons de vitesse \vec{v} au temps t dans le volume dV autour de \vec{r} , il y aura $N(\vec{r}, \vec{\Omega}, E, t) v \Sigma(\vec{r}, \vec{\Omega}, E, t) dt dV$ réactions dans le volume dV autour de \vec{r} pendant dt .

Par conséquent, le taux de réaction T représentant le nombre de réactions par unité de temps engendrées dans dV est défini par :

$$T = \Sigma(\vec{r}, \vec{\Omega}, E, t) \Psi(\vec{r}, \vec{\Omega}, E, t) dV$$

I.3.2 Etablissement de l'équation de transport neutronique

L'équation de transport neutronique dite aussi équation de Boltzmann permet de décrire le comportement de la population neutronique dans son ensemble. Elle est obtenue grâce à un bilan neutronique effectué sur un élément de volume dV $d\vec{\Omega}$ dE autour de \vec{r} , $\vec{\Omega}$ et E .

Taux de création des neutrons :

Les réactions de diffusion et les sources de neutrons participent à la création des neutrons dans l'élément de volume dV .

- Apparition par diffusion : lorsque le neutron subit une diffusion, sa direction et/ou son énergie peuvent changer et peut ainsi pénétrer dans l'élément de volume dV . Le nombre de neutrons qui entrent dans le volume dV par unité de temps est égal à :

$$R_s = \int_{\Omega} \int_E \Sigma_s(\vec{r}, \vec{\Omega}' \rightarrow \vec{\Omega}, E' \rightarrow E, t) \Psi(\vec{r}, \vec{\Omega}', E', t) d\vec{\Omega}' dE' dV$$

où Σ_s est la section efficace macroscopique de diffusion.

- Les sources de neutrons : si le volume dV contient de la matière fissile, le nombre de neutrons prompts S_f créés dans l'élément de volume dV par unité de temps est alors :

$$S_f = \chi(E) N_f dV, \quad \text{avec } N_f = \int_{\Omega} \int_E \nu(E') \Sigma_f(\vec{r}, \vec{\Omega}', E', t) \Psi(\vec{r}, \vec{\Omega}', E', t) d\vec{\Omega}' dE'$$

où :

- N_f : nombre total de neutrons prompts émis par fission ;
- $\chi(E)$: fonction de distribution des énergies des neutrons de fission ;
- Σ_f : section efficace macroscopique de fission ;
- E' : énergie du neutron provoquant la fission ;
- E : énergie du neutron dans le domaine considéré ;
- $\nu(E')$: nombre moyen de neutrons émis par fission.

Les mêmes relations sont valables pour les neutrons retardés qui induisent un terme source de neutrons retardés noté S_r .

D'autres sources de neutrons peuvent contribuer à la population des neutrons dans l'élément de volume dV telles que les neutrons issus des fissions spontanées, des

réactions $(\gamma, n), (\alpha, n), (n, xn)$, etc Elles sont appelées sources indépendantes et notées S .

Taux de disparition des neutrons :

Les neutrons peuvent disparaître par absorption, par diffusion ou par fuite.

- Le nombre de neutrons disparus par absorption ou par diffusion par unité de temps est donné par :

$$R_t = \int \Sigma_t(\vec{r}, \vec{\Omega}, E, t) \Psi(\vec{r}, \vec{\Omega}, E, t) dV$$

où $\Sigma_t = \Sigma_a + \Sigma_s$ est la section efficace macroscopique totale. Σ_a et Σ_s sont les sections efficaces macroscopiques d'absorption et de diffusion.

- L'élément de volume dV est délimité par une surface S . Soit ds un élément de cette surface défini par sa normale sortante $d\vec{s}$, le nombre de neutrons d'énergie E , de direction $\vec{\Omega}$ passant à travers ds par unité de temps est :

$$N(\vec{r}, \vec{\Omega}, E, t) \vec{v} d\vec{s}$$

le nombre total de neutrons sortant de l'élément de volume dV par unité de temps est donc :

$$F = \oint_s N(\vec{r}, \vec{\Omega}, E, t) \vec{v} d\vec{s} = \oint_s \Psi(\vec{r}, \vec{\Omega}, E, t) \vec{\Omega} d\vec{s}$$

Après application du théorème de Green-Ostrogradski ⁽³⁾, l'équation précédente devient :

$$F = \int \vec{\Omega} \vec{\nabla} \Psi(\vec{r}, \vec{\Omega}, E, t) dV$$

où $\vec{\nabla} = \frac{\partial}{\partial x} \vec{i} + \frac{\partial}{\partial y} \vec{j} + \frac{\partial}{\partial z} \vec{k}$ est l'opérateur gradient.

Le bilan neutronique :

Le bilan neutronique consiste à écrire que la variation du nombre de neutrons dans l'élément de volume est égale au nombre de neutrons qui apparaissent dans ce volume moins le nombre de neutrons qui disparaissent. Ce bilan peut se mettre sous la forme :

(3). théorème de Green-Ostrogradski : Le flux d'un champ de vecteur à travers une surface fermée S est égal à l'intégrale de la divergence de ce champ sur le volume V limité par la surface : $\oint_S \Psi(\vec{r}, \vec{\Omega}, E, t) \vec{\Omega} d\vec{s} = \int_V \text{div}(\vec{\Omega} \Psi(\vec{r}, \vec{\Omega}, E, t)) dV$

$$\frac{\partial N}{\partial t} dV = -F - R_t + R_s + S_f + S_r + S$$

L'équation de transport neutronique est alors :

$$\frac{1}{v} \frac{\partial \Psi}{\partial t} = -T_d \Psi + T_s \Psi + T_f \Psi + S_r + S \quad (\text{I.4})$$

où :

- T_d : opérateur de disparition tel que :

$$T_d \Psi = \vec{\Omega} \vec{\nabla} \Psi(\vec{r}, \vec{\Omega}, E, t) + \Sigma_t(\vec{r}, \vec{\Omega}, E, t) \Psi(\vec{r}, \vec{\Omega}, E, t) \quad (\text{I.5})$$

- T_s : opérateur d'apparition par diffusion tel que :

$$T_s \Psi = \int_{\Omega} \int_E \Sigma_s(\vec{r}, \vec{\Omega}', E', t) \Psi(\vec{r}, \vec{\Omega}', E', t) d\vec{\Omega}' dE' \quad (\text{I.6})$$

- T_f : opérateur de production par fission des neutrons prompts tel que :

$$T_f \Psi = \chi(E) \int_{\Omega} \int_E \nu(E') \Sigma_f(\vec{r}, \vec{\Omega}', E', t) \Psi(\vec{r}, \vec{\Omega}', E', t) d\vec{\Omega}' dE' \quad (\text{I.7})$$

L'équation de transport neutronique étant une équation intégral-différentielle, il est nécessaire de lui adjoindre des conditions initiales et aux limites pour pouvoir la résoudre.

I.4 Distributions énergétiques des neutrons

Un champ neutronique se présente le plus souvent sous forme d'une fonction de distribution énergétique. Chaque neutron produit à une énergie donnée, subit des interactions avec les noyaux atomiques des constituants du milieu qui contribuent généralement à lui faire perdre de l'énergie.

I.4.1 Distribution énergétique des neutrons dans un réacteur nucléaire

La distribution énergétique des neutrons d'un réacteur nucléaire est déterminée par la compétition entre les réactions de diffusion et d'absorption. Les neutrons ayant des énergies significativement plus élevées que l'énergie d'agitation thermique, interagissent avec les noyaux du milieu par des réactions de diffusion qui leur font perdre de l'énergie.

D'un autre coté, les neutrons en équilibre thermique ont des probabilités égales de perdre ou de gagner de l'énergie en interagissant avec les noyaux en agitation thermique.

Dans un milieu où la perte moyenne d'énergie par collision et le rapport entre les sections efficaces de diffusion et d'absorption sont élevés, la distribution des neutrons sera proche de l'équilibre thermique. Dans le cas d'un système avec un faible rapport de diffusion sur absorption, les neutrons sont absorbés avant que leur ralentissement n'ait lieu, la distribution neutronique reste proche d'une distribution de fission. Les neutrons dont les énergies ont été dégradées par les diffusions successives sans atteindre l'équilibre thermique sont dits intermédiaires [6, 7].

Les distributions énergétiques des neutrons peuvent être déduites à partir de l'équation de transport neutronique (Eq. I.4) sous les hypothèses d'indépendance du temps (régime stationnaire), de la position et de la direction. De plus, on ne considère que la source de fission et on néglige les sources de neutrons retardés et les sources indépendantes :

$$\Sigma_t(E)\Phi(E) = \int_E \Sigma_s(E' \rightarrow E)\Phi(E')dE' + \chi(E)N_f \quad (\text{I.8})$$

où :

$\Phi(E)$: fonction de distribution des énergies des neutrons ($\text{cm}^{-2} \text{s}^{-1} \text{eV}^{-1}$);

$\Sigma_s(E' \rightarrow E)$: section efficace de diffusion ralentissant un neutron d'énergie E' vers une énergie E ;

L'équation (I.8) est utilisée pour examiner trois situations correspondant à trois gammes d'énergie distinctes :

1. gamme des énergies rapides;
2. gamme des énergies intermédiaires;
3. gamme des énergies thermiques.

Distribution des neutrons rapides :

Aux énergies élevées, le taux de neutrons de fission produits à l'énergie E est plus important que le taux de neutrons de fission ayant été créés à des énergies élevées et qui ont été ralentis vers l'énergie E . Dans ce cas, le terme de diffusion de l'équation (I.8) peut être négligé devant le terme de fission, on obtient :

$$\Phi_r(E) = \frac{\chi(E)N_f}{\Sigma_t(E)} \quad (\text{I.9})$$

La limite inférieure de la gamme d'énergie des neutrons rapides est d'environ 0.1 MeV.

Une expression analytique de la distribution des neutrons rapides a été donnée par Watt [8] :

$$\chi(E) = C \exp(-aE) \sinh(\sqrt{bE}), \quad \text{avec} \quad \int_0^\infty \chi(E) dE = 1$$

où $a = 1 \text{ MeV}^{-1}$ et $b = 2 \text{ MeV}^{-1}$ pour le cas de l'uranium-235. C est une constante de normalisation.

Distribution des neutrons intermédiaires :

La présence de matériaux de faibles masses atomiques ainsi que la présence de modérateurs à l'intérieur du cœur du réacteur font décroître l'énergie des neutrons bien au-dessous de la gamme des énergies rapides, tout en restant au-dessus de la gamme des neutrons thermiques. Cette gamme d'énergie est dite intermédiaire et caractérise le domaine énergétique de ralentissement des neutrons. La limite inférieure de cette gamme est de 1.0 eV.

Dans cette gamme d'énergie il n'y a pas de neutrons de fission, pas d'absorption et très peu de diffusions inélastiques, les diffusions élastiques sont dominantes :

$$\Sigma_s(E' \rightarrow E) = \frac{\Sigma_s(E')}{E'(1-\alpha)} \quad E \leq E' \leq E/\alpha$$

où $\alpha = ((M-1)/(M+1))^2$ et M la masse atomique des noyaux du milieu diffuseur. l'équation (I.8) se réduit à :

$$\Sigma_s(E)\Phi_{int}(E) = \int_E^{E/\alpha} \frac{1}{(1-\alpha)E'} \Sigma_s(E')\Phi_{int}(E') dE' \quad (\text{I.10})$$

La solution de cette équation est de la forme :

$$\Phi_{int}(E) \approx \frac{C}{\Sigma_s(E)E}$$

Plusieurs fonctions empiriques ont été proposées pour représenter le flux de neutrons dans la gamme intermédiaire, parmi elles on retrouve les deux distributions très utilisées [9] :

$$\Phi_{int}(E) = \frac{C}{E^\alpha} \quad 1. \leq \alpha \leq 1.1$$

ou

$$\Phi_{int}(E) = C \frac{\Delta E}{E}, \quad \text{avec } \Delta E = \frac{1}{(1 + (a/E)^b)}$$

où ΔE est la fonction de liaison entre les régions thermique et épithermique, avec les constantes $a = 5 \times 10^{-8} \text{ MeV}$ et $b = 1.5$. C représente l'intensité du flux de neutrons.

Distribution des neutrons thermiques :

Les neutrons thermiques ont des énergies inférieures à 1.0 eV. Aux basses énergies, l'agitation thermique des noyaux du milieu joue un rôle important dans la définition de la forme du spectre. En considérant un cas idéal de milieu où il n'y a que des diffusions, sans absorption, un neutron ralenti subit des diffusions à l'infini : il peut perdre mais aussi gagner de l'énergie fournie par l'agitation thermique des noyaux du milieu. L'équation d'équilibre dans ce cas s'écrit :

$$\Sigma_s(E)\Phi_{th}(E) = \int_0^{E_0} \Sigma_s(E' \rightarrow E)\Phi_{th}(E')dE' \quad (\text{I.11})$$

Pour que cette équation soit satisfaite, il faut que le principe du bilan détaillé soit respecté :

$$\Sigma_s(E \rightarrow E')\Phi_{th}(E) = \Sigma_s(E' \rightarrow E)\Phi_{th}(E')$$

Le flux de neutrons qui satisfait ces conditions suit la distribution de Maxwell-Boltzmann :

$$\Phi_{th}(E) = \frac{E}{(kT)^2} \exp\left(-\frac{E}{kT}\right)$$

Distribution générale des énergies des neutrons dans un réacteur nucléaire :

Dans un réacteur nucléaire, les neutrons sont produits par fission entretenue dans le cœur. Ces neutrons interagissent avec les noyaux des milieux entrant dans la composition du cœur et des matériaux caloporteurs et réflecteurs du réacteur. La succession de ces interactions conduisent à un ralentissement progressif des neutrons jusqu'à l'équilibre thermique avec la structure constituant le blindage du réacteur. Ainsi, en tout point assez proche du cœur du réacteur, les trois distributions énergétiques des neutrons coexistent ensemble et sont continuellement peuplées par les neutrons issues des réactions de fission et de diffusion. La distribution générale des énergies des neutrons est souvent représentée

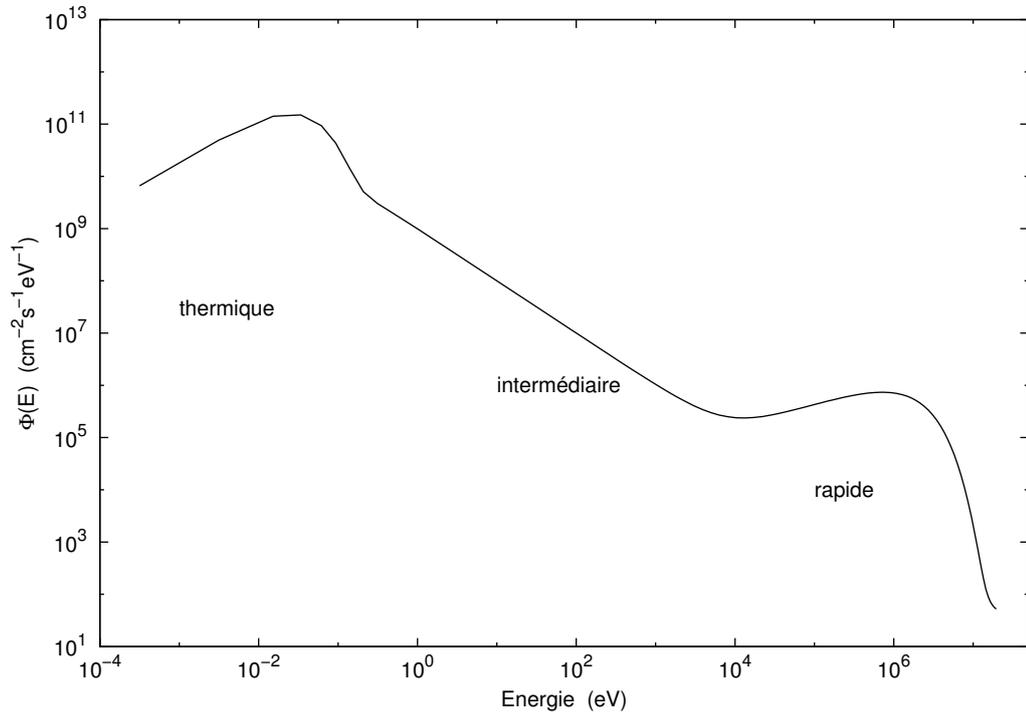


FIGURE I.3 – Distribution des énergies des neutrons dans un réacteur nucléaire.

par une fonction de la forme :

$$\Phi(E) = \begin{cases} A \frac{E}{(kT)^2} \exp\left(-\frac{E}{kT}\right) & E < 1.0 \text{ eV} \\ \frac{B}{E} & 1.0 \text{ eV} \leq E < 0.1 \text{ MeV} \\ C \exp(-E) \sinh(\sqrt{2E}) & 0.1 \text{ MeV} \leq E < 20 \text{ MeV} \end{cases} \quad (\text{I.12})$$

où les paramètres A , B et C sont déterminés par les conditions de continuité.

Une distribution type des énergies des neutrons d'un réacteur nucléaire est représentée sur la figure (I.3).

I.5 Distribution spatiale des neutrons

Un neutron pris individuellement avec une vitesse initiale donnée, se déplace en ligne droite suivant une direction donnée, jusqu'à ce qu'il entre en interaction avec les noyaux atomiques des constituants du milieu qui vont le faire dévier de sa trajectoire. L'étude de la migration des neutrons dans l'espace peut se faire à l'aide de l'équation de la diffusion.

L'équation de la diffusion peut être établie à l'aide d'un bilan neutronique semblable à celui effectué pour obtenir l'équation de transport (I.4), sous les hypothèses suivantes [2] :

- La première hypothèse consiste à s'affranchir de la dépendance en $\vec{\Omega}$. Pour cela, les milieux sont supposés isotropes. Les sections efficaces macroscopiques ne dépendent pas de $\vec{\Omega}$.

Le vecteur courant de neutrons $\vec{J}(\vec{r}, E, t)$, la densité neutronique $n(\vec{r}, E, t)$ et le flux $\Phi(\vec{r}, E, t)$ sont définis par :

$$\vec{J}(\vec{r}, E, t) = \int_{\Omega} \vec{\Omega} \Psi(\vec{r}, \vec{\Omega}, E, t) d\Omega$$

$$\Phi(\vec{r}, E, t) = \int_{\Omega} \Psi(\vec{r}, \vec{\Omega}, E, t) d\Omega$$

$$n(\vec{r}, E, t) = \int_{\Omega} N(\vec{r}, \vec{\Omega}, E, t) d\Omega$$

- La deuxième hypothèse consiste à s'affranchir de la dépendance en énergie. Dans ce cas, il n'y a plus ni apparition, ni disparition par diffusion.

– Le terme $\int_E \Sigma_s(\vec{r}, E' \rightarrow E, t) \Phi(\vec{r}, E', t) dE'$ disparaît de l'équation.

– Le terme $\Sigma_t(\vec{r}, E, t) \Phi(\vec{r}, E, t)$ est remplacé par $\Sigma_a(\vec{r}, t) \phi(\vec{r}, t)$ puisqu'il n'y a plus de disparitions par diffusion.

– La fission ne produit plus que des neutrons d'une seule énergie, l'intégration sur l'énergie n'est plus nécessaire.

- La troisième hypothèse consiste à introduire la loi de Fick :

$$\vec{J} = -D(\vec{r}) \vec{\nabla} \Phi$$

où $D(\vec{r})$ est le coefficient de diffusion du milieu.

Etablissement de l'équation de la diffusion :

L'équation de la diffusion s'obtient en établissant un bilan neutronique semblable à celui de l'équation (I.4). Ce bilan consiste à écrire que la variation du nombre de neutrons dans l'élément de volume dV est égale à la différence entre le nombre de neutrons qui

apparaissent et le nombre de neutrons qui disparaissent de ce volume. L'équation de la diffusion s'écrit alors sous la forme :

$$\frac{1}{v} \frac{\partial \Phi}{\partial t} = -T_d \Phi + T_f \Phi + S_r + S \quad (\text{I.13})$$

où :

- T_d : opérateur de disparition tel que :

$$T_d \Phi = -D(\vec{r}) \Delta \Phi(\vec{r}, t) + \Sigma_a(\vec{r}, t) \Phi(\vec{r}, t) \quad (\text{I.14})$$

- T_f : opérateur de production par fission des neutrons prompts tel que :

$$T_f \Phi = \nu \Sigma_f(\vec{r}, t) \Phi(\vec{r}, t) \quad (\text{I.15})$$

En pratique, les milieux sont supposés homogènes. Dans ce cas, Σ_a et D sont indépendants de \vec{r} . Si on suppose aussi que le régime est stationnaire et on néglige les sources S_r et S , l'équation de la diffusion s'écrit alors sous sa forme canonique :

$$\Delta \Phi(\vec{r}) + B^2 \Phi(\vec{r}) = 0 \quad (\text{I.16})$$

où :

$$\Delta = \frac{\partial^2}{\partial x^2} + \frac{\partial^2}{\partial y^2} + \frac{\partial^2}{\partial z^2} : \text{est l'opérateur Laplacien ;}$$

$$B^2 = \frac{k_\infty - 1}{L^2} : \text{le Laplacien-matière, nommé ainsi car apparaissant comme une valeur propre de l'opérateur Laplacien ;}$$

$$k_\infty = \frac{\nu \Sigma_f}{\Sigma_a} : \text{le coefficient de multiplication des neutrons ;}$$

$$L^2 = \frac{D}{\Sigma_a} : \text{la longueur de diffusion.}$$

Le grand intérêt de l'équation (I.16) est qu'elle permet de mener analytiquement les calculs de flux, pour des géométries simples.

En effet, pour un réacteur cylindrique homogène et nu (cf. Fig. I.4), la distribution spatiale du flux de neutrons se détermine en réécrivant l'équation (I.16) en coordonnées cylindriques et en supposant une symétrie radiale comme suit [5, 6] :

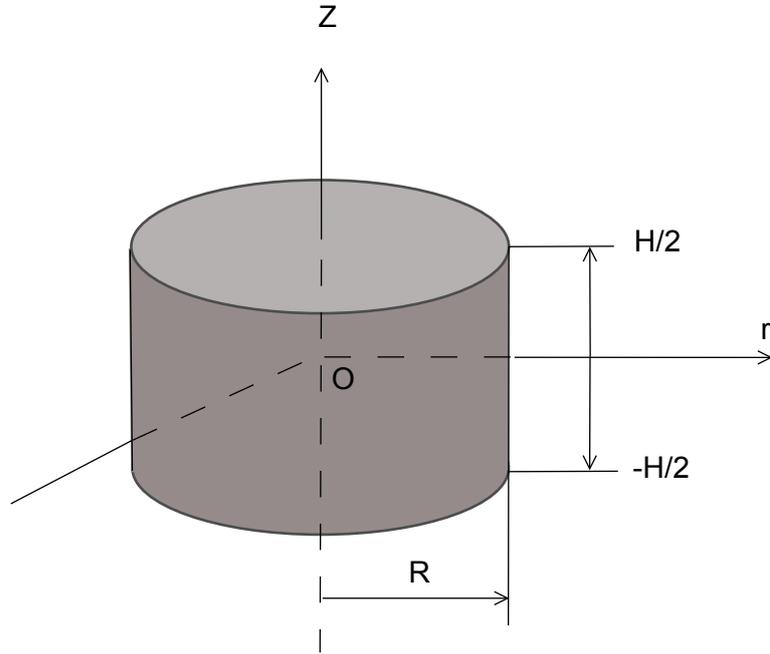


FIGURE I.4 – Réacteur cylindrique homogène et nu.

$$\frac{1}{r} \frac{\partial}{\partial r} \left(r \frac{\partial}{\partial r} \Phi(r, z) \right) + \frac{\partial^2}{\partial z^2} \Phi(r, z) + B^2 \Phi(r, z) = 0$$

En tenant compte des distances d'extrapolation⁽⁴⁾, on aura dans ce cas :

$\tilde{R} = R + \lambda_R$: le rayon extrapolé, avec R le rayon du cylindre et λ_R la distance extrapolée ;

$\tilde{H} = H + \lambda_H$: la hauteur extrapolée, avec H la hauteur du cylindre et λ_H la distance extrapolée.

En procédant à une factorisation des variables $\Phi(r, z) = \phi(r)\psi(z)$ et en supposant $B^2 = B_r^2 + B_z^2$, on aura deux équations à résoudre :

$$\begin{cases} \frac{d^2 \phi}{dr^2} + \frac{1}{r} \frac{d\phi}{dr} + B_r^2 \phi = 0, & 0 \leq r \leq \tilde{R} \\ \frac{d^2 \psi}{dz^2} + B_z^2 \psi = 0, & -\tilde{H}/2 \leq z \leq \tilde{H}/2 \end{cases}$$

(4). Une approximation très utilisée consiste à considérer que le flux s'annule à une distance λ_{ext} située à l'extérieur de la limite du milieu diffuseur : $\Phi(x + \lambda_{ext}) = 0$.

1. La première équation est une équation différentielle de Bessel (pour $n = 0$) ⁽⁵⁾ qui admet une solution de la forme :

$$\phi(r) = C_1 J_0(B_r r) + C_2 Y_0(B_r r)$$

où J_0 et Y_0 sont les fonctions de Bessel respectivement de première et seconde espèce. C_1 et C_2 sont des constantes déterminées par les conditions aux limites. Comme $Y_0(0) \rightarrow -\infty$ pour que la solution ait un sens physique, il faut que le flux soit positif $\phi > 0$ donc $C_2 = 0$. La solution dans ce cas s'écrit :

$$\phi(r) = C_1 J_0\left(\frac{2.405r}{\tilde{R}}\right), \quad B_r = 2.405/\tilde{R}$$

où 2.405 est le premier zéro de la fonction $J_0(r)$.

2. La deuxième équation est une équation différentielle linéaire du second ordre, elle admet une solution de la forme :

$$\psi(z) = C'_1 \sin(B_z z) + C'_2 \cos(B_z z)$$

Après application des conditions aux limites et pour des raisons de symétrie, on obtient $C_1 = 0$ car la fonction $\sin(B_z z)$ est impaire ($\sin(-B_z z) = -\sin(B_z z)$), la solution se réduit à :

$$\psi(z) = C'_2 \cos\left(\frac{\pi z}{\tilde{H}}\right), \quad B_z = \pi/\tilde{H}$$

La distribution spatiale du flux de neutrons dans un réacteur cylindrique homogène et nu est donnée par l'expression :

$$\Phi(r, z) = A J_0\left(\frac{2.405r}{\tilde{R}}\right) \cos\left(\frac{\pi z}{\tilde{H}}\right)$$

où $A = C_1 C'_2$ est une constante.

Cette distribution est représentée sur la figure (I.5) (pour $A = 1$).

(5). Equation différentielle de Bessel :

$$x^2 y'' + xy' + (x^2 - n^2)y = 0, \quad n = 0, 1, 2, \dots$$

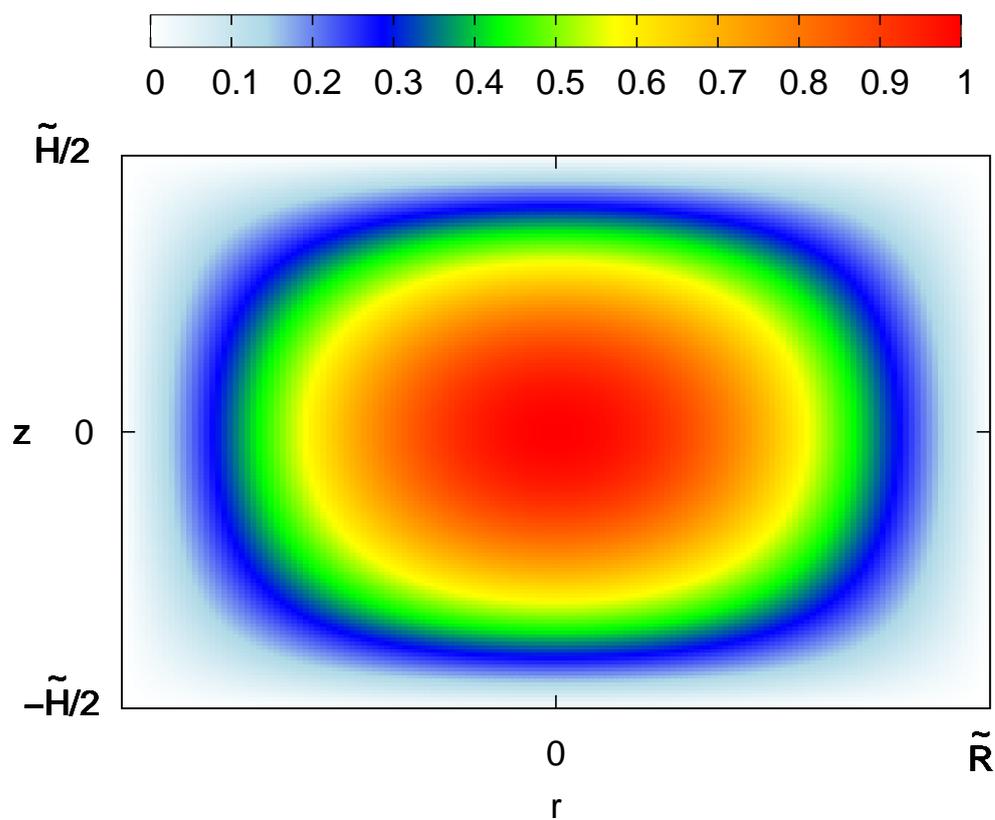


FIGURE I.5 – Distribution spatiale du flux de neutrons dans un réacteur cylindrique homogène et nu.

Chapitre II

Problèmes Inverses, Inférence Bayésienne et Théorie de l'Information

II.1 Introduction aux problèmes inverses

Un problème qui consiste à déduire les effets, les causes étant connues est un problème direct obéissant à la notion de causalité, “les mêmes causes produisent les mêmes effets”. Par contre, un problème qui consiste à déterminer les causes, les effets étant observés, est dit problème inverse. La principale difficulté dans la résolution des problèmes inverses, réside dans le fait que les mêmes effets puissent provenir de causes différentes.

Généralement, pour évaluer quantitativement une grandeur physique inaccessible de manière directe à la mesure, on procède à la mesure d’une autre grandeur directement accessible par l’intermédiaire d’un dispositif expérimental. Dans ce cas, la grandeur mesurée est une convolution entre la fonction de réponse du système de mesure et la grandeur recherchée. Souvent, cette mesure est corrompue par un bruit d’observation, modélisé par un terme additif $b(r)$ (cf. Fig. II.1).

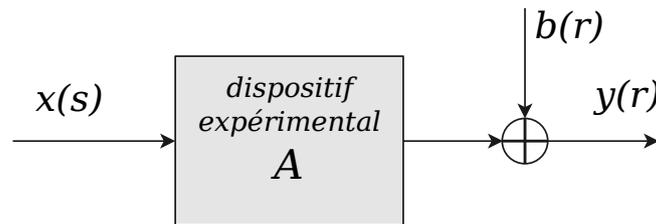


FIGURE II.1 – Représentation d’un système de mesure

Si on note $y(r)$ la mesure et $x(s)$ la grandeur physique d’intérêt, ces deux quantités sont reliées, dans le cas d’une distorsion linéaire, par l’équation intégrale suivante [10] :

$$y(r) = \int A(r, s) x(s) ds + b(r)$$

où $A(r, s)$ est la fonction de réponse du système de mesure, qui est indépendante de la grandeur $x(s)$ en raison de l’hypothèse de linéarité, et $b(r)$ représente le bruit d’observation.

Si le système est en outre invariant, ou stationnaire, on obtient l’équation de convolu-

tion dite intégrale de Fredholm :

$$y(r) = \int A(r-s)x(s)ds + b(r) \quad (\text{II.1})$$

La résolution de ces équations intégrales pour extraire la grandeur $x(s)$ à partir de la mesure $y(r)$ est un problème inverse, qui se rencontre dans de nombreux domaines de la physique appliquée où le système de mesure ne permet pas une mesure directe de la grandeur physique.

La résolution effective d'un problème inverse est nécessairement numérique et la discrétisation du problème s'impose⁽¹⁾. L'équation intégrale (II.1) doit être exprimée en un nombre fini de points r_i , pour pouvoir lui appliquer une formule de quadrature :

$$y(r_i) = \sum_{j=1}^n w_j A(r_i, s_j) x(s_j) + b(r_i) + \xi_i, \quad i = \overline{1, m}$$

où w_j est un facteur de pondération quadratique et ξ_i est une erreur de quadrature. Cette dernière équation peut s'écrire plus simplement :

$$y_i = \sum_{j=1}^n h_{ij} x_j + \varepsilon_i, \quad i = \overline{1, m}$$

ou sous forme matricielle :

$$y = Hx + \varepsilon \quad (\text{II.2})$$

où :

y : le vecteur d'observations de dimension m ;

x : le vecteur des paramètres inconnus de dimension n ;

H : la matrice de transfert du système d'éléments $h_{ij} = w_j A(r_i, s_j)$ de dimension $m \times n$. Si $m > n$ le système est dit surdéterminé, si $m < n$ le système est dit sous-déterminé ;

$\varepsilon = b + \xi$: le vecteur d'erreurs qui regroupe le bruit d'observation et les erreurs de quadrature.

(1). Approcher une intégrale $I = \int_a^b \varphi(s)ds$ par une somme pondérée des valeurs de φ en des points appelés nœuds, revient à écrire $I = \sum_{j=1}^n w_j \varphi(s_j) + \xi$, où ξ est un terme d'erreur de quadrature.

II.2 Problème inverse mal-posé

Les problèmes inverses présentent la caractéristique d'être très souvent des *problèmes mal-posés*.

La notion de problème bien posé, a été introduite dès 1923 par J. Hadamard [11]. Il s'agit d'un problème dont la solution existe, elle est unique et dépend continument des données.

Soit le problème inverse donné par l'équation (II.2) où x et y appartiennent respectivement à deux espaces vectoriels normés X et Y , et $H : X \rightarrow Y$ un opérateur linéaire. Le problème inverse (II.2) est bien posé au sens de Hadamard s'il satisfait les conditions suivantes :

- **Existence** : pour tout $y \in Y$, il existe x tel que $Hx = y$;
- **Unicité** : pour tout $y \in Y$, il y a au plus une solution $x \in X$;
- **Stabilité** : la solution dépend continument des données y , c'est à dire si les données sont faiblement perturbées par δy , le problème reste soluble et l'erreur sur la solution $\delta x \rightarrow 0$ si $\delta y \rightarrow 0$.

Si au moins une de ces trois conditions n'est pas vérifiée, alors le problème est dit mal-posé.

Le fait que la solution d'un problème inverse puisse ne pas exister n'est pas une difficulté, puisqu'il est possible de rétablir l'existence en relaxant la notion de solution et en recherchant une solution approchée. De même, la non-unicité de la solution peut être surmontée en disposant d'informations supplémentaires permettant de choisir la solution la plus adéquate [12].

Cependant, le manque de stabilité est un problème difficile, car les données disponibles sont imprécises et il n'est pas possible d'approcher la solution du problème inverse de manière satisfaisante.

En effet, aucun dispositif expérimental n'est complètement affranchi d'une incertitude, due à la précision finie des mesures. La solution recherchée et les mesures étant reliés par l'expression (II.2), et toute perturbation sur les données mesurées δy , inférieure au niveau

supposé de bruit, entraîne des variations de la solution x dont l'erreur relative théorique est donnée par :

$$\left| \frac{\delta x}{x} \right|^2 \approx \mathcal{K}(H)^2 \left| \frac{\delta y}{y} \right|^2$$

où $\mathcal{K}(H)$ est le nombre de conditionnement de la matrice H ⁽²⁾, il mesure la sensibilité de la solution aux perturbations de la matrice H et à celles des données mesurées. Si sa valeur est élevée, la matrice H est dite mal-conditionnée. Par conséquent, de faibles déviations dans les mesures entraînent de grandes variations de la solution calculée, ce qui se traduit par l'instabilité d'une inversion directe du système d'équations (II.2). La stabilité d'un problème peut être rétablie grâce à une méthode d'inférence statistique ou de régularisation.

La physique mathématique a longtemps ignoré les problèmes mal-posés, les considérant soit dénués de sens physique, soit reflétant une modélisation inadéquate. Hadamard considérait, et c'était une opinion répandue jusqu'à récemment, que seul un problème bien posé pouvait modéliser correctement un phénomène physique et être résolu de manière exacte ou approchée par les méthodes classiques.

La perception actuelle est différente et l'obtention d'une solution n'est plus considérée comme un problème de déduction mathématique, mais plutôt comme un problème d'inférence ou de régularisation, c'est-à-dire de traitement de l'information, il s'agit de savoir tirer les meilleurs conclusions possibles de l'information pertinente même incomplète qui est disponible.

La modélisation probabiliste est un moyen commode et cohérent de décrire une situation d'information incomplète par une approche d'inférence statistique bayésienne.

Nous assistons actuellement à une utilisation massive de l'inférence bayésienne dans la résolution des problèmes inverses rencontrés dans des domaines variés tels que : la spectroscopie, la géophysique, l'acoustique, l'astronomie, l'économie, l'instrumentation et l'imagerie en générale, où les données expérimentales, généralement incomplètes, ne peuvent être remesurées, imposant ainsi leurs exploitation de manière minutieuse [13, 14].

(2). Le nombre de conditionnement d'une matrice H est donné par : $\mathcal{K}(H) = \frac{\lambda_{max}}{\lambda_{min}}$, où λ_{max} et λ_{min} sont les valeurs singulières respectivement maximale et minimale de H .

II.3 Inférence statistique bayésienne

Dans sa définition classique, l'inférence est l'une des composantes principales de la logique, qui est une science de raisonnement et d'argumentation. C'est une opération portant sur des propositions tenues pour vraies et conduisant à la vérité d'une nouvelle proposition en vertu de sa liaison avec les propositions premières.

En statistiques, l'inférence est un ensemble de méthodes permettant de tirer des conclusions fiables à partir de données d'échantillons, tout en respectant certaines règles de bases érigées en principes et axiomes.

L'inférence bayésienne fait parti des méthodes de l'inférence statistique dont la démarche consiste à calculer ou à réviser la probabilité d'une hypothèse. Cette probabilité est interprétée comme étant l'évaluation du degré de confiance accordé à une hypothèse. La démarche bayésienne est régie par l'utilisation de règles strictes de combinaison des probabilités [15, 16].

Il faut préciser que tout problème que l'on traite par une approche bayésienne doit être bien posé dans le sens où une information suffisante doit être apportée pour permettre d'attribuer sans ambiguïté les distributions de probabilité nécessaires au calcul.

II.3.1 Règle de Bayes

Soit \mathcal{H} une hypothèse dont nous voulons évaluer la véracité, \mathcal{D} un ensemble de données en rapport avec cette hypothèse. Le théorème de Bayes repose sur deux règles, la première règle est celle du produit, la seconde est celle de la marginalisation :

- La règle du produit stipule que la probabilité *a posteriori* pour \mathcal{H} , $P(\mathcal{H}|\mathcal{D})$, est obtenue en multipliant sa probabilité *a priori*, $P(\mathcal{H})$, par la probabilité d'avoir observé les données \mathcal{D} en supposant l'hypothèse vraie, $P(\mathcal{D}|\mathcal{H})$, et en divisant le tout par la probabilité d'avoir observé les données indépendamment du fait que l'hypothèse soit vraie ou non, $P(\mathcal{D})$, ce dernier terme représente l'évidence [13, 17, 18] :

$$P(\mathcal{H}|\mathcal{D}) = \frac{P(\mathcal{D}|\mathcal{H})P(\mathcal{H})}{P(\mathcal{D})} \quad (\text{II.3})$$

où $P(\mathcal{H}|\mathcal{D})$ désigne la probabilité que \mathcal{H} soit vraie sachant \mathcal{D} .

Cette règle montre comment ajuster la probabilité attribuée à la véracité d'une hypothèse, lorsque l'état des connaissances change avec l'acquisition des données.

- La règle de marginalisation, du théorème de Bayes, montre comment évaluer le terme représentant l'évidence :

$$P(\mathcal{D}) = \int P(\mathcal{H})P(\mathcal{D}|\mathcal{H})d\mathcal{H} \quad (\text{II.4})$$

La probabilité $P(\mathcal{D})$ constitue une constante de normalisation. L'équation (II.3) se réduit à la forme suivante :

$$P(\mathcal{H}|\mathcal{D}) \propto P(\mathcal{H})P(\mathcal{D}|\mathcal{H}) \quad (\text{II.5})$$

II.3.2 Résolution d'un problème inverse par la règle de Bayes

Dans le cas d'un problème inverse tel que représenté par l'équation (II.2), la règle de Bayes conduit à l'expression :

$$p(x|y) \propto p(y|x)p(x) \quad (\text{II.6})$$

Les données mesurées sont associées à la variable y et les inconnues du modèle sont représentées par la variable x .

La première étape dans toute méthode d'inférence statistique destinée à résoudre un problème inverse consiste à attribuer une loi de probabilité $p(\varepsilon)$ décrivant notre information sur les erreurs ε . L'incertitude englobe la contribution du bruit, les erreurs de discrétisation et de quantification, et le manque de précision des instruments de mesure. C'est une étape essentielle puisqu'elle permet de déduire la distribution d'échantillonnage :

$$P(y|x) = p(\varepsilon) = p(y - Hx) \quad (\text{II.7})$$

Dans la majorité des cas, on choisit une distribution gaussienne centrée pour les erreurs, ce qui donne :

$$P(y|x) = \frac{1}{(2\pi)^{n/2}|R|^{1/2}} \exp \left\{ -\frac{1}{2}(y - Hx)^t R^{-1}(y - Hx) \right\} \propto \exp(-\frac{1}{2}\chi^2(x)) \quad (\text{II.8})$$

où :

R : matrice de covariance de la distribution $p(\varepsilon)$, qui est souvent diagonale ;

$\chi^2(x)$: somme des carrés des erreurs.

Cette hypothèse gaussienne n'est pas une hypothèse sur le caractère aléatoire du bruit. C'est plutôt le choix le moins compromettant pour la distribution du bruit dans une situation d'incertitude [19]. Le bruit est supposé pouvoir prendre toute valeur réelle, il est de valeur moyenne nulle (pas d'erreur de mesure systématique) et d'un écart-type fini. Cette probabilité est appelée "**la vraisemblance**".

La deuxième étape, qui est d'une grande importance dans l'approche bayésienne consiste à attribuer une loi de probabilité aux inconnues du problème. La probabilité *a priori* exprime le degré de vérité attribué à x avant d'avoir observé y . Nous verrons dans les paragraphes suivants que $P(x)$ prend généralement la forme suivante :

$$P(x) \propto \exp(-\alpha \mathcal{F}(x)) \quad (\text{II.9})$$

Le résultat du processus d'apprentissage impliqué dans le théorème de Bayes est la distribution de probabilité *a posteriori* qui constitue le résultat final d'une analyse bayésienne. Elle est la solution du problème inverse puisqu'elle fournit sous la forme d'une distribution de probabilité toute l'information disponible sur l'objet x . On peut ainsi calculer certaines quantités, comme par exemples :

- La moyenne *a posteriori* :

$$E[x] = \int x P(x|y) dx$$

- La moyenne d'une fonction quelconque $h(x)$:

$$E[h(x)] = \int h(x) P(x|y) dx$$

- La probabilité pour que x soit compris dans l'intervalle $]x_0, x_n]$:

$$P(x_0 < x \leq x_n) = \int_{x_0}^{x_n} P(x|y) dx$$

Toutefois, la densité de probabilité ne peut se présenter sous forme analytique pour un problème multi-variables. C'est pourquoi on opte très souvent pour une description

sommaire de la loi *a posteriori* en indiquant son mode, connu sous (**Maximum A Posteriori (MAP)**) [19] :

$$\hat{x}_{MAP} = \underset{x}{arg\ max} P(x|y) \quad (\text{II.10})$$

où $\underset{x}{arg\ max}$ signifie argument du maximum, c'est la valeur de x pour laquelle $P(x|y)$ atteint sa valeur maximale.

Comme les distributions de vraisemblance et *a priori* prennent souvent les formes respectives :

$$P(y|x) \propto \exp\left(-\frac{1}{2}\chi^2(x)\right) \quad \text{et} \quad P(x) \propto \exp(-\alpha\mathcal{F}(x))$$

La recherche d'une solution \hat{x}_{MAP} équivaut à la minimisation du critère composé appelé aussi fonction objectif :

$$\mathcal{L}(x) = \frac{1}{2}\chi^2(x) + \alpha\mathcal{F}(x) \quad (\text{II.11})$$

On reconnaît dans le critère (II.11) une forme désormais classique de régularisation telle qu'elle est apparue dans les problèmes inverses déterministes en dimension finie.

II.3.3 Méthode déterministe de régularisation

Afin d'assurer la stabilité de la solution vis-à-vis des incertitudes sur les mesures tout en conservant l'idée de rechercher une solution approchée, une information supplémentaire est introduite permettant ainsi de bâtir un régulariseur.

La "régularisation" a été introduite avec les travaux de Phillips, Twomey et Tikhonov dans les années 60 [20, 21, 22]. Elle consiste à reformuler le problème inverse mal-conditionné, comme problème de minimisation "augmenté". Tikhonov a démontré que l'introduction d'une information "*a priori*" par le biais d'une fonctionnelle $\mathcal{F}(x)$ diminue la sensibilité de la solution x aux erreurs de mesure. Régulariser un problème mal-posé, revient à le remplacer par un autre bien posé, de sorte que l'erreur commise soit compensée par le gain de stabilité, il s'agit donc de minimiser la fonction composée suivante :

$$\min \{ \|Hx - y\|_{Y^2} + \alpha \|\mathcal{F}(x)\|_{X^2} \} \quad (\text{II.12})$$

où $\mathcal{F}(x)$ est la fonctionnelle stabilisatrice; α est un coefficient de régularisation dont la valeur est d'une importance critique pour cette méthode.

II.3.4 Analyse bayésienne séquentielle

Dans le cas où l'objet x a été mesuré à l'aide de deux séries de mesures indépendantes y_1 et y_2 , le théorème de Bayes permet de faire une analyse séquentielle de ces données, ou bien de relier les deux série de mesures dans une même relation [13, 17] :

$$\left\{ \begin{array}{l} P(x|y_1) \propto P(y_1|x)P(x) \\ et \\ P(x|y_2, y_1) \propto P(y_2|x)P(x|y_1) \end{array} \right.$$

d'où :

$$P(x|y_2, y_1) \propto P(y_2|x)P(y_1|x)P(x) \tag{II.13}$$

II.4 Information *a priori*

Dans le cas de l'approche probabiliste de l'inversion, l'interprétation fréquentiste des probabilités entretient une confusion dans l'analyse bayésienne. Ainsi, il est souvent reproché à l'estimation bayésienne de dépendre de la connaissance d'un hypothétique "vrai modèle" aléatoire ayant engendré l'objet à reconstruire. Il faut préciser que les hypothèses probabilistes ne sont pas des hypothèses sur le caractère "aléatoire" de l'objet, ou du bruit affectant les données, mais des choix d'un mode de représentation d'une information *a priori* incomplète ou d'une connaissance incertaine compatible avec l'outil d'inférence choisi.

Il existe une voie, de plus en plus reconnue, qui vise à concilier la théorie bayésienne avec la conception fréquentiste. Dans cette perspective, l'approche développée par Jeffreys dans les années trente [23], consiste à assigner une probabilité *a priori* dite *non-informative* quand on ne dispose d'aucune connaissance sur les valeurs prises par les inconnues du problème.

En pratique, ces probabilités sont des distributions vagues qui ne favorisent aucun choix particulier. Les données orientent la résolution du problème traité. De ce point de vue, l'inférence bayésienne fournit des méthodes de référence adaptées à des situations nécessitant une analyse robuste [24].

Le problème de la conversion d'une information *a priori* en une loi de probabilité est un problème difficile et encore largement ouvert. La principale difficulté réside dans

le fait que rarement en pratique, l'information *a priori* se présente directement sous une forme probabiliste. Souvent, les seules informations disponibles sur la grandeur recherchée sont données sous forme de descriptions. La grandeur recherchée est positive, bornée, de variation douce ou constante par morceaux ou par région. Le problème est de construire des lois de probabilité qui puissent satisfaire les descriptions données.

A cette fin, il existe plusieurs méthodes de construction de l'information *a priori*, certaines reposent sur la construction des modèles Markoviens, d'autres se basent sur des principes informationnels, elles sont dites à "maximum d'entropie" ou à "minimum d'information de Fisher".

II.4.1 Théorie de l'information et entropie

La théorie de l'information traite des propriétés mathématiques d'un signal physique, émis par une source, qui évolue dans un milieu pour aboutir finalement à un récepteur. Cette théorie porte principalement sur les relations et les propriétés mathématiques assurant la similitude entre le signal reçu et le signal émis.

Il est défini un système dit de communication constitué d'une source d'information émettant un message choisi parmi les multitudes de moyens de communication adoptés et qui peut consister en un ensemble de mots écrits ou parlés, en images, ou en données.

Un émetteur transforme ce message en un signal, parmi les signaux physiques disponibles, et l'envoie par le canal de communication de l'émetteur vers le récepteur. Durant le processus de transmission, certains éléments non émis par la source, s'ajoutent au signal et peuvent l'altérer de sorte que le signal reçu ne corresponde plus exactement au signal initial. Cette altération est appelée effet du bruit. Une des questions principales que l'on se pose au sujet d'un tel système de communication porte sur la concordance entre le signal reçu et le signal initial. Cela revient à assurer une méthode d'interprétation du signal reçu qui permet de diminuer les effets indésirables du bruit.

Une approche de garantie de la concordance consiste à définir au préalable une quantité qui représente une mesure de l'information de sorte que la contribution éventuelle du bruit soit elle-même quantifiée ou estimée. Toutefois, lorsque l'on considère le problème de l'information tel que perçu par le système de réception, il arrive des situations où le bruit et le signal soient difficilement discernables, car d'une part le signal vrai est inconnu et d'autre part la nature du bruit est proche de celle du signal.

L'analyse de l'information, telle que développée par Shannon [25, 26], se base sur une approche probabiliste du traitement de la concordance entre le signal reçu et le signal transmis.

Considérons un ensemble de N mots M_1, \dots, M_N , de probabilité d'occurrence P_1, \dots, P_N , avec $\sum P_i = 1$.

L'information apportée par la connaissance d'un mot de probabilité P_i , notée $I(M_i)$ est donnée par :

$$I(M_i) = -\alpha \log(P_i)$$

où : α est une constante arbitraire.

On s'intéresse également à l'information apportée en moyenne par ces mots $\{M_1, \dots, M_N\}$. Cette information caractérisera par exemple l'information moyenne émise par une source. Cette information ne dépend que de la loi P . On la note $S(P)$, ou $S(P_1, \dots, P_N)$, ou encore $S(X)$, où X représente une variable aléatoire prenant ces valeurs dans $\{M_1, \dots, M_N\}$ et de densité de probabilité P :

$$S(P) = E[I(X)] = -\alpha \sum_{i=1}^N P_i \log(P_i)$$

Cette relation a été établie par Shannon (1948) [25], et indépendamment par Wiener (1948) [27] dans son ouvrage intitulé : "Cybernetics". Le parallèle avec l'entropie de la thermodynamique et de la physique statistique n'est pas fortuit. Shannon a reconnu avoir été guidé par les résultats de Boltzmann, et l'anecdote conte que c'est Von Neumann qui a conseillé à Shannon de baptiser "entropie" sa mesure d'information, en raison de la similitude des expressions.

Cette notion d'entropie a eu un très grand usage dans le domaine du traitement de l'information et particulièrement en codage et compression des données en télécommunications.

En 1957, Jaynes a introduit le principe du maximum d'entropie pour l'attribution d'une loi de probabilité à une variable aléatoire, lorsque la connaissance sur cette variable

est incomplète [28, 29, 30]. Depuis, ce principe a eu une influence importante dans divers domaines du traitement de l'information et de l'inférence en général.

II.4.2 Modèles entropiques

L'information *a priori* entropique peut dériver directement de la nature des mesures. Selon les cas, plusieurs modèles sont possibles :

Modèle d'entropie de Shannon :

Les grandeurs physiques accessibles à la mesure par l'intermédiaire d'un dispositif expérimental, tels que l'intensité lumineuse sur une image ou le flux énergétique le long d'un spectre, sont des quantités positives et additives [31]. On peut, dans ce cas, procéder avec un raisonnement semblable à celui proposé par Gull et Daniell [32, 33, 34] dans leur "modèle des singes".

Ce modèle consiste à imaginer que les images sont produites par une équipe de singes, lançant N grains d'intensité lumineuse n_i , identiquement sur les pixels i de l'image. Cette présentation singulière a pour but de souligner que les images possibles sont aléatoires, et que la répartition, en raison sans doute des lancers mal coordonnés des singes, est souvent proche d'une répartition uniforme.

Parmi les images possibles produites par les singes, certaines sont en accord avec les données disponibles, c'est-à-dire vérifient $y = Hx$, au terme de bruit additif près. A chacune des configurations possibles, en accord avec les données, correspondent plusieurs images déduites par permutation des grains sur les différents sites, en conservant bien entendu les intensités inchangées. L'image qui possède la plus grande multiplicité aura alors été produite le plus grand nombre de fois.

La multiplicité P est donnée par la loi multinomiale :

$$P(n_1, n_2, \dots, n_K) = N! \prod_{i=1}^K \frac{1}{n_i!}$$

On fait apparaître l'entropie $S(P)$ en utilisant l'approximation de Stirling⁽³⁾ :

$$S(P) = \log(P) \approx - \sum_{i=1}^K (\tilde{n}_i) \log(\tilde{n}_i) \quad (\text{II.14})$$

avec $\tilde{n}_i = n_i/N$ on retrouve l'entropie de "Shannon".

Modèle d'entropie relative :

On peut obtenir une autre expression d'entropie dite entropie relative, par un raisonnement selon le modèle des singes, mais en supposant cette fois-ci que les singes aient été informés de l'image qu'ils ont à créer. Au lieu de lancer les grains d'intensité lumineuse n_i uniformément sur la surface de l'image, ils les lancent préférentiellement sur tel ou tel pixel i . Cette préférence est affichée par une loi de probabilité p_1, p_2, \dots, p_K et la probabilité d'observer la répartition n_1, n_2, \dots, n_K est alors donnée par la loi multinomiale :

$$P(n_1, n_2, \dots, n_K, p_1, p_2, \dots, p_K) = N! \prod_{i=1}^K \frac{p_i^{n_i}}{n_i!}$$

qui correspond à l'entropie $S(P)$ relativement à une distribution de référence p :

$$S(P) = \log(P) \approx - \sum_{i=1}^K \tilde{n}_i \log\left(\frac{\tilde{n}_i}{p_i}\right) \quad (\text{II.15})$$

Modèle d'entropie relative modifiée :

Une autre possibilité peut se présenter, si on considère que chaque image est constituée par un ensemble de grains d'intensités lumineuses positives, associées à un ensemble de sites recouvrant toute la surface de l'image. Ces grains résultent du remplissage par de petites quantités aléatoires d'intensité lumineuse n_i distribuées selon une loi de Poisson, de manière à ce que la valeur moyenne dans le site i soit une valeur positive et connue m_i [31]. La probabilité d'observer la répartition n_1, n_2, \dots, n_K est donnée par :

$$P(n_1, n_2, \dots, n_K) = \prod_{i=1}^K \frac{m_i^{n_i}}{n_i!} e^{-m_i}$$

(3). Approximation de Stirling : $\log(N!) \approx N \log(N) - N$ pour N assez grand.

En utilisant l'approximation de Stirling comme précédemment on obtient :

$$S(P) = \log(P) \approx - \sum_{i=1}^K n_i \log\left(\frac{n_i}{m_i}\right) + (m_i - n_i) \quad (\text{II.16})$$

On retrouve ainsi l'entropie relative plus un terme correctif $(m_i - n_i)$.

II.4.3 Information de Fisher

La notion "d'information" a été proposée pour la première fois par le chercheur anglais R.A. Fisher, qui s'est intéressé à la précision des mesures dès 1920 [35].

Selon son concept, lorsque l'on s'intéresse aux caractéristiques d'une population nombreuse, voire infinie comme c'est le cas limite auquel on est ramené en permanence, on ne peut ni connaître ni traiter les informations trop abondantes relatives à chacun des individus qui la composent.

Le problème devient donc d'être capable de décrire correctement la population au moyen d'indicateurs de synthèse, pouvant être fournis par des échantillons issus de la population à étudier. Plus les données chiffrées que l'on peut extraire d'un échantillon représentent correctement la population de référence, plus l'information contenue dans cet échantillon est considérée comme pertinente.

Il pose les fondements de la théorie de l'estimation statistique (1921-1925) [36, 37], où il a défini une grandeur qui permet de quantifier l'information contenue dans un échantillon de mesures.

Concept d'information de Fisher :

Dans le contexte générale de l'estimation paramétrique, étant donnée une observation x , et un système spécifié par un paramètre physique θ , la probabilité d'apparition de ce paramètre θ peut être mesurée par une fonction $p(\theta, x)$.

Puisque θ est inconnu, il semble alors naturel de favoriser les valeurs de θ pour lesquelles $p(\theta, x)$ est élevée, c'est la notion de vraisemblance de θ pour l'observation x . L'idée de vraisemblance a été proposée par Gauss (1821) et connue par la loi qui porte désormais son nom "Loi de Gauss". Toutefois, la fondation d'une entière méthodologie développant cette idée revient au statisticien R.A. Fisher.

Selon la théorie de l'estimation, le meilleur estimateur non biaisé noté $\hat{\theta} = \hat{\theta}(x)$ ⁽⁴⁾ est celui qui obéit à la relation connu sous l'appellation d'inégalité de Cramer-Rao [38], qui constitue un résultat statistique très important :

$$\epsilon^2 I(\theta) \geq 1 \quad (\text{II.17})$$

où $I(\theta)$ est l'information de Fisher donnée par l'expression :

$$I(\theta) = \int \left(\frac{\partial \log(p(\theta, x))}{\partial \theta} \right)^2 p(\theta, x) dx \quad (\text{II.18})$$

et ϵ^2 ⁽⁵⁾ est l'erreur quadratique moyenne.

On montre que cet estimateur est dit efficace. Tout autre estimateur possède une erreur quadratique plus grande.

L'inégalité de Cramer-Rao permet de montrer que la valeur d'une telle information est proportionnelle à la faible variabilité, c'est à dire au fort degré de certitude, des conclusions qu'elle permet de tirer. Cette idée est à l'origine de toute la théorie de l'estimation et de l'inférence statistique. C'est exactement celle que l'on retrouvera vingt ans plus tard chez Shannon, exprimée en des termes non plus statistiques mais probabilistes.

Forme scalaire de l'information de Fisher :

Le concept d'information de Fisher a été exploité dans les travaux de B.R. Frieden [38], pour formuler son principe d'unification appelé "Extreme Physical Information", à partir duquel il dérive toutes les équations de la physique : les équations de Maxwell, les équations de champ d'Einstein, Les équations de mécanique quantique de Dirac et Klein-Gordon, ainsi que plusieurs lois de la physique statistique.

D'après les travaux de Frieden [39, 40], l'information de Fisher peut prendre une forme scalaire particulière donnée par l'équation ci-dessous :

$$I(x) = \int \frac{1}{p(x)} \left(\frac{\partial p(x)}{\partial x} \right)^2 dx \quad (\text{II.19})$$

où $p(x)$ est la densité de probabilité d'une observation x .

Selon le raisonnement de Frieden, l'équation (II.19) peut être interprétée de la manière

(4). Un estimateur non biaisé vérifie la relation : $E [\hat{\theta}(x)] = \int \hat{\theta}(x) p(\theta, x) dx = \theta$.

(5). L'erreur quadratique moyenne est définie par : $\epsilon^2 = E \left[\left(\hat{\theta}(x) - \theta \right)^2 \right] = \int \left(\hat{\theta}(x) - \theta \right)^2 p(\theta, x) dx$.

suivante : si $p(x)$ est une distribution gaussienne avec une variance σ^2 , alors l'équation (II.19) donne simplement $I = 1/\sigma^2$. D'après cette relation, une densité de probabilité représentée par un pic étroit, σ petit, donne une grande quantité d'information I . Par contre une densité de probabilité représentée par un pic large, σ élevé, donne une petite quantité d'information I . La largeur du pic de la densité de probabilité mesure le degré de désordre qui existe dans la prédiction de x . Un pic étroit et de hauteur élevée indique un faible désordre, et inversement un pic large et plat indique un grand désordre.

Une mesure apparenté à cette quantité I est l'entropie de Shannon S . De manière similaire à l'entropie, une *minimisation* de l'information de Fisher peut conduire à résoudre certains problèmes physiques [39].

II.5 Méthode de résolution du problème inverse

La résolution du problème inverse (Eq. II.2) suivant une approche d'inférence bayésienne revient à la minimisation de la fonction objectif \mathcal{L} (Eq. II.11). Le choix de la méthode de minimisation dépend de la fonction. Si cette dernière est unimodale, c'est-à-dire possède un seul minimum, les méthodes classiques du type descente de gradient peuvent être utilisées pour atteindre la solution. Or souvent, la fonction est multimodale et le recours à des méthodes de recherche du minimum global s'impose. Dans ce cas, les méthodes les plus efficaces sont les méthodes stochastiques tel que le recuit simulé.

II.5.1 L'algorithme du recuit simulé

L'algorithme du recuit simulé utilise un processus analogue au processus métallurgique appelé recuit. En effet, pour qu'un métal retrouve une structure proche du cristal parfait, qui correspond au minimum d'énergie de la structure atomique du métal, on porte celui-ci à une température élevée, puis on le laisse refroidir lentement de manière à ce que les atomes aient le temps de s'ordonner régulièrement.

Quand le processus est terminé, le métal est dans un état ordonné à un niveau d'énergie bas. Ce niveau d'énergie est d'autant plus bas que la température de démarrage est suffisamment élevée et que le processus de refroidissement est suffisamment lent.

Si le refroidissement est trop rapide, des défauts peuvent geler dans le solide et des structures métastables peuvent être atteintes plutôt qu'une structure cristalline à basse énergie. C'est à dire que le métal est bloqué dans un état d'énergie métastable non optimal,

Algorithme II.1 Recuit Simulé

```

initialiser un compteur  $k \leftarrow 0$ 
initialiser la température  $T$ 
sélectionner une solution courante  $x_c$ 
évaluer  $\mathcal{L}(x_c)$ 
repeat
  repeat
    choisir une nouvelle solution  $x_n$  dans le voisinage de  $x_c$ 
    évaluer  $\mathcal{L}(x_n)$ 
    if  $\mathcal{L}(x_n) < \mathcal{L}(x_c)$  then
       $x_c \leftarrow x_n$ 
    else if  $r < \exp\left(-\frac{\mathcal{L}(x_n) - \mathcal{L}(x_c)}{T}\right)$  then
       $x_c \leftarrow x_n$  ▷  $r$  : nombre aléatoire uniforme  $\in [0, 1)$ 
    end if
  until (Condition d'arrêt)
   $T \leftarrow g(T, k)$  ▷ faire décroître la température
   $k \leftarrow k + 1$ 
until (Arrêt des calculs)

```

dû au fait que la barrière d'énergie autour de cet état est tellement élevée que l'énergie thermique du système ne peut pas la surmonter. Le concept du refroidissement lent signifie que le système maintien son état d'équilibre thermique tout le long du processus de recuit.

Le processus du recuit a été transposé à l'optimisation et a donné une méthode simple et efficace de recherche du minimum global d'une fonction objectif $\mathcal{L}(x)$, assimilée à une énergie, qui peut avoir des minimums locaux d'états métastables. L'équilibre thermique d'un système peut être simulé avec la méthode de Monte Carlo⁽⁶⁾ combinée à une chaîne de Markov tel que proposé par Metropolis et al. (1953) [41] puis par Kirkpatrick (1983) [42].

L'algorithme du recuit simulé (II.1) [43], débute à partir d'une température assez élevée. Par la suite cette température est abaissée par petits paliers. A chaque palier de température la règle de Metropolis est utilisée pour générer une séquence d'états, cette séquence doit être suffisamment longue pour que l'équilibre thermique soit maintenu précis tout le long du processus de refroidissement. Le processus peut être arrêté quand la température devient assez basse.

(6). La méthode de Monte Carlo est une méthode numérique, qui utilise des tirages aléatoires pour réaliser le calcul d'une quantité déterministe.

L'algorithme débute par la sélection de la température initiale T_0 , dont une estimation peut être obtenue en choisissant par exemple :

$$T_0 = 10 \times \mathcal{L}(x_0)$$

où x_0 est une solution initiale générée de manière aléatoire.

Les résultats obtenus avec cet algorithme ne dépendent pas de la solution initiale si la température initiale est suffisamment élevée et le système est maintenu près de l'équilibre thermique tout le long du processus de refroidissement.

Une nouvelle solution x_n est générée dans le voisinage de la solution courante x_c en lui apportant une perturbation légère et aléatoire.

La nouvelle solution générée peut être acceptée pour constituer l'état suivant du système. Le test d'acceptation est fait suivant la règle de Metropolis, décrite comme suit :

- On évalue $\mathcal{L}(x_n)$ et on la compare à $\mathcal{L}(x_c)$. Si $\mathcal{L}(x_n) < \mathcal{L}(x_c)$ le remplacement de x_c par x_n est accepté.
- Le cas $\mathcal{L}(x_n) > \mathcal{L}(x_c)$ est traité d'une manière probabiliste. Un nombre aléatoire r est généré dans l'intervalle $[0,1)$, selon un générateur de nombres aléatoires uniforme, et comparé à $p = \exp(-(\mathcal{L}(x_n) - \mathcal{L}(x_c))/kT)$. Si r est inférieur à p le remplacement est accepté, sinon cette solution est rejetée.

La possibilité de générer des configurations avec $\mathcal{L}(x_n) > \mathcal{L}(x_c)$ rend l'algorithme de Metropolis convenable pour les problèmes d'optimisation. Ces configurations aident le système à quitter les minima locaux de \mathcal{L} en faveur de trouver un meilleur minimum plus global.

La température diminue suivant une fonction de refroidissement donnée par l'expression suivante :

$$T_{i+1} = \beta T_i \quad \text{avec } 0 < \beta < 1$$

Où le paramètre β est généralement proche de 0.9 pour un refroidissement lent.

En pratique, la température peut être considérée assez basse, si le système ne change pas de manière significative entre deux paliers de température. Le processus du recuit est stoppé, si cette valeur est plus petite qu'un seuil préalablement fixé.

La génération des nombres aléatoires est une étape inévitable durant le déroulement de l'algorithme du recuit simulé et le choix d'un bon générateur est primordial pour le bon déroulement des calculs.

Générateur de nombres aléatoires :

Un nombre aléatoire est un nombre tiré au hasard, dont la valeur ne peut être prévue. Utiliser des algorithmes pour créer des nombres aléatoires, peut paraître douteux, étant donné que le caractère aléatoire reste une notion difficile à appréhender. Pourtant, certaines opérations sont suffisamment imprévisibles pour donner des résultats qui semblent aléatoires, les nombres obtenus sont dits "pseudo-aléatoires".

La plupart des algorithmes pseudo-aléatoires produisent des sorties qui sont uniformément distribuées. Une classe très répandue de générateurs utilise une congruence linéaire⁽⁷⁾. D'autres s'inspirent de la suite de Fibonacci⁽⁸⁾ ou font appel à des registres à décalage⁽⁹⁾ dans lesquels le résultat précédent est injecté après une transformation intermédiaire.

Les nombres pseudo-aléatoires produits sont inévitablement entachés d'une caractéristique absente dans une vraie suite aléatoire, la périodicité. La séquence des nombres se reproduit au bout d'un nombre de valeurs appelé période, cette période doit être la plus longue possible. La valeur initiale de la séquence aléatoire est appelée graine (seed en anglais), la même graine donnera toujours la même suite de nombres.

Le générateur "Mersenne Twister" :

Le générateur Mersenne Twister a été développé par Makoto Matsumoto et Takuji Nishimura en 1997 [44]. L'algorithme est basé sur un TGSFR (Twisted Generalised Shift Feedback Register) un type particulier de registre à décalage à rétroaction, qui tient son nom d'un nombre premier de Mersenne. Il est caractérisé par une très bonne rapidité et sa période est de $2^{19937} - 1$. Le générateur Mersenne Twister est très bien adapté pour une simulation Monte Carlo.

(7). Un générateur à congruence linéaire est donné par la suite $x_{n+1} = (ax_n + c) \bmod m$, où a , c , m et x_0 sont des nombres entiers non-négatifs

(8). Un générateur basé sur la suite de Fibonacci est donné par la suite : $x_n = (x_{n-1} + x_{n-2}) \bmod M$ avec $x(0)$ et $x(1)$ en entrée.

(9). La notion de registre à décalage est issue de l'électronique. Le registre contient un certain nombre de bits et à chaque impulsion d'horloge, tous les bits sont décalés d'une case vers la droite. Le bit le plus à droite est donc extrait du registre à décalage et un nouveau bit est inséré dans la partie gauche du registre.

Chapitre III

Détermination des distributions spatiales des flux de neutrons

La distribution spatiale d'un flux de neutrons est une donnée importante de la physique neutronique, puisqu'elle fournit des informations sur la densité des neutrons en n'importe quel point de l'espace.

Une technique de détermination d'une distribution spatiale d'un flux de neutrons est développée. Elle est basée sur une méthode d'inférence bayésienne qui permet de déconvoluer la distribution spatiale du flux de neutrons à partir des distributions de densités de traces sur des détecteurs solides de traces nucléaires (DSTN). La distribution de densités de traces a été obtenue suite à une irradiation aux neutrons d'un dispositif de détection constitué d'un convertisseur de neutrons en particules chargées et d'un détecteur solide de traces nucléaires du type CR-39.

III.1 Détecteurs solides de traces Nucléaires

En 1958, Young [45] fût le premier à avoir observé des dommages latents produits par les fragments de fission de l'uranium dans un cristal de fluorure de lithium. Juste après, en 1959, Silk et Barnes [46] ont pu examiner les traces des fragments de fission grâce à un microscope électronique. Ce sont ces travaux qui ont initié l'idée d'exploiter des matériaux, comme le mica, le zircon, l'apatite et le feldspath, capables d'enregistrer les dommages produits par des particules ionisantes à des fins de datation ou de détection.

En 1962, Price et Walker [47, 48] ont mis au point la technique d'observation par microscope optique de traces individuelles des fragments de fission créés en profondeur dans les milieux condensés. Ils ont montré qu'une attaque chimique différentielle par un acide ou par une base s'effectue préférentiellement le long de la trajectoire des particules dans le détecteur. Ces traitements élargissent les traces jusqu'à atteindre des tailles de l'ordre de $0.5 \mu m$ et les rendent ainsi observables au microscope optique.

En 1975, Fleischer, Price et Walker [49] ont décrit les mécanismes de développement chimique et de formation des traces. Ils ont ainsi étendu le champ d'application de l'étude des traces nucléaires à des domaines aussi variés que la géologie, la biologie, l'archéologie, la physique nucléaire et l'étude des météorites.

Toutes ces observations marquent la naissance d'une nouvelle catégorie de détecteurs nucléaires. Basés sur la formation des traces dans les solides sous l'effet des interactions des rayonnements avec la matière, ces types de détecteurs sont connus sous le nom de

détecteurs solides de traces nucléaires (DSTN). Le grand avantage des DSTN réside dans le fait qu'ils sont insensibles aux rayonnements γ et β dans la limite des dépôts et pertes d'énergies n'induisant pas des modifications structurales de l'ensemble du milieu composant le détecteur [50].

Des matériaux en verre ainsi que des polymères ont été développés pour servir de détecteurs solides de traces nucléaires. On cite par exemple le nitrate de cellulose CN85 et le LR115. Ce dernier est considéré comme le DSTN le plus sensible aux particules α , d'où son utilisation pour la détermination quantitative des concentrations des radionucléides naturels émetteurs α [51, 52, 53].

Les verres dits organiques utilisés en optique médicale sont à base d'un matériau polymère massif de Polycarbonate d'Allyle Diglycol $(C_{12}H_{18}O_7)_n$. Transparent, amorphe et isotrope, il est commercialisé sous le nom de CR-39 pour désigner "Carbonate Rubber" ou "Columbia Resine N° 39". Vers les années quatre-vingt, il fut reconnu à ce polymère des caractéristiques de détecteur solide de traces nucléaires. Rapidement, il a été largement introduit dans le domaine des applications nucléaires ainsi que dans certains volets de la physique des ions lourds [54, 55]. Le CR-39 est parfois utilisé pour la détection des neutrons rapides par le biais des noyaux de recul qui induisent des traces latentes [56]. Lorsqu'il est associé à des convertisseurs pouvant être le siège des réactions nucléaires du type (n,α) dont les plus répandus sont le ^{10}B et 6Li , l'efficacité de détection du CR-39 pour les neutrons est ainsi élargie aux neutrons thermiques et intermédiaires [57].

III.1.1 Formation des traces latentes

Le mécanisme de formation et de conservation d'une trace due au passage d'une particule chargée dans les solides, dépend de la charge et de l'énergie de la particule incidente, ainsi que des propriétés physico-chimiques du milieu traversé.

Différents modèles ont été proposés afin d'expliquer le mécanisme de formation et de conservation des traces latentes dans les solides. Certains se basent sur des notions de perte d'énergie, d'autres sur le taux d'ionisation primaire ou sur la dose déposée autour de la trajectoire de la particule incidente. Le modèle le plus largement accepté par la communauté scientifique dans le domaine des traces nucléaires est celui de l'explosion ionique.

Modèle d'explosion ionique :

Ce modèle a été proposé par Fleischer en 1965 [58]. Il indique que le dommage créé le long des traces dans les solides inorganiques consiste principalement en un déplacement d'atomes.

Une particule chargée traversant un matériau diélectrique, ionise les atomes se trouvant sur son parcours et conduit à l'apparition d'ions positifs autour de sa trajectoire. Les ions formés se repoussent les uns les autres et se déplacent dans le solide vers des positions interstitielles tout en provoquant le déplacement des atomes voisins tel qu'illustré sur la figure (III.1). Ce phénomène crée un long parcours de déformation en forme cylindrique de 4 à 8 nm de diamètre et quelques μm de long, pouvant être visualisée à l'aide d'un microscope électronique, c'est le cœur de la trace.

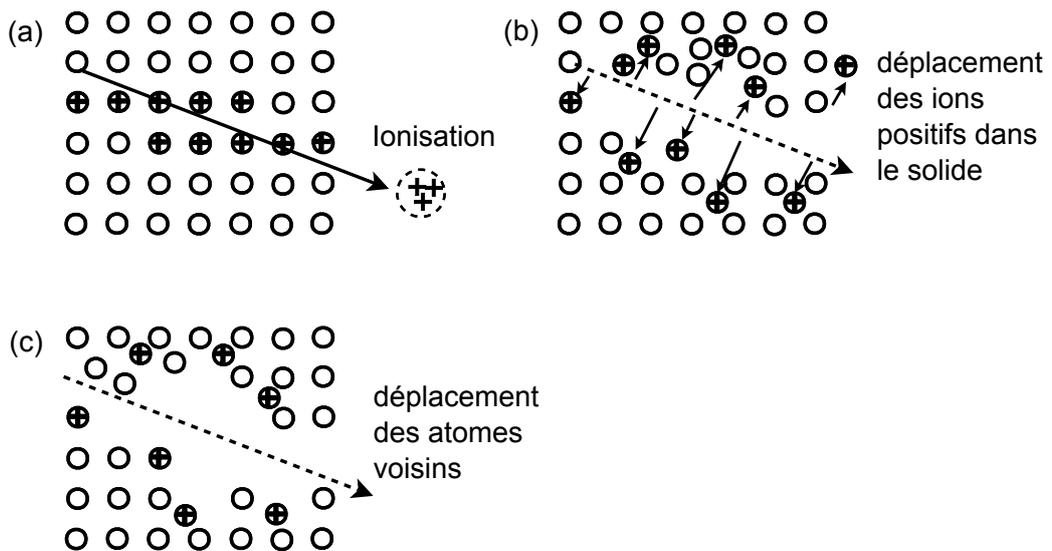


FIGURE III.1 – Modèle d'explosion ionique de formation d'une trace dans un solide inorganique : (a) l'ionisation initiale produite par le passage de la particule, (b) déplacement des ions dans le solide créant des trous et des positions interstitielles libres, (c) déplacement des atomes voisins et formation du cœur de la trace.

Critères de déplacements des atomes :

Un critère permettant aux atomes de se déplacer dans un solide est que les forces de répulsion Coulombienne dans la région d'ionisation doivent être suffisantes pour vaincre les forces de liaison du réseau en termes de contraintes mécaniques.

Lorsqu'une particule incidente traverse un solide, elle ionise les atomes se trouvant sur son parcours et conduit à l'apparition d'ions positifs autour de sa trajectoire. Soit ne la charge moyenne qui apparaît sur chaque ion, et soit a la distance interatomique. La force Coulombienne répulsive qu'exercera chaque ion sur son voisin a pour module $\frac{(ne)^2}{\epsilon a^2}$.

On définit une force locale par unité de surface $\frac{(ne)^2}{\epsilon a^4}$ cette force oblige ces ions positifs à migrer plus profondément dans le solide en déplaçant sur leurs passages les atomes voisins. Ce déplacement d'atomes peut être exprimé à l'aide de contraintes mécaniques représentées par le module de Young Y , d'une valeur approximative de $Y/10$. Une trace sera formée si un nouvel état d'équilibre stable est atteint sans que les atomes reviennent à leurs positions initiales. L'état d'équilibre n'est atteint que si la force électrique est supérieure à la force des contraintes mécaniques :

$$\frac{(ne)^2}{\epsilon a^4} > \frac{Y}{10}$$

cette condition peut être écrite autrement :

$$n^2 > \frac{\epsilon a^4 Y}{10e^2}$$

Cette dernière relation indique qu'une trace peut se former facilement dans les matériaux caractérisés par une faible contrainte mécanique, une faible constante diélectrique et une distance interatomique très courte.

Conditions de formation d'une trace :

Deux conditions sur la concentration et la mobilité des porteurs de charges permettent d'expliquer pourquoi les traces se forment dans les matériaux isolants et les semi-conducteurs de faible conductivité.

La première condition concerne le temps de recombinaison, si le temps nécessaire aux électrons pour neutraliser les ions positifs est très grand devant le temps de déplacement des atomes hors de leurs sites les traces se forment. Dans le cas contraire les électrons

neutralisent les ions positifs avant que ces derniers ne puissent déplacer les atomes voisins. Cette condition restreint la formation des traces aux isolants et exclu les matériaux conducteurs.

La deuxième condition concerne la mobilité des trous. La région d'ionisation le long d'une trace est par essence une région caractérisée par une forte concentration de trous, ces derniers peuvent diffuser rapidement et inhiber la formation des traces. Il s'en suit que beaucoup de semi-conducteurs tels que le silicium et le germanium n'enregistrent pas les traces.

III.1.2 Révélation chimique des traces enregistrées dans les DSTN

La révélation chimique des traces nucléaires consiste en l'immersion du détecteur solide de traces nucléaires dans un bain de réactif chimique. Cette étape est nécessaire si l'on désire observer, dénombrer et analyser la morphologie des traces produites par des particules lourdes chargées dans un solide à l'aide d'un microscope optique. Le développement chimique consiste en une attaque préférentielle du détecteur le long de la trajectoire de la particule, là où le dommage engendré par le ralentissement de la particule incidente présente avec la solution chimique une réactivité spécifique.

La révélation chimique des traces dépend de la nature du réactif chimique, de sa concentration, de la température ainsi que de la durée de révélation [59]. Dans le cas du développement chimique des polymères, on utilise une base concentrée, généralement de l'hydroxyde de sodium NaOH ou de potassium KOH et parfois du permanganate de potassium KMnO_4 , à des températures comprises typiquement entre 40 et 100 °C pour une durée variant de quelques minutes à plusieurs heures.

Pour le cas du CR-39, on utilise généralement un bain de NaOH ou de KOH, de concentration 20%, à une température de 60 °C et pendant une durée de l'ordre de 2 heures.

III.1.3 Géométries des traces révélées

L'apparition d'une trace à la suite d'un traitement chimique, résulte des effets concurrentielles de l'attaque chimique globale caractérisée par une vitesse d'attaque V_B et de l'attaque chimique préférentielle caractérisée par la vitesse d'attaque de la trace V_T . Ces deux paramètres ont fait l'objet de plusieurs études ayant permis d'interpréter l'évolution de la forme des traces dans les DSTN [60, 61].

La trace révélée prend généralement une forme conique dont l'axe peut être normale ou oblique par rapport à la surface du détecteur, suivant l'angle d'incidence de la particule ionisante comme illustré sur la figure (III.2 (a) et (b)) [62].

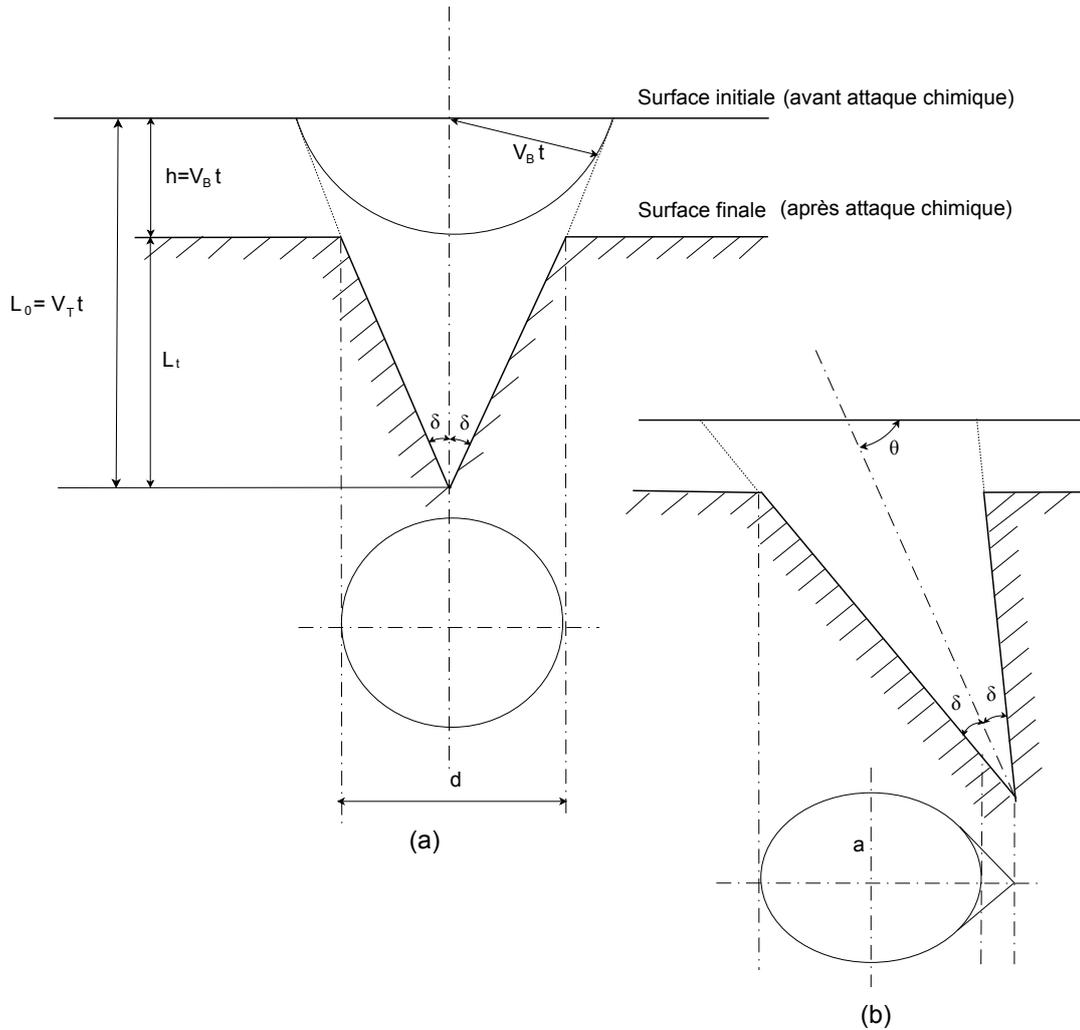


FIGURE III.2 – Géométrie d'une trace nucléaire (a) Cas d'une incidence normale (b) Cas d'une incidence oblique.

L'étude de la géométrie de la trace révélée, est réalisée en supposant que les vitesses V_B et V_T sont constantes. Le diamètre de la trace d et l'angle au sommet δ sont donnés par les relations suivantes :

$$d = 2V_B t \sqrt{\frac{V_T - V_B}{V_T + V_B}}$$

$$\delta = \arcsin \frac{V_B}{V_T}$$

où :

h : épaisseur décapée du détecteur sous l'action de V_B pendant une durée de révélation t ;

L_t : longueur finale de la trace ;

L_0 : longueur initiale de la trace ;

d : diamètre final de la trace.

Lorsqu'un détecteur solide de traces nucléaires est irradié par des particules chargées, les traces dues aux particules d'incidence obliques prennent généralement une forme elliptique. Toutefois, elles ne sont pas toutes observables après révélation chimique, même si les dégâts créés sont importants, puisque leurs parcours se trouvent dans la partie du film qui sera décapée. Ce fait est lié à la contrainte de l'angle critique d'enregistrement.

La longueur du petit axe de l'ellipse a et l'angle critique θ_c sont donnés par les deux relations suivantes :

$$a = 2V_B t \sqrt{\frac{V \sin \theta - 1}{V \sin \theta + 1}} \quad \text{avec} \quad V = \frac{V_T}{V_B}$$

$$\theta_c = \arcsin \frac{V_B}{V_T} = \delta$$

Si une particule arrive sur le détecteur suivant un angle $\theta < \theta_c$, elle produira une trace proche de la surface du détecteur, qui sera décapée par le traitement chimique. Cette trace est donc perdue et il convient d'en tenir compte lors du calcul d'erreurs sur la densité des traces.

L'opération de comptage des traces peut être réalisée de manière manuelle par un dénombrement visuelle des traces à l'aide d'un microscope optique, ou en utilisant un outil informatique de reconnaissance des formes et de dénombrement par traitement d'image. Dans les deux cas, il est important de savoir différencier les traces révélées, reconnaissables

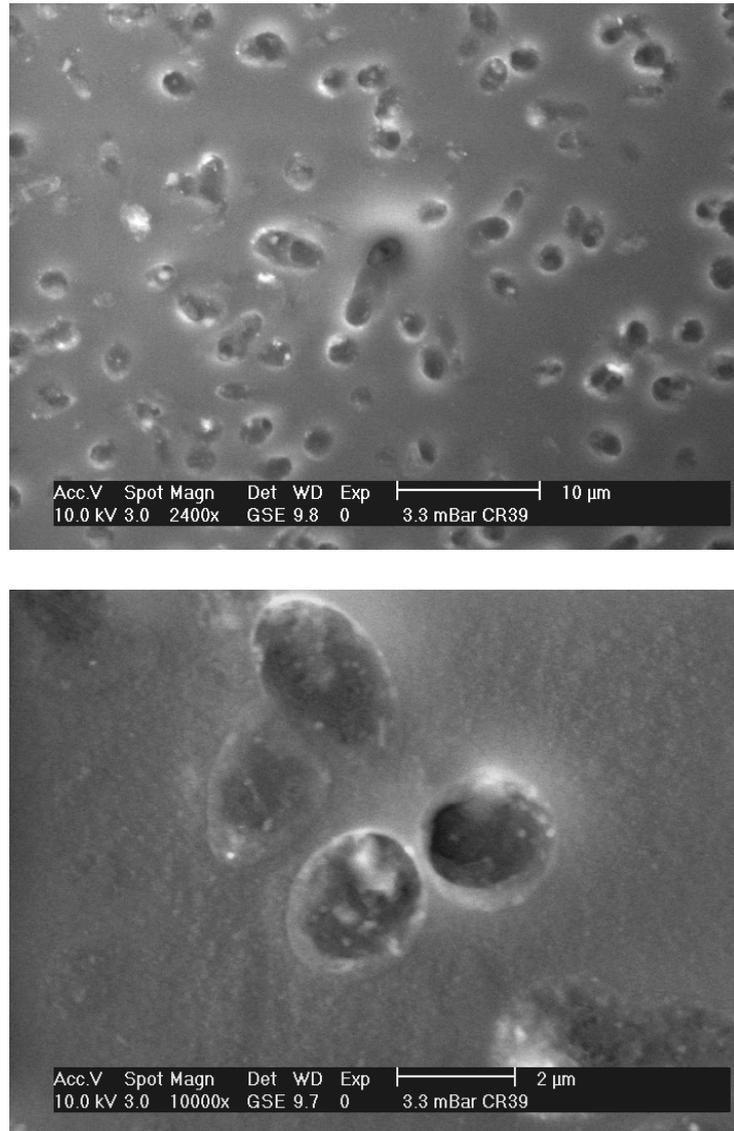


FIGURE III.3 – Traces nucléaires sur un détecteur CR-39 vues au microscope électronique pour deux agrandissements différents [2400× et 10000×].

à leurs géométries circulaire ou elliptique, des autres traces n'ayant pas de formes régulières et considérées comme des défauts de structure. La figure (III.3) montre des traces révélées sur un détecteur CR-39 vues au microscope électronique pour deux agrandissements différents.

Il est possible de détecter des neutrons thermique à l'aide des détecteurs solides de traces nucléaires, grâce à l'association d'un convertisseur riche en bore ^{10}B ou en lithium ^6Li . Les particules chargées issues des réactions nucléaires $^{10}\text{B}(n,\alpha)^7\text{Li}$ ou $^6\text{Li}(n,t)\alpha$ ayant lieu dans le convertisseur produisent des traces révélables dans les DSTN.

III.2 Caractérisation d'une distribution spatiale de flux de neutrons

Le dispositif expérimental de détection des neutrons est composé d'un détecteur solide de traces nucléaires CR-39 et d'un convertisseur constitué d'un matériau riche en bore naturel commercialisé par Dosirad (Lognes, France) sous le nom BN1, Bore Naturel Type 1.

Une feuille de $12 \times 22 \text{ cm}^2$ de BN1 a été mise en contact avec une plaque de $10.5 \times 21 \text{ cm}^2$ de CR-39 et l'ensemble BN1-CR39 a été exposé aux neutrons à la sortie du "canal neutronographique du réacteur NUR", pendant 5 min à la puissance nominale de 1 MW, tel que représenté schématiquement sur la figure (III.4).

NUR (Nuclear University Reactor) est un réacteur nucléaire de recherche, de type piscine, de puissance nominale 1 MW, utilisant des éléments combustibles de type MTR (Material Test Reactor) enrichis approximativement à 20%. Il utilise de l'eau légère comme fluide caloporteur pour le refroidissement du cœur et le graphite comme réflecteur des neutrons de fission. Cinq canaux sont aménagés dans la structure du réacteur pour les besoins d'irradiation aux neutrons.

Un canal a été spécialement conçu pour des applications d'imagerie par radiographie neutronique dite neutronographie. La sortie de ce canal est sous forme circulaire avec un diamètre de 20.32 cm. Une des conditions de la neutronographie est que l'image doit être aussi fidèle que possible aux variations de l'absorption neutronique par les éléments constituant l'objet à radiographier. Cette condition impose que le flux de neutrons reste stable ou varie faiblement sur toute la section du canal. D'où la nécessité de procéder à une caractérisation du flux neutronique délivré par ce canal.

III.2.1 Distribution énergétique du flux de neutrons

Le flux de neutrons d'un réacteur thermique est régi par une expression composée de deux distributions, une distribution thermique donnée par l'équation de Maxwell et une distribution épithermique [9]. Comme les neutrons traversant le canal neutronographique sont thermalisés, le flux de neutrons à la sortie du canal peut s'écrire sous la forme

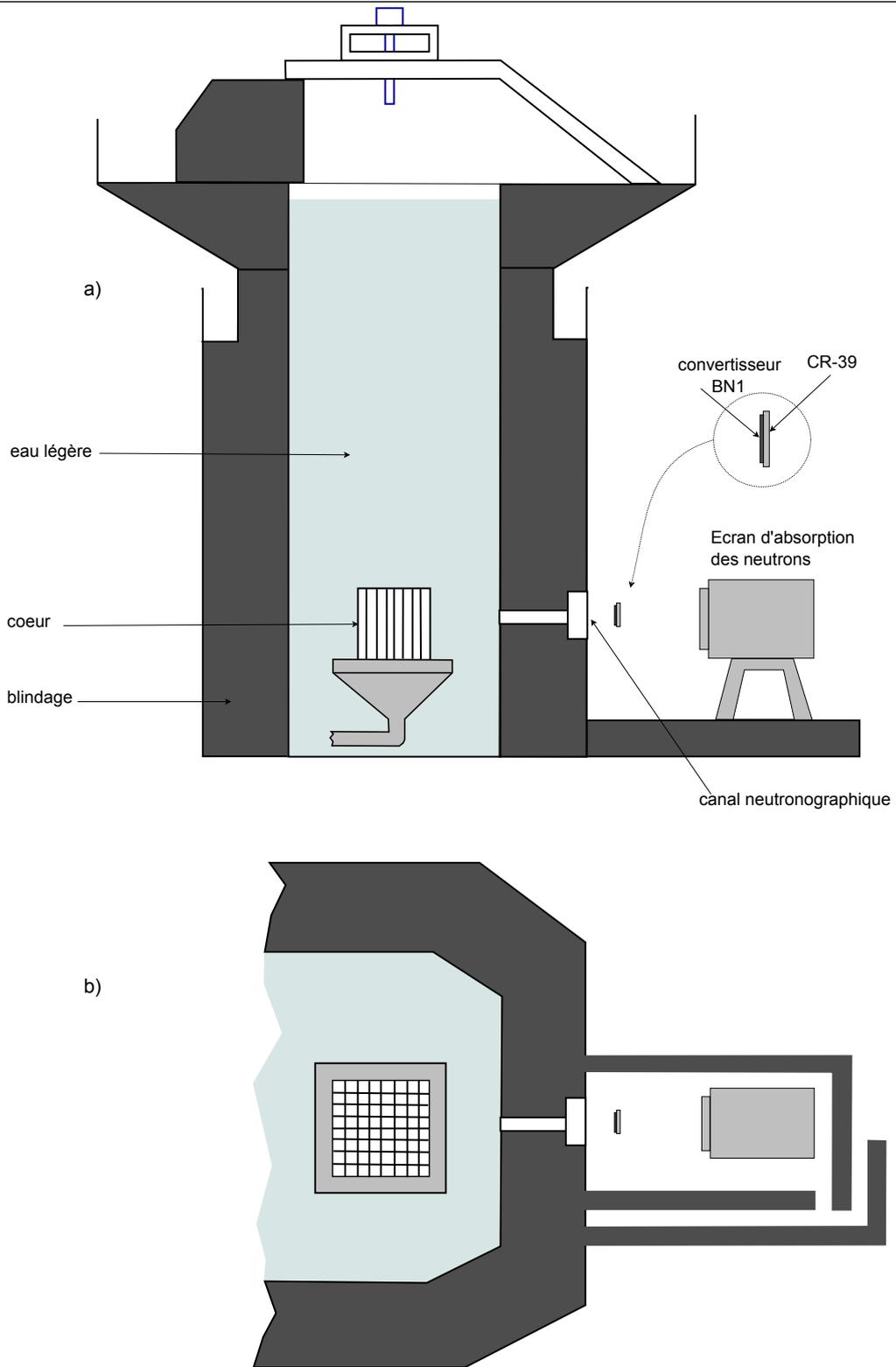


FIGURE III.4 – Schéma du réacteur NUR et du dispositif expérimental : a) section longitudinale, b) section transversale.

suivante :

$$\varphi(E) = \begin{cases} \varphi_{th} \frac{E}{(kT)^2} e^{-\frac{E}{kT}} & E \leq E_t \\ \varphi_{epi} \frac{1}{E} & E > E_t \end{cases} \quad (\text{III.1})$$

où :

φ_{th} : flux de neutrons thermiques, évalué à $(4.60 \pm 0.14) \times 10^5 \text{ cm}^{-2} \text{ s}^{-1}$;

φ_{epi} : flux de neutrons épithermiques (dits aussi intermédiaires), évalué à $(1.32 \pm 0.04) \times 10^4 \text{ cm}^{-2} \text{ s}^{-1}$;

E_t : énergie de transition entre la partie thermique et la partie épithermique ($E_t = 0.2 \text{ eV}$) ;

kT : énergie thermique égale à 0.0253 eV ;

φ_{th} et φ_{epi} ont été mesurés par la technique de l'activation neutronique de la réaction $^{197}\text{Au}(n,\gamma)^{198}\text{Au}$ au centre du canal neutronographique du réacteur NUR.

III.2.2 Taux de réactions dans le dispositif de détection

Le dispositif de détection BN1-CR39 est composé d'un détecteur solide de traces nucléaires CR-39 d'une densité de 1.32 g/cm^3 et d'un convertisseur constitué d'un film plastique d'une épaisseur de $110 \mu\text{m}$, sur lequel a été déposée une mince couche de bore naturel d'environ $30 \mu\text{m}$ d'épaisseur et d'une densité de 1.42 g/cm^3 .

Le convertisseur BN1, irradié aux neutrons, est le siège de nombreuses réactions nucléaires. Bien que le convertisseur soit principalement composé de bore naturel, la présence d'autres éléments, entrant dans la composition du liant ou comme impuretés, peuvent contribuer à la production des particules chargées sous irradiation aux neutrons. La contribution de chaque réaction nucléaire est donnée par son taux de réaction selon l'expression suivante :

$$R_{i,j} = N_i \int_0^\infty \sigma_{(n,j)}^i(E) \varphi(E) dE$$

où :

i : l'indice du noyau cible ;

j : l'indice de la particule produite ;

N_i : le nombre d'atomes cibles i par unité de volume ;

$\sigma_{(n,j)}^i(E)$: la section efficace de réaction aux neutrons de type (n, j) du radionucléide i ;
 $\varphi(E)$: le flux de neutrons à l'énergie E .

Les taux de réactions induites par les neutrons $R_{i,j}$ dans le convertisseur et dans le CR-39, ont été calculés en utilisant une distribution énergétique de neutrons thermiques et intermédiaires pour représenter la partie thermalisée et en cours de ralentissement qui prédominent au niveau du canal neutronographique du réacteur NUR [63]. Ces taux de réactions sont reportés sur le tableau (III.1).

La composition du convertisseur a été déterminée de manière quantitative par spectrométrie à fluorescence X (XRF). Les sections efficaces de réaction aux neutrons ont été obtenues à partir de la base de données ENDF/B-VI en utilisant le code JANIS [64].

TABLE III.1 – Taux de réaction du convertisseur et du CR-39

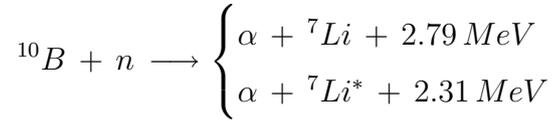
	Elément	Elément (% par poids)	nucléide (abondance %)	Réaction prédominante	Taux de réaction ($\text{cm}^{-3}\text{s}^{-1}$)
Convertisseur	B	86.44 ^a	^{10}B (19.9)	$^{10}\text{B}(n, \alpha)^7\text{Li}$	2.37×10^7
				$^{10}\text{B}(n, p)^{10}\text{Be}$	4.28
	O	8.37 ^a	^{17}O (0.038)	$^{17}\text{O}(n, \alpha)^{14}\text{C}$	1.61×10^{-1}
	Si	3.83 ^a	^{29}Si (4.68)	$^{29}\text{Si}(n, \alpha)^{26}\text{Mg}$	2.15×10^{-6}
CR-39	H	6.57 ^b	^1H (99.99)	$^1\text{H}(n, n)^1\text{H}$	7.82×10^5
			^2H (0.01)	$^2\text{H}(n, n)^2\text{H}$	6.53
	O	40.86 ^b	^{17}O (0.038)	$^{17}\text{O}(n, \alpha)^{14}\text{C}$	7.31×10^{-1}

^a déterminé par XRF

^b calculé à partir de la formule $\text{C}_{12}\text{H}_{18}\text{O}_7$

Selon la dernière colonne du tableau (III.1), on constate que les traces observées sur le CR-39 résultent principalement des réactions $^{10}\text{B}(n, \alpha)^7\text{Li}$ induites dans le convertisseur.

L'isotope ^{10}B , d'abondance naturelle de 19.9%, possède une grande section efficace de réaction pour les neutrons thermiques, $\sigma \approx 3838$ barns et présente deux voies de capture neutronique :



Pour les réactions induites par les neutrons thermiques, 6.3% des particules de ${}^7\text{Li}$ produites sont dans leur état fondamental, le reste est dans son état excité ${}^7\text{Li}^*$ qui se désexcite en émettant un γ de 0.48 MeV.

La réaction nucléaire $^{10}\text{B}(n,\alpha){}^7\text{Li}$ donne naissance à deux particules chargées énergétiques, α et ${}^7\text{Li}$, qui sont émises dans des directions opposées et de façon isotrope pour les neutrons thermiques et intermédiaires.

Après une irradiation aux neutrons du dispositif de détection BN1-CR39, le CR-39 a été séparé du convertisseur pour lui faire subir un développement chimique, qui consiste à l'immerger dans une solution de NaOH, diluée à 20 % et maintenue à une température de 60 °C pendant 2 heures. Le but de cette étape est d'agrandir les traces latentes, produites par les particules chargées issues des réactions nucléaires induites dans le BN1, afin de pouvoir les observer au microscope optique.

Le dénombrement des traces a été effectué à l'aide d'un microscope optique avec un agrandissement $\times 100$, la surface du détecteur CR-39 a été subdivisée en 861 champs d'observation de surfaces $100 \times 67 \mu\text{m}^2$ séparés les uns des autres par 5 mm.

III.2.3 Modélisation de la densité des traces révélées

L'efficacité de détection des particules chargées dans les DSTN dépend de la nature de la particule, de son énergie, de son angle d'incidence sur la surface du DSTN ainsi que des paramètres de révélation chimique des traces qui sont la température et la concentration. On observe ainsi, un angle critique d'incidence au delà duquel les particules chargées ne peuvent être révélées dans le DSTN sous l'effet concurrentielle des attaques chimiques globale et le long de la trajectoire. La densité de traces révélées peut être exprimée par la

relation [63] :

$$N_t(\vec{x}) = t \int_0^\infty \int_0^{4\pi} \epsilon(E, \Omega) N_B(\vec{x}) \frac{d\sigma(E, \Omega)}{d\Omega} \Phi(E, \vec{x}) d\Omega dE \quad (\text{III.2})$$

où :

\vec{x} : est le vecteur position dont l'extrémité a pour coordonnées (x, y) ;

t : est le temps d'irradiation (s) ;

$N_B(\vec{x})$: est le nombre d'atomes de l'élément ^{10}B dans le convertisseur BN1 et produisant des particules chargées issues des réactions nucléaires avec les neutrons ;

$\frac{d\sigma(E, \Omega)}{d\Omega}$: est la section efficace différentielle de la réaction nucléaire de type (n, α) induite avec l'élément ^{10}B ;

$\epsilon(E, \Omega)$: est l'efficacité de détection d'une particule chargée issue de la réaction nucléaire $^{10}\text{B}(n, \alpha)^7\text{Li}$, entrant dans le DSTN suivant un angle solide Ω ;

$\Phi(E, \vec{x})$: est le flux de neutrons ayant une énergie E .

D'autre part, en tout point du réacteur nucléaire, la distribution du flux de neutrons présente une dépendance énergétique qui reflète l'historique des interactions des neutrons entre l'endroit d'émission, en l'occurrence le cœur du réacteur, et l'endroit de la détection. Lorsque l'on s'éloigne du cœur du réacteur, et dans des configurations où les milieux traversés sont homogènes, les neutrons sont de plus en plus ralentis et peuvent atteindre des énergies thermiques. Ainsi, la distribution du flux de neutrons s'exprime par le produit de sa dépendance énergétique et de sa dépendance spatiale, soit :

$$\Phi(E, \vec{x}) = \varphi(E) \phi(\vec{x})$$

L'équation (III.2) se transforme alors comme suit :

$$N_t(\vec{x}) = N_B(\vec{x}) \phi(\vec{x}) t \int_0^\infty \int_0^{4\pi} \epsilon(E, \Omega) \frac{d\sigma_B(E, \Omega)}{d\Omega} \varphi(E) d\Omega dE$$

D'après cette expression, la distribution spatiale de la densité de traces est proportionnelle au produit de la distribution spatiales des atomes de bore $N_B(\vec{x})$ dans le convertisseur, et de la distribution spatiale du flux de neutrons $\Phi(\vec{x})$ à la sortie du canal neutronographique, soit :

$$N_t(\vec{x}) = \mathcal{P} N_B(\vec{x}) \phi(\vec{x})$$

avec \mathcal{P} un facteur représentant l'efficacité du dispositif de détection :

$$\mathcal{P} = t \int_0^\infty \int_0^{4\pi} \epsilon(E, \Omega) \frac{d\sigma_B(E, \Omega)}{d\Omega} \varphi(E) d\Omega dE$$

Ce facteur \mathcal{P} a été évalué théoriquement pour ce dispositif de détection BN1-CR39 [63].

D'un autre coté, la densité de traces révélées est déterminée expérimentalement par le comptage du nombre de traces sur une surface d'observation donnée. Le résultat du dénombrement des traces est inévitablement accompagné d'une erreur expérimentale due principalement à la confusion possible entre certains défauts de structure dans le DSTN et les traces nucléaires. La densité de traces révélées est rigoureusement représentée par une relation générale de la forme :

$$N_t(\vec{x}) \propto N_B(\vec{x})\phi(\vec{x}) + \Delta(N_t(\vec{x})) \quad (\text{III.3})$$

où : $\Delta(N_t(\vec{x}))$ représente l'erreur expérimentale sur la détermination de la densité de traces nucléaires.

L'objectif recherché par ces mesures est la détermination de la distribution spatiale du flux de neutrons à partir de la distribution des densités de traces nucléaires. L'identité entre les deux distributions n'est de toute évidence réalisée que pour des dépôts uniformes du bore dans le convertisseur neutrons particules chargées. Malheureusement, l'uniformité du dépôt ne peut être garantie expérimentalement.

Néanmoins, il est possible de déterminer la distribution spatiale du flux de neutrons à partir de celle des densités de traces nucléaires grâce à l'association de deux approches. La première approche est théorique et consiste à considérer que la répartition des atomes de bore dans le convertisseur évolue dans un intervalle fini et connu. La seconde approche, quant à elle est expérimentale et consiste à réaliser une deuxième expérience, c'est-à-dire irradier un dispositif BN1-CR39 aux neutrons, dans les mêmes conditions que pour la première expérience, afin de disposer de données supplémentaires en vue de réduire la contribution des erreurs expérimentales.

III.3 Description d'une méthode bayésienne de déconvolution

Afin de déterminer la distribution spatiale du flux de neutrons à partir de l'équation (III.3), nous avons opté pour une approche probabiliste basée sur une méthode d'inférence Bayésienne. Cette dernière constitue une méthode rigoureuse et robuste de résolution des problèmes inverses difficiles à résoudre par les méthodes classiques, car ils souffrent d'un manque de données.

Le théorème de Bayes instaure un mécanisme naturel permettant d'associer l'information *a priori* au processus d'apprentissage, dont le résultat final est la distribution de probabilité *a posteriori* laquelle résume sous forme d'une distribution de probabilité toute l'information disponible sur l'objet à déterminer.

Du fait que nous nous basons sur deux mesures indépendantes des densités de traces nucléaires, N_{t1} et N_{t2} , le théorème de Bayes permet de faire une analyse séquentielle de ces données dont la distribution de probabilité *a posteriori* est donnée par la relation suivante :

$$P(\phi|N_{t2}, N_{t1}) \propto P(N_{t2}|\phi)P(N_{t1}|\phi)P(\phi, N_B)$$

où :

- $P(N_{t1}|\phi)$ et $P(N_{t2}|\phi)$ représentent les probabilités de vraisemblance des deux distributions de densités de traces N_{t1} et N_{t2} ;
- $P(\phi, N_B)$ est l'information a priori sur les distributions $\phi(\vec{x})$ et $N_B(\vec{x})$.

A partir de la distribution de probabilité *a posteriori*, différentes grandeurs peuvent être estimées, tels que la valeur moyenne, les modes, les moments d'ordre k , les distributions marginales, etc... Toutefois, comme dans notre cas il s'agit d'un problème multivarié, le principe du Maximum A Postérieur (MAP) reste le moyen le plus adéquat de résolution. La recherche d'une solution MAP équivaut à la recherche de l'argument maximisant la distribution *a posteriori*, ce qui revient à minimiser le critère composé appelé aussi fonction de régularisation :

$$\mathcal{L} = \frac{1}{2}(\chi_1^2 + \chi_2^2) - \lambda\mathcal{S} \tag{III.4}$$

où :

- χ_1^2 et χ_2^2 sont les grandeurs classiques d'estimation des déviations des mesures, déduites à partir des probabilités de vraisemblance. Elles sont données par :

$$\chi_{1,2}^2 = \int \frac{\left(N_{t(1,2)}^{exp}(\vec{x}) - N_t^{calc}(\vec{x})\right)^2}{\sigma_{exp(1,2)}^2(\vec{x})} d\vec{x}$$

$N_{t(1,2)}^{exp}(\vec{x})$ et $N_t^{calc}(\vec{x})$ sont respectivement les densités de traces nucléaires expérimentales et calculées, $\sigma_{exp(1,2)}^2(\vec{x})$ est l'erreur expérimentale sur la densité des traces ;

- \mathcal{S} est l'entropie totale, représentée par une relation sous forme d'une combinaison linéaire :

$$\mathcal{S} = \alpha S_\phi + (1 - \alpha) S_N$$

avec :

$$S_\phi = - \int \phi(\vec{x}) \log \left(\frac{\phi(\vec{x})}{\phi_0(\vec{x})} \right) d\vec{x}$$

$$S_N = - \int N_B(\vec{x}) \log \left(\frac{N_B(\vec{x})}{N_{B_0}(\vec{x})} \right) d\vec{x}$$

où :

- α représente un paramètre associé au degré ou au niveau de notre connaissance sur chacune des distributions, $0 < \alpha < 1$;
- S_ϕ et S_N sont les entropies relatives associées respectivement à $\phi(\vec{x})$ et $N_B(\vec{x})$;
- ϕ_0 et N_{B_0} sont ce que l'on connaît sur les distributions du flux neutronique et la répartition des atomes de bore dans le convertisseur, généralement prises comme deux distributions uniformes ;

L'entropie S est une grandeur inspirée de la théorie de l'information. Comme elle est précédée du signe $(-)$, elle est maximisée quand la fonction de régularisation \mathcal{L} est minimisée.

- λ est un paramètre de régulation qui représente la pondération que l'on accorde à l'entropie totale.

Algorithme III.1 Recuit Simulé appliqué à la déconvolution d'une distribution spatiale de flux de neutrons

```

initialiser un compteur  $k \leftarrow 0$ 
initialiser la température  $T$ 
initialiser le point de départ  $(x, y)$ 
choisir  $\phi(x, y)^{(k)}$  et  $N_B(x, y)^{(k)}$  aléatoirement
évaluer  $\mathcal{L}^{(k)}$ 
repeat
  repeat
    choisir  $\phi(x, y)^{(k+1)}$  et  $N_B(x, y)^{(k+1)}$ 
    évaluer  $\mathcal{L}^{(k+1)}$ 
    if  $\mathcal{L}^{(k+1)} < \mathcal{L}^{(k)}$  then
       $\begin{cases} \phi(x, y)^{(k)} \leftarrow \phi(x, y)^{(k+1)} \\ N_B(x, y)^{(k)} \leftarrow N_B(x, y)^{(k+1)} \end{cases}$ 
    else if  $r < \exp\left(-\frac{\mathcal{L}^{(k+1)} - \mathcal{L}^{(k)}}{T}\right)$  then  $\triangleright r$  : nombre aléatoire uniforme  $\in [0, 1)$ 
       $\begin{cases} \phi(x, y)^{(k)} \leftarrow \phi(x, y)^{(k+1)} \\ N_B(x, y)^{(k)} \leftarrow N_B(x, y)^{(k+1)} \end{cases}$ 
    else
       $(x, y) \leftarrow (x', y')$   $\triangleright$  sélectionner un autre point
    end if
  until (Balayage de toute la distribution)
   $T \leftarrow g(T, k)$   $\triangleright$  faire décroître la température
   $k \leftarrow k + 1$ 
until (Condition d'arrêt des calculs)

```

III.3.1 Réalisation d'un code de déconvolution des distributions spatiales des flux de neutrons

La méthode de déconvolution des distributions spatiales des flux de neutrons que nous avons développée a été implémentée en langage C. Cette méthode se base sur la minimisation de la fonction objectif \mathcal{L} (Eq. III.4) par l'algorithme du recuit simulé (III.1). Ce dernier permet d'atteindre le minimum global d'une fonction même si cette dernière possède plusieurs minimums locaux, de plus il s'accorde de manière adéquate avec la méthode bayésienne adoptée. C'est un algorithme robuste et efficace ayant fait ses preuves pour une variété de problèmes d'optimisation [65].

Les distributions spatiales du flux de neutrons et de la densité d'atomes de bore ont été générées selon un échantillonnage Monte Carlo donné par les relations suivantes :

$$\phi(\vec{x})^{(k+1)} = \phi(\vec{x})^{(k)}(1 + \xi\mathcal{R})$$

où :

$\phi(x, y)^{(k)}$: valeur du flux au point (x, y) , à l'étape (k) ;

$\phi(x, y)^{(k+1)}$: valeur du flux générée dans le voisinage de $\phi(x, y)^{(k)}$ à l'étape $(k + 1)$;

\mathcal{R} : nombre aléatoire généré selon une distribution normale de moyenne nulle et de variance 1 ;

ξ : un pas permettant de rechercher des valeurs de flux dans le proche voisinage de la valeur acceptée à l'étape (k) par l'algorithme du recuit simulé.

Le nombre d'atomes de bore par unité de volume peut varier de 20 % selon une estimation maximale, autour de la valeur N_0 présente initialement dans le convertisseur. La distribution spatiale de la densité des atomes de bore est calculée selon la relation suivante :

$$N_B(\vec{x}) = N_0(1 + \xi\mathcal{R})$$

La procédure de calcul utilise le générateur Mersenne Twister pour la génération des nombres aléatoires.

La méthode Bayésienne de déconvolution des distributions spatiales des flux de neutrons a fait l'objet d'un article publié dans la revue *Algerian Review of Nuclear Sciences* (cf. annexe A).

III.4 Validation de la méthode de déconvolution des distributions spatiales des flux de neutrons

Il est à signaler qu'il existe une analogie entre le dispositif de détection des neutrons BN1-CR39 que nous avons utilisé et un système classique d'image photographique. Du fait que la qualité d'une image traitée peut être évaluée par simple appréciation du contraste visuel, la méthode que nous avons développée est validée par l'analyse du cas de traitement d'images bruitées. Par la suite, la méthode est appliquée à la mesure réelle de densités de traces nucléaires.

III.4.1 Traitement des images bruitées

L'image photographiée est le résultat d'une convolution entre la fonction de réponse de l'appareil photographique et la scène prise en photo. L'intensité lumineuse de l'image photographique est régie par le modèle mathématique suivant :

$$I(\vec{x}) = H(\vec{x}) \otimes s(\vec{x}) + \Delta I(\vec{x}) = \int \int H(x', y') s(x - x', y - y') dx' dy' + \Delta I(\vec{x})$$

I : intensité des pixels de l'image (en niveaux de gris) ;

s : scène originale ;

H : fonction de transfert de l'intensité lumineuse en niveau de gris ;

ΔI : bruit additif (bruit de fond du film, parasites, ...).

Le test consiste à déterminer l'image la plus probable au sens d'entropie maximale à partir de deux images bruitées et à la comparer avec l'image originale. A cette fin, nous avons choisi comme image originale I_o une représentation de la lettre A surmontée d'une barre horizontale et présentant un point en bas au milieu (cf. Fig. III.5 (a)), de dimension 60×60 pixels [66].

L'image originale a été dégradée successivement par deux bruits aléatoires, pour obtenir respectivement deux images bruitées I_{b1} et I_{b2} telles qu'elles apparaissent sur la figure (III.5 (b) et (c)). A partir des distributions des deux images I_{b1} et I_{b2} et en considérant que ces deux images sont les résultats de deux convolutions de la même image et de deux fonctions de réponses différentes du même convertisseur, la procédure de déconvolution de l'image a permis d'obtenir la forme donnée en (cf. Fig. III.5 (d)).

On constate, par contraste visuel, que l'image déconvoluée est moins dégradée par rapport à l'image originale que les deux images bruitées I_{b1} et I_{b2} . Le degré de restauration peut être estimé en calculant les déviations \mathcal{D} des images bruitées et déconvoluée par rapport à la forme initiale en utilisant l'expression suivante :

$$\mathcal{D}(\%) = \frac{100}{mn} \sum_{x,y}^{m,n} \left(\frac{I_b(x, y) - I_o(x, y)}{I_o(x, y)} \right)^2$$

où $I_b(x, y)$ est la valeur du champs au pixel (x, y) de l'image I_b , avec I_o l'image originale.

L'image déconvoluée présente une déviation de l'ordre de 9.32 % alors que les déviations des deux images bruitées sont respectivement 22.23 % et 23.44 %. Ce résultat confirme

l'amélioration de la précision sur la distribution spatiale de la forme initiale telle qu'estimée visuellement sur la figure (III.5 (d)).

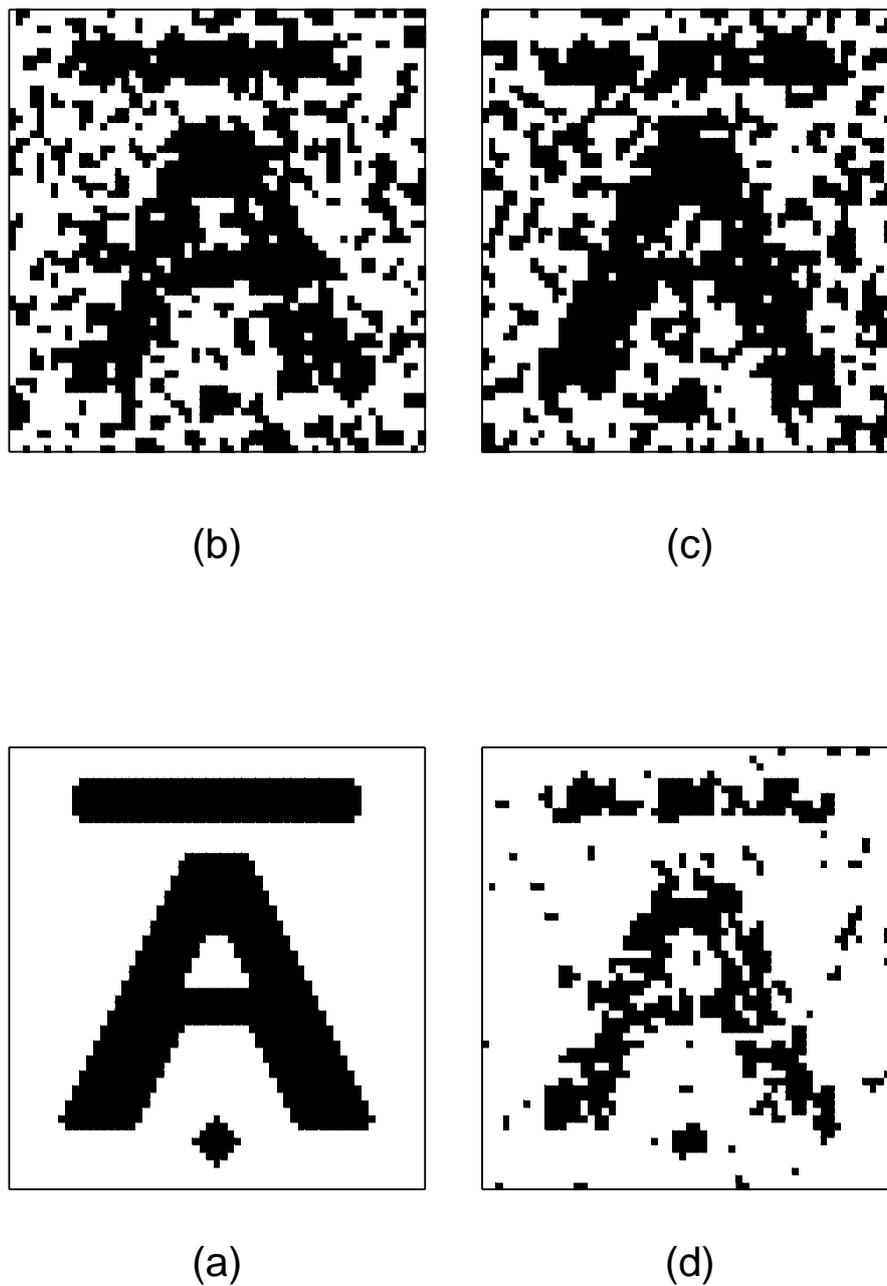


FIGURE III.5 – Restauration de l'image test : (a) Image originale, (b) et (c) Images aléatoirement perturbées, (d) Image restaurée.

III.4.2 Distribution spatiale du flux de neutrons du canal neutronographique du réacteur NUR

Le réacteur nucléaire de recherche NUR dispose d'un canal d'irradiation aux neutrons dédié à l'imagerie par radiographie neutronique. Le flux de neutrons étant supposé uniforme ou de faible variation sur toute la section du canal, toute structure ou anomalie détectée sur un cliché sera automatiquement attribuée à l'objet radiographié. Or, le flux peut être non-homogène et conduire à des conclusions erronées, d'où l'importance de la caractérisation spatiale du flux neutronique de ce canal.

La caractérisation spatiale du flux neutronique, du canal neutronographique du réacteur NUR, constitue le deuxième test de validation du code de calcul réalisé. Les distributions de densités de traces nucléaires sont représentées sur la figure (III.6 (a) et (b)).

La déconvolution des distributions des densités de traces et de la distribution de la densité du bore par la méthode développée a permis d'obtenir la distribution spatiale du flux neutronique la plus probable au sens d'entropie maximale (cf. Fig. III.7). On observe sur cette figure que le flux présente une distribution relativement non-uniforme avec une tendance vers un léger accroissement de la région droite vers la région gauche du canal, vu à partir du cœur du réacteur.

III.5 Mesure de flux par activation neutronique

Dans le but de vérifier la validité de la méthode de détermination de la distribution spatiale du flux de neutrons par le dispositif de détection BN1-CR39, nous avons procédé à l'établissement de la cartographie du flux de neutrons avec une méthode différente et indépendante. Nous avons donc opté pour la technique de mesure des flux par activation neutronique qui présente une incertitude sur la mesure très faible ($\approx 3\%$).

Le dispositif de détection est constitué de 35 disques d'or, dont chacun a un diamètre de 5 mm et une épaisseur de 0.5 mm. L'ensemble des disques a été disposé sur une plaque en plexiglas suivant une géométrie rectangulaire, où chaque disque est distant de son voisin de 2.5 cm. Le dispositif de détection par activation neutronique a été exposé aux neutrons au même endroit que pour les deux dispositifs BN1-CR39 décrits précédemment.

Lors de l'exposition aux neutrons les disques d'or s'activent suite aux réactions nucléaires de capture neutronique de l'or suivant la réaction $^{197}\text{Au}(n,\gamma)^{198}\text{Au}$. L'élément

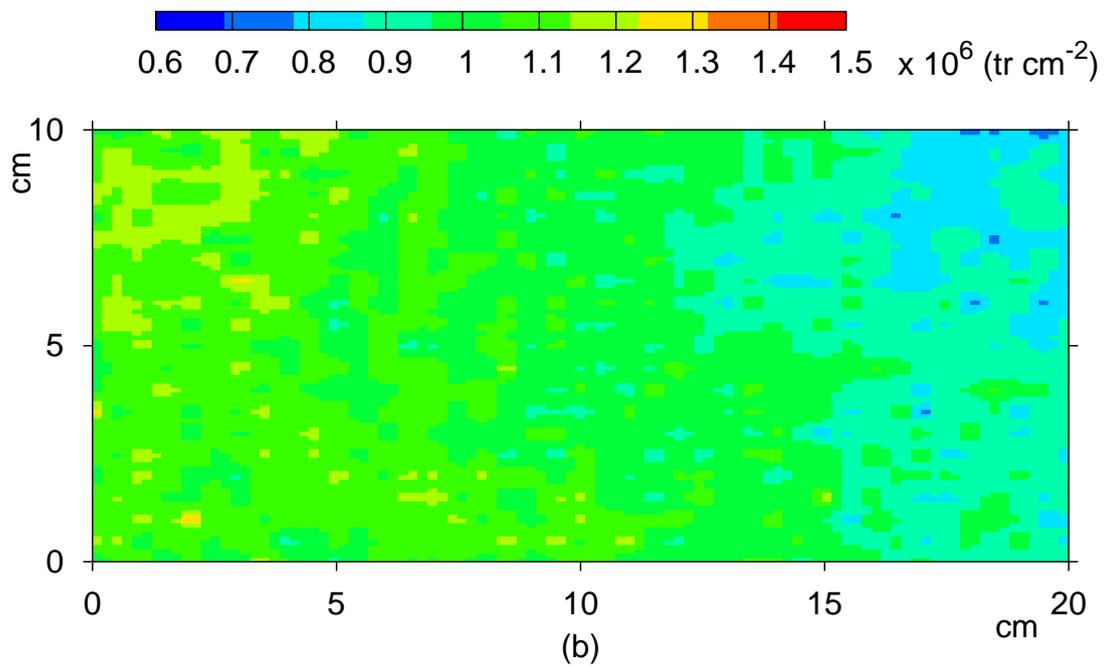
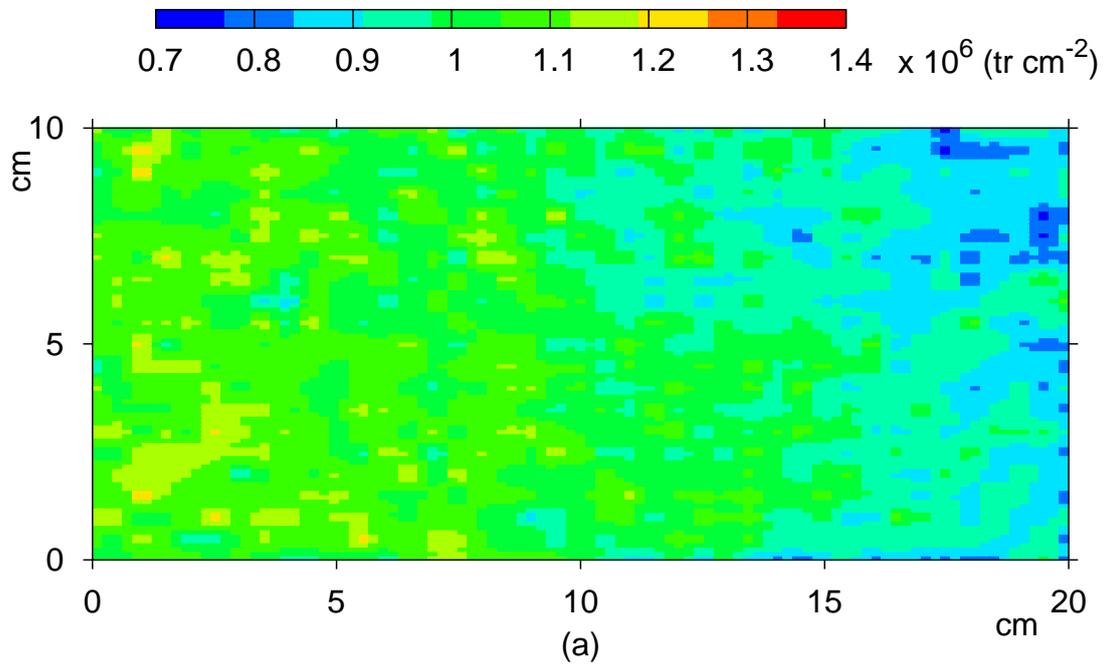


FIGURE III.6 – Distribution spatiale de la densité des traces sur les deux détecteurs CR-39 (a) et (b).

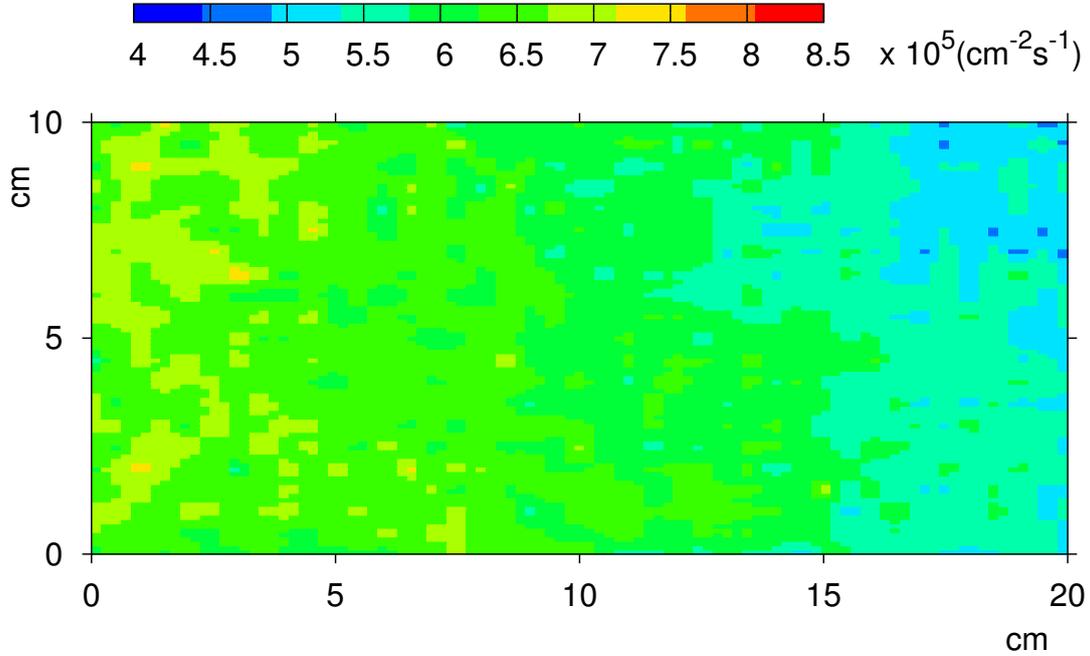


FIGURE III.7 – Distribution spatiale du flux de neutrons du canal neutronographique du réacteur NUR.

^{198}Au décroît par émission β^- vers le mercure ^{198}Hg dont la signature γ est utilisée pour la détermination du flux de neutrons par spectrométrie γ à l'aide de la relation :

$$A_{\gamma}^i = N_0^i (1 - \exp(-\lambda t_{irr})) \int_0^{\infty} \int_S \sigma(E) \varphi(E) \phi(\vec{x}) dE d\vec{x} = N_0^i (1 - \exp(-\lambda t_{irr})) \bar{\sigma} \Phi^i$$

avec :

$$\bar{\sigma} = \int_0^{\infty} \varphi(E) \sigma(E) dE$$

$$\Phi^i = \int_S \phi(\vec{x}) d\vec{x}$$

S représente la surface du disque d'or.

Le flux Φ^i est donné par l'expression :

$$\Phi^i = \frac{A_\gamma^i}{N_0^i(1 - \exp(-\lambda t_{irr}))\bar{\sigma}}$$

où :

A_γ^i : activité induite dans le disque d'or (i) (s^{-1});

$\bar{\sigma}$: section efficace moyenne d'absorption (cm^2);

Φ^i : densité moyenne du flux de neutrons au niveau du disque d'or (i) ($cm^{-2} s^{-1}$);

N_0^i : nombre d'atomes de ^{197}Au dans le disque d'or (i);

λ : constante de décroissance radioactive de ^{198}Au (s^{-1});

t_{irr} : temps d'irradiation (s).

L'activité de chaque disque d'or est ainsi proportionnelle à la densité moyenne de flux de neutrons sur la surface du disque. L'incertitude de cette technique de mesure du flux est évaluée à moins de 3%.

La distribution du flux de neutrons, obtenue par activation neutronique des disques, est représentée sur la figure (III.8 (a)). On observe une similitude entre cette distribution et celle obtenue par la déconvolution des distributions des densités de traces nucléaires dans le DSTN CR-39 telle que représentée sur la figure (III.8 (b)) qui reprend la distribution spatiale du flux de la figure (III.7) rapportée aux mêmes points de mesure que l'activation neutronique.

Les zones aux flux élevés observées sont, dans les deux cas, localisées dans la région gauche du canal. La non-uniformité du flux peut avoir comme origine la configuration géométrique du site d'exposition aux neutrons à la sortie du canal. En effet, à l'extérieur du canal est disposé un blindage dont le but est d'éviter la présence des neutrons dans le hall du réacteur nucléaire. La configuration géométrique de ce blindage n'est pas symétrique par rapport à l'axe du canal. Ainsi, les neutrons qui diffusent vers la droite du canal ont plus de chance d'être rediffusés vers le site d'exposition (cf. Fig. III.4 (b)), ce qui a pour conséquence d'augmenter le flux de neutrons à gauche du canal.

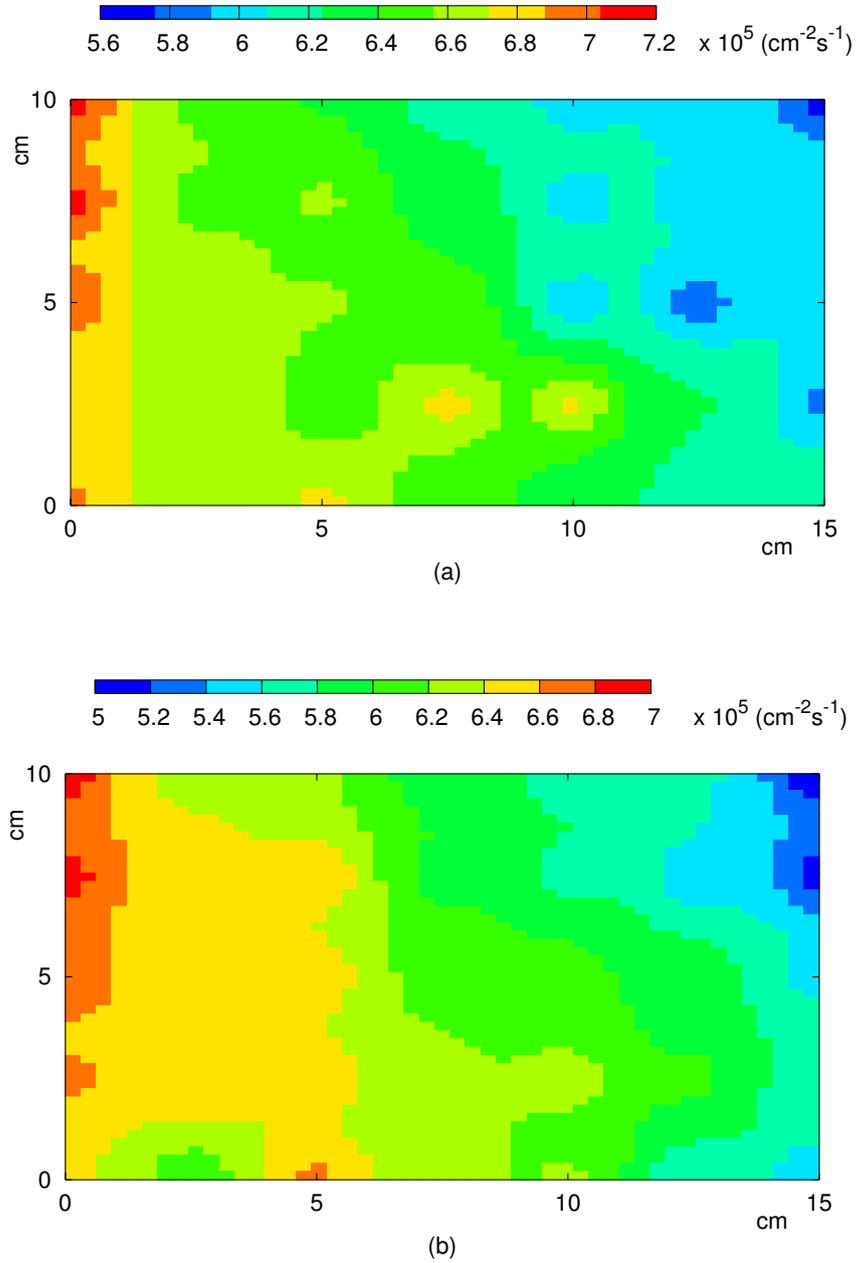


FIGURE III.8 – Distribution spatiale du flux de neutrons du canal neutronographique du réacteur NUR obtenue par : a) activation neutronique des disques d'or, b) distribution de la figure (III.7) réduite aux mêmes points de mesure que l'activation neutronique.

III.6 Conclusion

En utilisant deux dispositifs de détection des neutrons, constitués chacun d'un convertisseur riche en ^{10}B intimement lié à un détecteur solide de traces nucléaires CR-39 et irradiés aux neutrons dans les mêmes conditions, et moyennant une technique de déconvolution basée sur une méthode Bayésienne à maximum d'entropie, nous avons caractérisé la distribution spatiale du flux de neutrons à la sortie du canal neutronographique du réacteur nucléaire NUR sur une surface de $10.5 \times 21 \text{ cm}^2$. La technique que nous avons développée constitue un moyen efficace pour l'établissement d'une cartographie fine d'un champ neutronique.

Chapitre IV

Détermination des distributions énergétiques des flux de neutrons

En complément à la distribution spatiale des champs neutroniques, la connaissance de la distribution énergétique d'un flux de neutrons est une donnée fondamentale pour la physique neutronique puisqu'elle permet de quantifier les taux d'interactions des neutrons avec la matière.

Un certain nombre de codes de transport neutronique ont été développés pour évaluer les spectres des flux de neutrons. Ces codes permettent de suivre le cheminement d'un neutron et ses diffusions multiples avec les différents matériaux. Cependant, lorsque le milieu de propagation des neutrons n'est pas homogène et comporte plusieurs matériaux, l'efficacité des codes de transport pour la détermination des spectres neutroniques n'est pas garantie. Dans ce cas, l'évaluation des spectres de flux de neutrons peut être améliorée par l'utilisation d'une technique de spectrométrie neutronique associée à une méthode de déconvolution du flux.

IV.1 Spectrométrie neutronique

La spectrométrie permet de caractériser un champ de rayonnement en terme de distribution en énergie. Du fait que la gamme des énergies des neutrons peut s'étaler sur plusieurs décades, de quelques meV à une dizaine de MeV, il est fait appel à plusieurs techniques pour couvrir l'ensemble du spectre à mesurer.

La plupart des méthodes de spectrométrie neutronique utilisées de nos jours se basent sur des techniques introduites vers les années 1960 [67, 68]. Ces techniques ont été améliorées au fur et à mesure que de nouveaux détecteurs apparaissent, comme par exemple la technique de spectrométrie par noyau de recul, qui a été actualisée avec l'avènement de nouveaux détecteurs : compteur proportionnel, émulsion nucléaire, scintillateurs organiques et inorganiques solides et liquides, etc... La gamme d'énergie couverte par cette technique se situe entre environ 100 keV et 2 MeV.

Les techniques de spectrométrie par les sphères de Bonner et par activation neutronique permettent de couvrir une gamme d'énergies assez large de quelques meV jusqu'à 20 MeV. Ces deux techniques sont largement utilisées et sont en continuel développement surtout sur le volet procédures de déconvolution.

Nous donnerons dans ce qui suit un aperçu de quelques méthodes de spectrométrie neutronique les plus répandues et nous développerons la méthode d'activation neutronique qui représente l'objet de notre étude.

IV.1.1 Spectrométrie par proton de recul

La technique de spectrométrie par proton de recul se base sur la mesure de l'énergie des protons mis en mouvement suite à la diffusion élastique du neutron dans les milieux gazeux hydrogénés ou dans les milieux scintillants liquides ou solides, selon le type de détecteur utilisé [68, 69].

Comme, les neutrons et les protons ont approximativement la même masse, le neutron peut en une seule diffusion transférer toute son énergie cinétique au proton. Ce dernier acquiert une distribution d'énergie qui se présente sous forme d'une fenêtre rectangulaire dont l'énergie minimale est nulle et l'énergie maximale est égale à celle du neutron incident.

Les protons de recul ionisent le milieu composant le détecteur et produisent des impulsions. Le spectre d'impulsions des protons de recul est donné par la relation de convolution sous forme discrète suivante :

$$A_i = \sum_{j=1}^n R_i(E_j)\Phi(E_j)\Delta E_j \quad (i = 1, 2, \dots, m)$$

où :

A_i : intensité de l'impulsion dans le canal i ;

n : nombre de groupes d'énergie ;

m : nombre de canaux de l'analyseur multicanaux ;

$R_i(E_j)$: fonction de réponse du système de détection dans le canal i et pour le groupe d'énergie E_j ;

$\Phi(E_j)$: flux de neutrons du groupe d'énergie E_j .

Cette équation peut s'écrire sous forme matricielle :

$$A = R\Phi$$

où A et Φ sont des vecteurs de dimensions respectives m et n , R est une matrice rectangulaire de dimension (m, n) .

Dans le cas où $m = n$ la solution Φ peut être obtenue par simple inversion de la matrice. La solution est unique mais peut contenir des composantes négatives, n'ayant pas de sens physique.

Le plus souvent, un système d'équations surdéterminé $m > n$ est utilisé, et la solution est obtenue par une méthode d'optimisation au sens des moindres carrés [70, 71].

IV.1.2 Spectrométrie par multi-sphères

Le spectromètre multi-sphères, appelé aussi système de sphères de Bonner, a été décrit pour la première fois par Bramblett, Erwing et Bonner en 1960 [72]. Ce système est constitué par des détecteurs de neutrons thermiques (${}^6\text{Li}$, ${}^{10}\text{B}$ ou ${}^3\text{He}$), enveloppés par des sphères modératrices de différents diamètres, souvent de polyéthylène pour augmenter la sensibilité des détecteurs aux neutrons d'énergie plus élevée.

Les neutrons rapides sont ralentis à l'intérieur du modérateur et arrivent au détecteur à l'état thermique tandis que les neutrons initialement thermalisés sont partiellement capturés à l'intérieur du modérateur et n'atteignent pas le détecteur. Comme le taux de ralentissement dépend du diamètre des sphères modératrices, l'utilisation de sphères de différents diamètres permet la discrimination des énergies des neutrons incidents.

Le taux de comptage A_i (s^{-1}), obtenu avec une sphère de rayon r_i dans un point d'un champ neutronique donné, est la convolution de la fonction de réponse $R_i(E_j)$ de cette sphère, avec la distribution en énergie du flux $\Phi(E_j)$ des neutrons mesurés dans ce même point. L'utilisation de plusieurs sphères de différents rayons dans un champ de neutrons inconnu conduit à un système d'équations :

$$A_i = \sum_{j=1}^n R_i(E_j)\Phi(E_j)\Delta E_j \quad i = 1, \bar{m}$$

m : nombre de sphères utilisées ;

n : nombre de groupes d'énergie qui s'étend de l'énergie thermique jusqu'à quelques dizaines de MeV ;

$\Phi(E_j)$: flux énergétique des neutrons dans l'intervalle ΔE_j ($\text{cm}^{-2} \text{s}^{-1} \text{MeV}^{-1}$) ;

$R_i(E_j)$: réponse moyenne de la sphère r_i dans l'intervalle d'énergie ΔE_j (cm^2).

Généralement, le système d'équations est sous déterminé, $m < n$. La résolution d'un tel système se fait par une procédure de déconvolution.

IV.1.3 Spectrométrie par activation neutronique

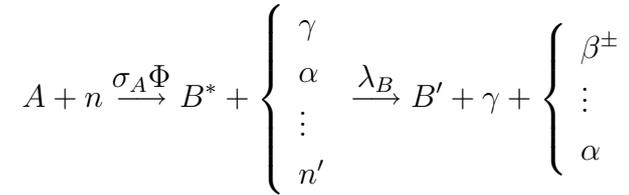
La spectrométrie des neutrons par activation neutronique consiste à irradier un ensemble de détecteurs activables aux neutrons dans un champ neutronique. La mesure des activités induites se fait par une technique de spectrométrie γ , ou par une autre technique

adaptée aux types de rayonnements émis. Grâce aux activités mesurées, il est possible de reconstituer le spectre énergétique des neutrons par une méthode de déconvolution [73, 74].

Les détecteurs d'activation sont des échantillons de matériaux purs dont la composition isotopique est connue. Ils se présentent généralement sous forme de feuilles d'où le nom de la technique d'activation des "multi-feuilles". Cette technique reste la plus adaptée aux mesures de flux neutronique dans les réacteurs, car les détecteurs ne sont pas sensibles à l'important flux de rayons γ .

Activité induite :

Si une cible A , de section efficace $\sigma_A(E)$, subit une irradiation aux neutrons dont le flux est $\Phi(E)$, un nombre d'atomes de A se transmutent en atomes B suite à une capture de neutrons. Ce nouvel isotope se désintègre au cours du temps selon sa période radioactive $T_{1/2}$ ($T_{1/2} = \frac{\log(2)}{\lambda_B}$, λ_B étant la constante de désintégration radioactive de l'élément B) [75] :



Sachant que le nombre d'atomes de B présents dans le détecteur se désintègrent avec une constante de décroissance λ_B , et qu'ils peuvent disparaître par capture de neutrons avec la section efficace $\sigma_B(E)$ on obtient :

$$\frac{dN_B(t)}{dt} = N_A(t) \left[\int_0^\infty \sigma_A(E) \Phi(E) dE \right] - \lambda_B N_B(t) - N_B(t) \left[\int_0^\infty \sigma_B(E) \Phi(E) dE \right]$$

En pratique les cibles sont sélectionnées de manière à ce que le radio-isotope produit possède une section efficace d'absorption des neutrons tel que $\lambda_B \gg \int_0^\infty \sigma_B(E) \Phi(E) dE$, le dernier terme de l'équation peut être négligé d'où :

$$\frac{dN_B(t)}{dt} = N_A(t) \left[\int_0^\infty \sigma_A(E) \Phi(E) dE \right] - \lambda_B N_B(t)$$

Sachant que $N_A(0)$ est le nombre d'atomes de l'élément A à $t = 0$ et que le nombre d'atomes de l'élément B est initialement nul, $N_B(0) = 0$, nous obtenons le nombre d'atomes de B formés pendant une irradiation de durée t :

$$N_B(t) = \frac{N_A(0)}{\lambda_B} \left[\int_0^\infty \sigma_A(E) \Phi(E) dE \right] (1 - e^{-\lambda_B t}) \quad (\text{IV.1})$$

avec $N_A(0) = \frac{w m \mathcal{N}_a}{M}$.

où :

- w : abondance isotopique de l'élément A ;
- m : masse du détecteur (g) ;
- M : masse atomique du détecteur (g mol^{-1}) ;
- \mathcal{N}_a : nombre d'Avogadro (mol^{-1}).

Nous en déduisons l'activité $\mathcal{A}_B(t)$ du radio-isotope après un temps d'irradiation t :

$$\mathcal{A}_B(t) = \lambda_B N_B(t) = N_A(0) \left[\int_0^\infty \sigma_A(E) \Phi(E) dE \right] (1 - e^{-\lambda_B t}) \quad (\text{IV.2})$$

Activité de saturation :

La figure (IV.1) représentant l'activité en fonction du temps montre deux régions :

- Dans la première région : pour des temps d'irradiation plus courts que la demi-vie du radioisotope produit, l'activité augmente linéairement avec le temps : $\mathcal{A}_B(t) \approx N_A(0) \left[\int_0^\infty \sigma_A(E) \Phi(E) dE \right] \frac{\log(2)}{T_{1/2}} t$.

Après une durée d'irradiation (correspondant à $\approx 6 \times T_{1/2}$) l'activité atteint une valeur de saturation donnée par le taux de réaction :

$$\tau_A = N_A(0) \int_0^\infty \sigma_A(E) \Phi(E) dE$$

- Dans la deuxième région, correspondant à l'arrêt de l'irradiation c'est le processus de décroissance radioactive qui se produit.

L'activité de saturation par atome \mathcal{A}_S ($s^{-1} \text{atom}^{-1}$) est donnée par :

$$\mathcal{A}_S = \frac{\tau_A}{N_A(0)} = \int_0^\infty \sigma_A(E) \Phi(E) dE \quad (\text{IV.3})$$

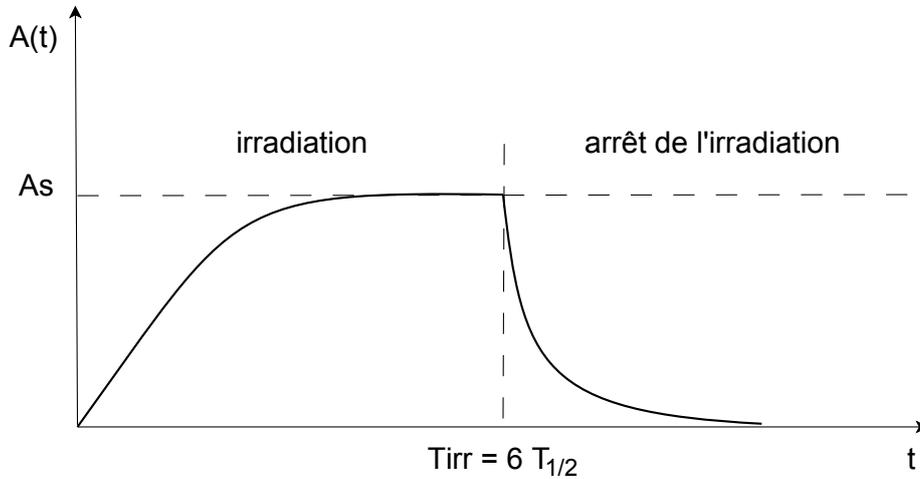


FIGURE IV.1 – activité de saturation

Détecteur sous cadmium :

Le cadmium est un élément qui possède la plus grande section efficace de capture neutronique, après le gadolinium, dans la gamme des neutrons thermiques. Le gadolinium est constitué de deux isotopes naturels très absorbants, le ^{155}Gd à 14.73% et le ^{157}Gd à 15.68%, dont les sections efficaces respectives sont de 60 850 barns et de 255 100 barns. La section efficace du ^{113}Cd qui constitue 12.26% du cadmium naturel est de 20 770 barns. Le cadmium est caractérisé par son énergie de coupure, qui est de l'ordre de 0.5 eV, au-delà de laquelle la section efficace de capture décroît significativement. Ainsi, les neutrons d'énergie inférieure à l'énergie de coupure sont absorbés par le cadmium, tandis qu'il est pratiquement transparent pour les neutrons d'énergie plus élevée.

Lorsqu'un détecteur activable est irradié dans une capsule en cadmium, le flux auquel il est soumis est un flux ayant subi une atténuation de la forme :

$$\Phi_a(E) = \Phi(E) \exp(-\Sigma_t(E)x)$$

où :

$\Phi(E)$: flux de neutron ($\text{cm}^{-2} \text{s}^{-1} \text{MeV}^{-1}$);

$\Sigma_t(E)$: section efficace macroscopique totale du cadmium (cm^{-1});

x : épaisseur du cadmium (cm).

Et l'activité de saturation \mathcal{A}_S devient dans ce cas :

$$\mathcal{A}_S = \int_0^\infty \sigma(E) \exp(-\Sigma_t(E)x) \Phi(E) dE \quad (\text{IV.4})$$

Caractéristiques des détecteurs activables aux neutrons :

Un détecteur activable aux neutrons se présente généralement sous forme d'une feuille mince de l'ordre de 1 mm d'épaisseur ou moins et sa masse est de quelques milligrammes. Il possède une section efficace de réaction aux neutrons étendue sur une gamme d'énergie définie.

La sélection des détecteurs activables aux neutrons doit se faire en tenant compte d'un certain nombre de propriétés physiques et nucléaires :

- Il est nécessaire que les détecteurs soient d'un degré de pureté élevé, pour éviter les interférences avec d'autres réactions induites par les neutrons sur les éléments pouvant être présents dans les détecteurs ;
- Chaque détecteur doit avoir une épaisseur très faible pour éviter le phénomène d'auto-absorption et de dépression du flux ;
- Les demi-vies des radio-isotopes produits ne doivent être ni trop petites pour pouvoir mesurer les activités induites, ni trop longues pour ne pas causer des risques d'exposition lors de la manipulation des feuilles après activation.

Modèle mathématique du spectromètre multi-feuilles :

Plusieurs feuilles activables de matériaux différents sont généralement utilisées afin de couvrir toute la gamme d'énergie du spectre de neutrons. Le spectromètre multi-feuilles est régi par un système d'équations, reliant l'activité de saturation de chaque détecteur au flux du champ neutronique :

$$\mathcal{A}_i = \int_0^\infty \sigma_i(E) \Phi(E) dE \quad i = \overline{1, m} \quad (\text{IV.5})$$

où m est le nombre de feuilles activables.

Ce problème est un cas dégénéré de l'équation intégrale de "Fredholm de première espèce". Il n'admet pas de solution unique, car un nombre fini de mesures ne permet pas de définir une fonction continue.

Le système d'équations (IV.5) peut s'écrire sous forme discrétisé comme suit :

$$\mathcal{A}_i = \sum_{j=1}^n \omega_j \sigma_i(E_j) \Phi(E_j) + \varepsilon_i \quad i = \overline{1, m} \quad (\text{IV.6})$$

où :

ε_i : erreur associée à l'activité i , elle regroupe un bruit d'observation et une erreur de quadrature ;

ω_j : facteur de pondération quadratique associé au groupe d'énergie j ;

n : nombre de groupes d'énergie.

La résolution du système d'équations (IV.6) peut se faire par une méthode de déconvolution.

IV.2 Description de quelques méthodes de déconvolution des distributions énergétiques des flux de neutrons

Différentes méthodes ont été développées pour résoudre le problème de déconvolution relatif à la spectrométrie neutronique. La plupart de ces méthodes ont adopté la procédure des moindres carrés selon sa variante linéaire ou non-linéaire, certaines sont basées sur des procédures itératives. De nouvelles méthodes utilisent les techniques dites de Monte Carlo. Les codes les plus connus de déconvolution des distributions énergétiques des flux de neutrons sont décrits ci-dessous :

IV.2.1 SPECTRA

C'est l'un des codes les plus anciens de déconvolution par moindres carrés. Il a été élaboré par Greer, Halbleib et Walker [76]. Il est basé sur la minimisation de la fonction \mathcal{L} définie par :

$$\mathcal{L} = \sum_{i=1}^m \left(\frac{A_i - A_i^c}{A_i} \right)^2 + \sum_{j=1}^n \left(\frac{\phi_j^{(k)} - \phi_j^{(k-1)}}{\phi_j^{(k-1)}} \right)^2$$

où :

A_i^c : activité calculée du détecteur i à l'itération (k) : $A_i^c = \sum_{j=1}^n R_{ij} \phi_j^{(k)}$;
 R_{ij} : fonction de réponse du détecteur i dans le groupe d'énergie j ;
 $\phi_j^{(k)}$: flux solution du groupe d'énergie j à l'étape (k) ;
 $\phi^{(k-1)}$: la solution de l'étape $(k-1)$ avec $\phi^{(0)}$ la solution initiale.

La minimisation de la fonction \mathcal{L} au sens des moindres carrés, consiste à déterminer les minimums de \mathcal{L} par rapport aux inconnus $\phi_j^{(k)}$, soit :

$$\frac{\partial \mathcal{L}}{\partial \phi_j^{(k)}} = 0 \quad j = \overline{1, n} \quad (\text{IV.7})$$

La résolution du système d'équations (IV.7) détermine la solution $\phi^{(k)}$ à l'itération (k) . La solution finale est calculée pour un nombre d'itérations donné.

IV.2.2 STAY'SL

Le code STAY'SL a été développé par Perey [70], il se base sur la minimisation de la fonction \mathcal{L} définie par :

$$\mathcal{L} = \begin{bmatrix} X^0 - X \\ A - A^c \end{bmatrix}^T \begin{bmatrix} V_{X^0} & 0 \\ 0 & V_A \end{bmatrix}^{-1} \begin{bmatrix} X^0 - X \\ A - A^c \end{bmatrix}$$

avec :

$$X = \begin{bmatrix} \phi \\ S \end{bmatrix} \quad X^0 = \begin{bmatrix} P \\ \Sigma \end{bmatrix} \quad V_{X^0} = \begin{bmatrix} V_P & 0 \\ 0 & V_\Sigma \end{bmatrix}$$

où :

$A = [A_1, \dots, A_m]$: vecteur des activités mesurées ;
 $A^c = [A_1^c, \dots, A_m^c]$: vecteur des activités calculées ;
 ϕ : vecteur du flux solution ;
 S : vecteur de la section efficace ajustée ;
 P : vecteur de la solution initiale ;
 $\Sigma^i = [\Sigma_1^i, \dots, \Sigma_n^i]$: vecteur de la section efficace de la réaction i pour n groupes d'énergie ;
 $\Sigma = [\Sigma_1^1, \dots, \Sigma_n^1, \Sigma_1^2, \dots, \Sigma_n^2, \dots, \Sigma_1^m, \dots, \Sigma_n^m]$: vecteur des sections efficaces des m réactions pour les n groupes d'énergie (mn) ;
 V_A : matrice des covariances de A $(m \times m)$;

V_P : matrice des covariances de P ($n \times n$);

V_Σ : matrice des covariances de Σ ($mn \times mn$).

Le vecteur S a été introduit comme une inconnue pour augmenter la dimension du problème et pour introduire les incertitudes de ses éléments dans le calcul de la solution.

La minimisation de la fonction \mathcal{L} par rapport au vecteur des paramètres X , a permis à Perey d'aboutir à une solution de la forme :

$$X = X^0 + V_{X^0} G^T (V_{A^c} + V_A)^{-1} (A - A^c) \quad (\text{IV.8})$$

et la matrice des covariances est donnée par la relation suivante :

$$V_X = V_{X^0} - V_{X^0} G^T (V_{A^c} + V_A)^{-1} G V_{X^0}$$

où G est la matrice de sensibilité définie par $\Delta A = G \Delta X$, elle est de dimension ($m \times n(m+1)$). La matrice G transforme les variations du vecteur des paramètres en des variations sur les activités, G s'exprime sous la forme suivante :

$$G = \begin{bmatrix} \Sigma^{1T} & P^T & 0 & 0 & \dots & 0 \\ \Sigma^{2T} & 0 & P^T & 0 & \dots & 0 \\ \Sigma^{3T} & 0 & 0 & P^T & \dots & 0 \\ \vdots & \vdots & \vdots & \vdots & \ddots & \vdots \\ \Sigma^{mT} & 0 & 0 & 0 & \dots & P^T \end{bmatrix}$$

V_{A^c} est la matrice des covariances de A^c , elle se détermine à l'aide de la relation $V_{A^c} = G V_X G^T$.

Le code STAY'SL détermine uniquement la composante ϕ du vecteur des paramètres X . La solution calculée par le code STAY'SL (Eq. IV.8) est un ajustement de la solution initiale P .

IV.2.3 SAND II

Le code SAND II (Spectrum Analysis by Neutron Detectors II) est l'un des codes de déconvolution les plus cités dans la littérature. Il a été développé par McElroy et al. [77]. La méthode de calcul utilisée par le code SAND II consiste à modifier un spectre initial par une procédure itérative, jusqu'à ce que des écarts acceptables entre les activités cal-

culées et les activités mesurées soient obtenus.

Le spectre solution $\phi^{(k)}$ à l'itération (k) est déterminée par la méthode du gradient selon la procédure suivante :

- Le rapport $R_i^{(k)}$ entre l'activité mesurée et celle calculée à l'étape (k) est déterminé pour chaque réaction :

$$R_i^{(k)} = \frac{A_i}{A_i^c}, \quad i = 1, \dots, m$$

où :

A_i : activité mesurée du détecteur i ;

A_i^c : activité calculée du détecteur i , $A_i^c = \sum_{j=1}^n \sigma_{ij} \phi_j^{(k-1)}$;

σ_{ij} : section efficace de la réaction i dans le groupe d'énergie j ;

$\phi_j^{(k-1)}$: flux du groupe j de l'étape ($k-1$), $\phi^{(0)}$ est le flux initiale.

- le spectre est modifié en prenant :

$$\log(\phi_j^{(k)}) = \log(M_j^{(k)}) + \log(\phi_j^{(k-1)}) \quad j = 1, \dots, n$$

où le facteur de modification $M_j^{(k)}$ est donné par l'équation :

$$\log(M_j^{(k)}) = \frac{\sum_{i=1}^m w_{ij}^{(k)} \log(R_i^{(k)})}{\sum_{i=1}^m w_{ij}^{(k)}} \quad j = 1, \dots, n$$

- Les pondérations w_{ij} sont déterminées par :

$$w_{ij}^{(k)} = \frac{\sigma_{ij} \phi_j^{(k-1)}}{\sum_{j=1}^n \sigma_{ij} \phi_j^{(k-1)}}$$

Pour tenir compte de la condition de positivité du flux, le code SAND II utilise un changement de variable $\phi \rightarrow \log(\phi)$.

IV.2.4 SWIFT

Ce code a été élaboré par O'Brien et Sanna [78, 79], il permet de déterminer la distribution énergétique du flux de neutrons à l'aide de mesures par sphères de Bonner. Le

code SWIFT utilise une méthode Monte Carlo de déconvolution qui consiste à générer un flux de manière aléatoire jusqu'à atteindre un ensemble d'activités calculées compatibles avec les mesures expérimentales :

$$A_i = \sum_{j=1}^n \omega_j R_{ij} \phi_j \quad i = 1, \dots, m$$

où :

A_i : activité du détecteur i ;

ϕ_j : flux de neutrons du groupe d'énergie j ;

R_{ij} : fonction de réponse du détecteur i dans le groupe d'énergie j ;

$\omega_j = E_{j+1} - E_j$: largeur du groupe d'énergie j .

La procédure de calcul implémentée dans le code SWIFT se résume aux étapes suivantes :

- Elle débute par la génération de n nombres aléatoires β_j dans l'intervalle $[0, 1]$. Ces nombres aléatoires sont considérés comme des valeurs de flux par groupe d'énergie.
- Des pseudo-activités sont calculées :

$$A'_i = \sum_{j=1}^n R_{ij} \beta_j$$

- et un facteur de normalisation est alors déterminé :

$$N = \frac{\sum_{i=1}^m A_i}{\sum_{i=1}^m A'_i}$$

- L'estimation Monte Carlo du flux est donnée par :

$$\phi_j = \frac{\beta_j}{\omega_j} N, \quad j = 1, \dots, n$$

où ω_j est la largeur du groupe d'énergie j .

- Le critère d'estimation d'une bonne solution est calculé comme suit :

$$H_i = \frac{\sum_{j=1}^n \omega_j R_{ij} \phi_j - A_i}{A_i}, \quad i = 1, \dots, m$$

Un flux ϕ calculé à l'étape k est considéré comme meilleur que celui accepté à l'étape l si la condition suivante est vérifiée :

$$[\max(H_i)]_k < [\max(H_i)]_l$$

La solution finale est exprimée par la moyenne des quatre meilleures solutions obtenues par cette procédure de calcul.

IV.2.5 FRUIT

Le code FRUIT (FRascati Unfolding Interactive Tool) est un code de déconvolution de la distribution spectrale du flux neutronique à l'aide de mesures par sphères de Bonner [80]. Les taux de comptage mesurés A_i sont reliés au spectre de neutrons par la relation suivante :

$$A_i = \Phi \sum_{j=1}^n R_i(E_j) \phi(E_j) \Delta E_j \quad i = 1, \dots, m$$

où :

Φ : fluence de neutrons (cm^{-2});

$R_i(E_j)$: fonction de réponse du détecteur i à l'énergie E_j (cm^2);

$\phi(E_j)$: flux de neutrons à l'énergie E_j normalisée à $1 \text{ cm}^{-2} (\text{s}^{-1} \text{ MeV}^{-1})$, $\Phi \phi(E_j)$ est la valeur du flux non normalisée ($\text{s}^{-1} \text{ cm}^{-2} \text{ MeV}^{-1}$);

n : nombre de groupes d'énergie;

m : nombre de détecteurs.

Selon le champ neutronique considéré, le code permet de sélectionner le modèle physique approprié afin de procéder à la déconvolution du flux. Le flux neutronique dans FRUIT est régi par une équation sous forme d'une combinaison linéaire de quatre composantes comme suit :

$$\phi(E) = P_{th} \phi_{th}(E) + P_e \phi_e(E) + P_f \phi_f(E) + P_{hi} \phi_{hi}(E)$$

où $\phi_{th}(E)$, $\phi_e(E)$, $\phi_f(E)$, $\phi_{hi}(E)$ sont les composantes des neutrons thermiques, épithermique, fission et haute énergie, dont les fractions respectives sont P_{th} , P_e , P_f et P_{hi} .

Ces fractions ainsi que trois autres facteurs définissant les formes des distributions de neutrons sont les paramètres de la procédure de déconvolution et sont déterminés selon l'algorithme suivant :

A partir d'une solution $\phi_k(E)$ acceptée à l'étape k , une nouvelle solution $\phi_{k+1}(E)$ est produite en perturbant aléatoirement l'un des paramètres dont la sélection se fait de manière aléatoire. $\phi_{k+1}(E)$ est acceptée comme nouvelle solution si l'une des deux conditions suivantes est vérifiée :

- 1- $\delta^{k+1} < \delta^k$, où $\delta^k = \frac{1}{m} \sum_{i=1}^m \xi_i^k$ et $\xi_i^k = \frac{|A_i - A_{i,k}^c|}{u_i}$ avec $A_{i,k}^c$ le taux de comptage calculé à l'étape k et u_i l'incertitude sur la valeur mesurée A_i .
- 2- $\delta^{k+1} > \delta^k$ mais la condition $\frac{\delta^{k+1} - \delta^k}{\delta^k} < \frac{\xi_{max}^k - \xi_{max}^{k+1}}{\xi_{max}^k}$ est vérifiée.

Il est à signaler que la solution est dépendante des paramètres initiaux et de leurs valeurs limites imposées.

IV.2.6 MAXED

Le code MAXED (MAXimum Entropy Deconvolution) a été développé par Reginatto et al. [81, 82], pour la détermination du flux neutronique à partir de mesures effectuées avec les sphères de Bonner. Les taux de comptage mesurés A_i sont régis par l'équation suivante :

$$A_i + \varepsilon_i = \sum_{j=1}^n R_{ij} \phi_j \quad i = 1, \dots, m$$

Pour l'ensemble des solutions possibles, on veut sélectionner celle qui maximise l'entropie S de la distribution :

$$S = - \sum_{j=1}^n \phi_j \log(\phi_j / \phi_j^0) + \phi_j^0 - \phi_j$$

où : ϕ^0 est la solution a priori.

L'algorithme utilisant le principe d'entropie maximale, a été initialement développé pour le traitement des images en astrophysique [83]. Il a été adapté à la détermination du flux neutronique pour une spectrométrie à l'aide des sphères de Bonner.

Le lagrangien associé à ce problème de maximisation est de la forme :

$$\mathcal{L} = - \left\{ \sum_{j=1}^n \phi_j \log(\phi_j/\phi_j^0) + \phi_j^0 - \phi_j \right\} - \sum_{i=1}^m \lambda_i \left\{ \sum_{j=1}^n R_{ij} \phi_j - A_i - \varepsilon_i \right\} - \mu \left\{ \sum_{i=1}^m \varepsilon_i^2 / \sigma_i^2 - \Omega \right\}$$

où : σ_i sont les écarts-types associés aux mesures et Ω est le facteur statistique fixé comme étant égale au nombre de détecteurs. λ_i , μ sont les $(m + 1)$ multiplicateurs de Lagrange. Les variations par rapport à ϕ_j , ε_i et μ conduisent à un ensemble de $(n + m + 1)$ équations.

En exprimant ϕ_j , ε_i et μ en fonction des λ_i , le problème initial d'optimisation est reformulé en termes de recherche du maximum de Z défini par :

$$Z = - \sum_{j=1}^n \phi_j^0 \exp \left(- \sum_{i=1}^m \lambda_i R_{ij} \right) - \left(\Omega \sum_{i=1}^m (\lambda_i \sigma_i)^2 \right)^{1/2} - \sum_{i=1}^m A_i \lambda_i + \sum_{j=1}^n \phi_j^0$$

Une fois les valeurs des λ_i obtenues, elles sont remplacées dans l'équation ci-dessous pour obtenir les valeurs de flux ϕ_j :

$$\phi_j = \phi_j^0 \exp \left(- \sum_{i=1}^m \lambda_i R_{ij} \right) \quad j = 1, \dots, n$$

D'après cette dernière équation, la détermination du flux se réduit à un léger ajustement de la solution a priori.

Les procédures de calcul implémentées dans les codes cités précédemment, bien qu'elles diffèrent par les méthodes mathématiques utilisées, présentent toutes la même caractéristique qui est l'ajustement d'une solution a priori.

IV.3 Description d'une méthode Bayésienne de déconvolution

La théorie des probabilités de Bayes fournit un outil mathématique cohérent permettant d'exploiter les informations obtenues à partir des mesures ainsi que des informations

additionnelles connues a priori sur la solution. Selon le théorème de Bayes, la probabilité qu'une distribution de flux de neutrons Φ soit solution du problème de déconvolution est conditionnée par les données mesurées $\mathcal{A} = \{\mathcal{A}_1, \mathcal{A}_2, \dots, \mathcal{A}_m\}$ et soumis à la contrainte $\mathcal{C}(\Phi)$ est donné par :

$$P(\Phi|\mathcal{A}, \mathcal{C}) \propto \exp \left[-\frac{1}{2} \sum_i^m \left(\frac{\mathcal{A}_i - \sum_{j=1}^n \omega_j \sigma_i(E_j) \Phi(E_j)}{\Delta \mathcal{A}_i} \right)^2 - \lambda \mathcal{C}(\Phi) \right]$$

où λ est une pondération relative à la contrainte \mathcal{C} .

Une solution acceptable physiquement est une distribution de flux neutronique qui maximise la probabilité conditionnelle $P(\Phi|\mathcal{A}, \mathcal{C})$ ou de manière équivalente qui minimise la fonction $\mathcal{L}(\Phi)$ donnée par :

$$\mathcal{L}(\Phi) = \frac{1}{2} \sum_i^m \left(\frac{\mathcal{A}_i - \sum_{j=1}^n \omega_j \sigma_i(E_j) \Phi(E_j)}{\Delta \mathcal{A}_i} \right)^2 + \lambda \mathcal{C}(\Phi) \quad (\text{IV.9})$$

Différentes formulations de la fonction de régularisation ont été proposées. Dans le cas où une distribution a priori est connue, la contrainte de forme est souvent utilisée. Elle consiste à minimiser la déviation entre la solution finale et une solution a priori. Mais, quant une solution a priori n'est pas disponible, une condition de lissage et de positivité de la solution sont imposées séparément ou combinées en une seule contrainte.

Bien que la condition de positivité de la solution assure l'obtention d'un spectre ayant un sens physique, la contrainte de lissage peut modifier la forme du spectre, et lorsqu'elle est appliquée de manière excessive, elle peut éliminer toutes les discontinuités et par conséquent les structures locales de la distribution de flux neutronique ne seront pas révélées [84, 85].

Dans cette méthode de déconvolution, une propriété générale d'une grandeur physique dérivée de la théorie de l'information est implémentée. Selon, cette théorie l'erreur quadratique moyenne $\epsilon^2 = \langle [\Phi - \Phi_r]^2 \rangle$ sur la solution estimée Φ , obéit à l'inégalité de Cramer-Rao donnée par :

$$\epsilon^2 I(\Phi) \geq 1$$

où Φ_r est la solution réelle et $I(\Phi)$ est l'information de Fisher donnée par :

$$I(\Phi) = \int \frac{1}{\Phi} \left(\frac{d\Phi}{dE} \right)^2 dE$$

ou sous sa forme discrète :

$$I(\Phi) = \sum_{j=1}^n \frac{1}{\Phi_j} \left(\frac{d\Phi_j}{dE_j} \right)^2 \quad (\text{IV.10})$$

L'information de Fisher I est une mesure de la qualité de discrimination d'une méthode d'estimation. Plus l'erreur quadratique est élevée, plus basse est l'information de Fisher. Lorsqu'aucune information n'est disponible sur la solution réelle, l'erreur quadratique sur l'estimation de la solution est grande et son information de Fisher atteint sa valeur minimale, cependant cette erreur reste la plus faible comparée à n'importe quel autre estimateur.

Comme, l'expression de l'information de Fisher est sous forme d'un rapport entre le carré de la dérivée $(d\Phi/dE)^2$ et le flux Φ , ceci a pour effet de garantir le lissage de la solution et préserver les discontinuités quand elles se produisent.

Dans le présent travail, la régularisation par l'information de Fisher est appliquée pour la première fois pour un problème sous-déterminé, dit de déconvolution à "faible nombre de canaux" comme c'est le cas de la spectrométrie par activation neutronique ou par les sphères de Bonner.

IV.3.1 Réalisation d'un code de déconvolution des distributions énergétiques des flux de neutrons

La méthode bayésienne proposée pour la déconvolution des distributions énergétiques des flux de neutrons a été implémentée en langage C. Elle se base sur la minimisation de la fonction de régularisation \mathcal{L} (Eq. IV.9) par l'algorithme du recuit simulé (IV.1) avec un échantillonnage Monte Carlo des solutions successives.

Dans le cas où aucune information sur la solution initiale n'est disponible, la méthode de déconvolution peut démarrer à partir d'une distribution uniforme, où le flux est égale à une constante non nulle sur toute la gamme d'énergie des neutrons ($\Phi^{(0)} = \text{const.}$).

A chaque nouvelle étape de l'algorithme ($k+1$), la distribution de flux à une énergie E_j de l'étape (k) est perturbée par une petite variation aléatoire selon la relation suivante :

$$\Phi_j^{(k+1)} = \Phi_j^{(k)} [1 + \xi \mathcal{R}]$$

où :

$\Phi_j^{(k)}$: valeur du flux de neutrons à l'énergie E_j et à l'étape (k);

\mathcal{R} : nombre aléatoire généré selon une distribution normale de moyenne 0 et de variance 1, la génération des nombres aléatoires se fait à l'aide de la librairie Mersenne Twister ;

ξ : constante fixée, généralement à $\approx 10^{-2}$, ce qui permet de tester des valeurs de flux dans le voisinage proche de la solution acceptée à l'étape (k);

Afin d'éviter les brusques fluctuations dans les évaluations numériques, et plus précisément dans les calculs des dérivées premières qui apparaissent dans l'expression de

Algorithme IV.1 Recuit Simulé appliqué à la déconvolution d'une distribution énergétique du flux neutronique

initialiser un compteur $k \leftarrow 0$

initialiser la température T

initialiser le point de départ j

choisir $\Phi_j^{(k)}$ ▷ solution initiale uniforme $\Phi^{(0)} = const.$

évaluer $\mathcal{L}^{(k)}$

repeat

repeat

 choisir $\Phi_j^{(k+1)}$

 évaluer $\mathcal{L}^{(k+1)}$

if $\mathcal{L}^{(k+1)} < \mathcal{L}^{(k)}$ **then**

$\Phi_j^{(k)} \leftarrow \Phi_j^{(k+1)}$

else if $r < \exp\left(-\frac{\mathcal{L}^{(k+1)} - \mathcal{L}^{(k)}}{T}\right)$ **then** ▷ r : nombre aléatoire uniforme $\in [0, 1)$

$\Phi_j^{(k)} \leftarrow \Phi_j^{(k+1)}$

else

$j \leftarrow j + 1$

end if

until (Balayage de toute la distribution)

$T \leftarrow g(T, k)$ ▷ faire décroître la température

$k \leftarrow k + 1$

until (Condition d'arrêt des calculs)

l'information de Fisher, on a adopté un changement de variable logarithmique lors du calcul du terme de régularisation, c'est à dire remplacer Φ_j par $\Phi_j^* = \log(\Phi_j)$ dans l'expression (IV.10).

Puisque la méthode de déconvolution utilise un échantillonnage Monte Carlo des solutions successives, la solution finale ainsi que sa déviation standard sont déterminées à partir d'une étude statistique d'une série de solutions obtenues par des exécutions répétées du code de calcul réalisé [78, 86]. Une série constituée de dix solutions a été jugée suffisante pour obtenir une statistique raisonnable.

La méthode Bayésienne de déconvolution des distributions énergétiques des flux de neutrons que nous avons développée a fait l'objet d'un article publié dans la revue *IEEE Transactions on Nuclear Science* (cf. annexe B).

IV.4 Validation de la méthode développée

La méthode que nous avons développée a été validée par des données simulées et par des mesures expérimentales issues de benchmarks⁽¹⁾ ou trouvées dans la littérature.

IV.4.1 Validation de la méthode pour un cas simulé

Une validation de la méthode bayésienne de déconvolution a été réalisée en utilisant des activités synthétisées à partir d'un spectre typique d'un réacteur nucléaire. Ce dernier est une combinaison d'une distribution Maxwellienne pour la composante thermique du flux de neutron, un terme en $1/E$ pour les neutrons d'énergie intermédiaire et une distribution de fission pure régie par la distribution de Watt pour la région des neutrons rapides :

$$\Phi(E) = \Phi_{th} \frac{E}{(kT)^2} \exp(-E/kT) + \Phi_{epi} \frac{\Delta(E)}{E} + \Phi_f \exp(-E) \sinh \sqrt{2E} \quad (\text{IV.11})$$

où $\Delta(E)$ est une fonction de liaison entre les régions thermique et épithermique, son expression a été choisie de la forme : $\Delta(E) = (1 + (5 \times 10^{-8}/E)^{1.5})^{-1}$. Les paramètres Φ_{th} , Φ_{epi} et Φ_f ont été fixés à $10^{20} \text{ cm}^{-2} \text{ s}^{-1}$, $10^7 \text{ cm}^{-2} \text{ s}^{-1}$ et $10^{10} \text{ MeV}^{-1} \text{ cm}^{-2} \text{ s}^{-1}$ respectivement.

(1). Un benchmark est un banc d'essai permettant de mesurer les performances d'un système pour le comparer à d'autres.

Afin de balayer toute la gamme d'énergies des neutrons, nous avons sélectionné des réactions de capture radiative (n, γ), dont les sections efficaces s'étalent sur une gamme d'énergie allant de la région thermique à la région intermédiaire, ainsi que des réactions à seuils définies sur la gamme d'énergie des neutrons rapides.

Les sections efficaces de neuf réactions (n, γ), trois réactions (n, f) et huit réactions à seuils ont été prises en considérations dans le but de réaliser cette validation (cf. Tab. IV.1). Les sections efficaces ont été préparées à l'aide du code PREPRO-2007 et de la base de données ENDF-B-VII, sur une gamme d'énergie allant de 10^{-4} eV à 20 MeV selon une échelle logarithmique régulièrement subdivisée en 100 groupes. Les activités synthétiques ont été calculées par intégration numérique de la convolution des sections efficaces et du flux donné par l'expression (IV.11).

TABLE IV.1 – Rapport d'activités calculées A_c sur synthétisées A_s , obtenus par déconvolution sans et avec contrainte de régularisation, d'une distribution de neutrons semi-empirique typique d'un réacteur nucléaire.

Réaction	Activité de saturation (s^{-1})	A_c/A_s	
		sans contrainte	avec contrainte
$^{45}Sc(n, \gamma)^{46}Sc$	$(2.87 \pm 0.14) \times 10^{-15}$	1.000 ± 0.050	1.000 ± 0.050
$^{55}Mn(n, \gamma)^{56}Mn$	$(1.31 \pm 0.07) \times 10^{-15}$	1.000 ± 0.050	1.000 ± 0.050
$^{59}Co(n, \gamma)^{60}Co$	$(4.63 \pm 0.23) \times 10^{-15}$	1.000 ± 0.050	1.000 ± 0.050
$^{58}Fe(n, \gamma)^{59}Fe$	$(1.61 \pm 0.08) \times 10^{-16}$	1.000 ± 0.050	1.000 ± 0.050
$^{63}Cu(n, \gamma)^{64}Cu$	$(6.41 \pm 0.32) \times 10^{-16}$	1.000 ± 0.050	1.002 ± 0.050
$^{115}In(n, \gamma)^{116}In$	$(4.61 \pm 0.23) \times 10^{-14}$	1.000 ± 0.050	1.000 ± 0.050
$^{186}W(n, \gamma)^{187}W$	$(8.48 \pm 0.42) \times 10^{-15}$	1.000 ± 0.050	1.000 ± 0.050
$^{197}Au(n, \gamma)^{198}Au$	$(2.12 \pm 0.11) \times 10^{-14}$	1.000 ± 0.050	1.000 ± 0.050
$^{238}U(n, \gamma)^{239}U$	$(2.55 \pm 0.13) \times 10^{-15}$	1.000 ± 0.050	1.000 ± 0.050
$^{46}Ti(n, p)^{46}Sc$	$(2.27 \pm 0.11) \times 10^{-16}$	1.000 ± 0.050	1.001 ± 0.050
$^{48}Ti(n, p)^{48}Sc$	$(6.02 \pm 0.30) \times 10^{-18}$	1.000 ± 0.050	1.014 ± 0.051
$^{54}Fe(n, p)^{54}Mn$	$(1.65 \pm 0.08) \times 10^{-15}$	1.001 ± 0.050	0.999 ± 0.050
$^{58}Ni(n, p)^{58}Co$	$(2.16 \pm 0.11) \times 10^{-15}$	0.999 ± 0.050	0.999 ± 0.050
$^{60}Ni(n, p)^{60}Co$	$(5.43 \pm 0.27) \times 10^{-17}$	1.000 ± 0.050	0.998 ± 0.050
$^{27}Al(n, \alpha)^{24}Na$	$(1.98 \pm 0.10) \times 10^{-17}$	1.000 ± 0.050	0.985 ± 0.049
$^{115}In(n, n')^{115m}In$	$(4.00 \pm 0.20) \times 10^{-15}$	1.000 ± 0.050	1.001 ± 0.050
$^{197}Au(n, 2n)^{196}Au$	$(6.95 \pm 0.35) \times 10^{-17}$	1.000 ± 0.050	1.003 ± 0.050
$^{235}U(n, f)$	$(7.11 \pm 0.36) \times 10^{-14}$	1.000 ± 0.050	0.998 ± 0.050
$^{237}Np(n, f)$	$(2.78 \pm 0.14) \times 10^{-14}$	1.000 ± 0.050	0.999 ± 0.050
$^{238}U(n, f)$	$(6.24 \pm 0.31) \times 10^{-15}$	1.000 ± 0.050	1.001 ± 0.050

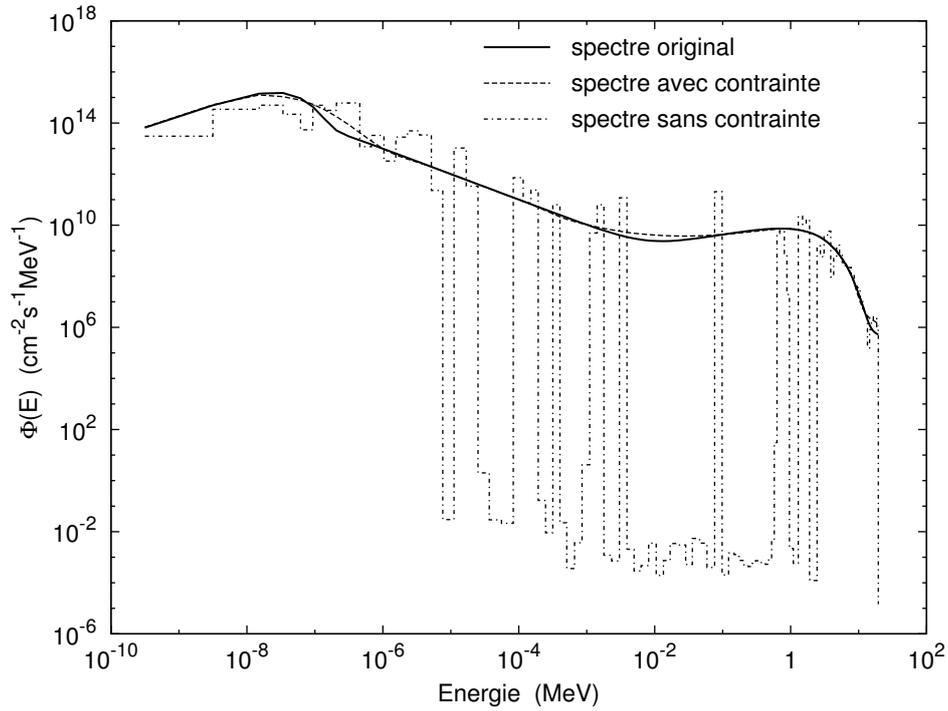


FIGURE IV.2 – Spectres de flux de neutrons obtenus avec et sans contrainte d’une distribution semi-empirique du flux neutronique typique d’un réacteur nucléaire.

La validation de la méthode de déconvolution consiste à tester sa capacité à trouver une solution dont les activités sont aussi proches que possible des activités synthétiques.

Pour avoir une appréciation de l’apport de l’information de Fisher sur la qualité du spectre déconvolué, les calculs ont été effectués dans un premier cas avec une contrainte de régularisation et dans un second cas sans contrainte de régularisation, c’est à dire $\lambda = 0$.

Les rapports entre les activités de saturation calculées et synthétisées déterminées à partir des spectres neutroniques déconvolué et original sont reportés sur le tableau (IV.1), pour les deux cas étudiés, c’est à dire le cas sans information de Fisher et le cas avec information de Fisher. On constate que tous les rapports sont très proches de l’unité pour les deux cas étudiés.

Toutefois, le spectre neutronique obtenu dans le cas sans contrainte de régularisation, représenté sur la figure (IV.2) présente des fluctuations qui sont absentes sur le spectre original, ce dernier est plutôt lisse et continu sur toute la gamme d’énergie des neutrons. Cet exemple illustre le cas où des valeurs exactes d’activités calculées sont obtenues à partir de spectres de neutrons différents, ce qui conduit à conclure que de bons rapports

d'activités calculées sur mesurées n'est pas un critère suffisant pour apprécier la qualité de la solution déconvoluée.

La contrainte de régularisation de Fisher permet d'obtenir un spectre de neutron lisse et continu reproduisant la même allure que le spectre original, avec des rapports d'activités calculées sur mesurées proches de l'unité tel que reporté sur la troisième colonne du tableau (IV.1). Ces rapports sont très proches de 1 pour les réactions (n, γ) car leurs sections efficaces s'étalent sur toute la gamme d'énergie des neutrons, ce qui n'est pas le cas pour les réactions à seuil qui sont définies sur quelques groupes d'énergie dans la région des neutrons rapides.

L'efficacité de la méthode de déconvolution peut être évaluée par la déviation de la solution trouvée par rapport au spectre original selon l'expression suivante :

$$\frac{1}{n} \sum_{j=1}^n \left(\log \frac{\Phi_j^s}{\Phi_j^o} \right)^2$$

où Φ_j^s et Φ_j^o sont respectivement les spectres solution et original à l'énergie E_j .

Des déviations de 358.70 et 0.12 ont été trouvées pour les cas respectifs sans contrainte et avec contrainte de régularisation, ce qui reflète la capacité de la méthode de déconvolution adoptée, dans le cas d'une régularisation de Fisher, à restaurer la solution.

IV.4.2 Validation de la méthode pour des données expérimentales

Données du Benchmark "ANO" :

La méthode développée a été validée par des données expérimentales, prises de la base de données dite fichier de métrologie des neutrons (NMF-90) [87]. Ce dernier contient un ensemble de données constituées d'activités de saturations et de spectres a priori pour six champs neutroniques de réacteurs benchmarks. Il contient aussi un ensemble d'utilitaires permettant la préparation des données tels que les programmes UMSDAT, MCROBI et MFITIB, ainsi qu'une librairie de sections efficaces appropriées pour la dosimétrie des réacteurs IRDF-2002 (International Reactor Dosimetry File) [88].

Les données du réacteur de puissance Arkansas Nuclear Unit One (ANO) ont été sélectionnées pour cette validation, ce cas constitue un problème typique de déconvolution du spectre neutronique d'un réacteur, où le nombre de détecteurs utilisés est inférieur au nombre de groupes d'énergie. Le benchmark ANO contient les données de six activités de

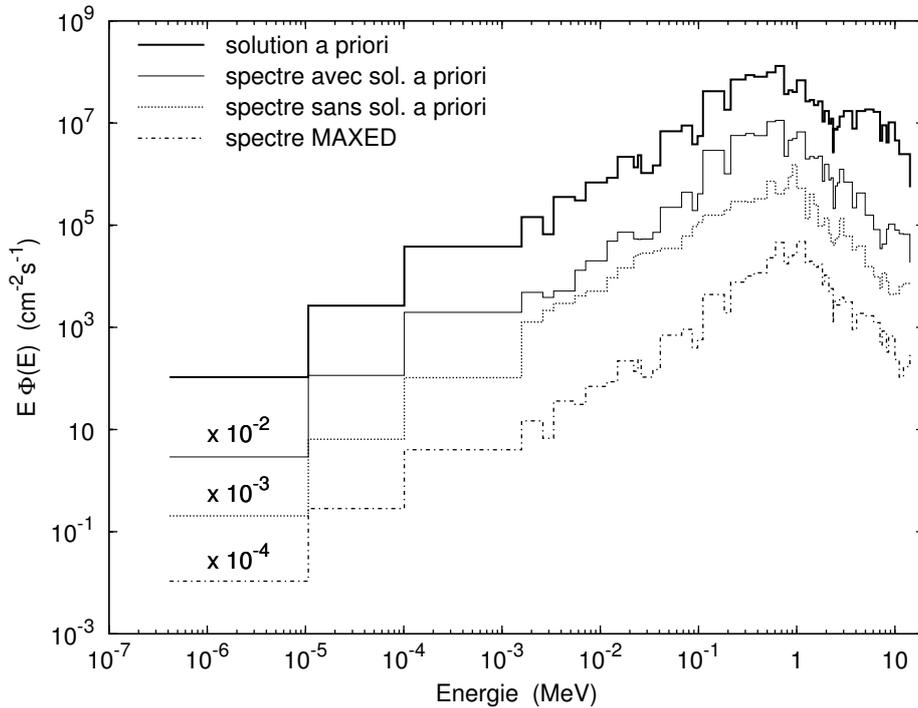


FIGURE IV.3 – Comparaison entre la solution a priori de ANO et les spectres obtenus par MAXED et par le code réalisé, les spectres sont décalés selon les facteurs indiqués.

saturations dont quatre réactions à seuil : $^{46}\text{Ti}(n, p)^{46}\text{Sc}$, $^{54}\text{Fe}(n, p)^{54}\text{Mn}$, $^{58}\text{Ni}(n, p)^{58}\text{Co}$, et $^{63}\text{Cu}(n, \alpha)^{60}\text{Co}$, et deux réactions de fission : $^{238}\text{U}(n, f)$, et $^{237}\text{Np}(n, f)$. Il contient aussi un spectre a priori s'étalant sur 55 groupes d'énergie allant de 4.14×10^{-7} à 14.19 MeV, la gamme d'énergie est répartie en : un groupe thermique, 26 groupes intermédiaires et 28 groupes rapides. La préparation des sections efficaces des réactions citées ci-dessus a été faite grâce à la librairie IRDF-2002, pour se placer dans les mêmes conditions que le benchmark duquel ont été puisées les données. Les sections efficaces étant originalement sous un format ENDF, elles ont été adaptées à la nouvelle base d'énergie correspondant à celle du spectre a priori, à l'aide des programmes UMSDAT et MFITIB.

Le code de calcul réalisée a été exécuté pour deux cas, le premier cas consiste à démarrer les calculs à partir de la solution a priori, le second cas consiste à prendre comme solution initiale une distribution uniforme ($\Phi = \text{const.}$). Le but est de statuer sur le comportement de la procédure de calcul en présence ou non d'une solution a priori.

Le spectre neutronique du benchmark ANO a aussi été déterminé à l'aide du code MAXED (cf. Fig. IV.3). Ce dernier étant un code d'ajustement, il a nécessité l'introduction

d'un spectre a priori comme solution par défaut. Les activités de saturation et les sections efficaces utilisées comme données d'entrée sont identiques à celles que nous avons utilisées pour le code que nous avons réalisé, ce qui nous a permis de comparer entre les résultats obtenus dans les deux cas.

Les résultats des rapports des activités calculées et mesurées A_c/A_m sont reportés dans le tableau (IV.2). Les rapports calculés à partir de la solution a priori sont autour de 1, ce qui implique qu'un léger ajustement suffit pour obtenir une bonne solution au problème. C'est le cas du code MAXED et du code réalisé quant la solution a priori a été introduite. Les spectres obtenus sont représentés sur la figure (IV.3) avec un décalage vertical selon le facteur indiqué, afin d'éviter leur superposition.

TABLE IV.2 – Comparaison des activités calculées et mesurées du benchmark ANO obtenus par MAXED et par le code de déconvolution réalisé avec et sans solution a priori.

Réaction	Activité de saturation (1/s)	A_c/A_m			
		solut. a priori	MAXED	Code réalisé avec solut. a priori	Code réalisé sans solut. a priori
$^{63}\text{Cu}(n, \alpha)^{60}\text{Co}$	$(1.90 \pm 0.13) \times 10^{-19}$	0.795	1.030 ± 0.100	1.002 ± 0.071	1.000 ± 0.070
$^{46}\text{Ti}(n, p)^{46}\text{Sc}$	$(2.35 \pm 0.19) \times 10^{-18}$	0.949	1.028 ± 0.117	0.996 ± 0.085	1.000 ± 0.082
$^{58}\text{Ni}(n, p)^{58}\text{Co}$	$(1.73 \pm 0.14) \times 10^{-17}$	0.856	1.066 ± 0.117	1.012 ± 0.082	1.006 ± 0.082
$^{54}\text{Fe}(n, p)^{54}\text{Mn}$	$(1.26 \pm 0.10) \times 10^{-17}$	0.833	1.017 ± 0.114	0.991 ± 0.081	0.994 ± 0.081
$^{238}\text{U}(n, f)$	$(7.42 \pm 0.87) \times 10^{-17}$	0.823	1.048 ± 0.171	0.999 ± 0.122	0.998 ± 0.118
$^{237}\text{Np}(n, f)$	$(1.07 \pm 0.09) \times 10^{-15}$	1.004	0.823 ± 0.104	0.998 ± 0.082	1.000 ± 0.080

On constate que les activités calculées par notre code sont en très bon accord avec celles mesurées puisque les rapports des activités sont très proches de 1. Les spectres correspondants (cf. Fig. IV.3), même celui obtenu sans solution a priori, suivent la même allure que la solution a priori. Cette dernière a été déterminée par le code MCNP et représente la meilleure estimation du vrai spectre ANO. De plus, le spectre obtenu sans solution a priori, a pu révéler les discontinuités se trouvant dans le voisinage des énergies de 1 et 2 MeV, qui ont déjà été rapportées par d'autres auteurs [89].

Données du réacteur de recherche FRM-II :

Le nombre de feuilles pouvant être utilisées de manière raisonnable pour une spectrométrie par multi-feuilles est toujours inférieur au nombre de groupes d'énergie où le flux est déterminé. Dans le but de surmonter le problème de sous-détermination du système d'équations (IV.6), les programmes de déconvolution les plus connus font intervenir une solution a priori qui représente la meilleure estimation du spectre réel de neutrons. Cette solution a priori sera ajustée de manière à obtenir des activités calculées qui soient en bon accord avec celles mesurées. L'obtention de bon résultats de déconvolution, dépend fortement de l'efficacité de la méthode de déconvolution ainsi que du degré de rapprochement entre la solution a priori et la solution réelle.

Les activités de saturation ayant servi à la détermination du flux de neutrons du canal rapide du réacteur de recherche FRM-II, ont été puisées de l'article [90]. C'est un ensemble de 22 réactions dont 16 réactions à seuil appropriées pour la région des neutrons rapides, cinq réactions de capture radiative (n, γ) pour la région des neutrons thermiques et épithermiques et une réaction (n, γ) à l'intérieur d'une capsule de cadmium pour la région des neutrons épithermiques (cf. Tab. IV.3). Les sections efficaces de ces réactions ont été préparées à l'aide du code PREPRO-2007 et de la base de données ENDF-B-VII, sur 640 groupes d'énergie correspondant à la structure de SAND II.

Le réacteur de recherche FRM-II est la propriété de l'Université Technique de Munich (Allemagne). Il a été conçu pour faire de la recherche fondamentale, mais aussi pour réaliser des applications techniques. Le réacteur FRM-II, de puissance nominale de 20 MW, est doté d'éléments combustibles cylindriques refroidis à l'eau légère et situés au centre d'un grand conteneur d'eau lourde jouant le rôle de modérateur. Deux éléments combustibles plats placés dans le conteneur d'eau lourde et situés à une distance d'environ un mètre du cœur du réacteur, permettent de convertir les neutrons thermiques en neutrons rapides. Ce dispositif fournit un champ neutronique rapide pour des applications médicales [91].

Le code de calcul réalisé a été exécuté pour déterminer la distribution énergétique du flux de neutrons du canal rapide MEDAPP. Le flux est calculé sur 640 groupes d'énergie selon la structure de SAND II, à partir de 22 activités de saturation et avec une solution initiale uniforme ($\Phi = \text{const.}$). Le but de cette application est de tester l'efficacité de la méthode de déconvolution dans le cas d'un problème fortement sous-déterminé, c'est à dire $m \ll n$ dans l'équation (IV.6), et sans disposer d'une solution a priori.

Le spectre déterminé par déconvolution est représenté sur la figure (IV.4) en même

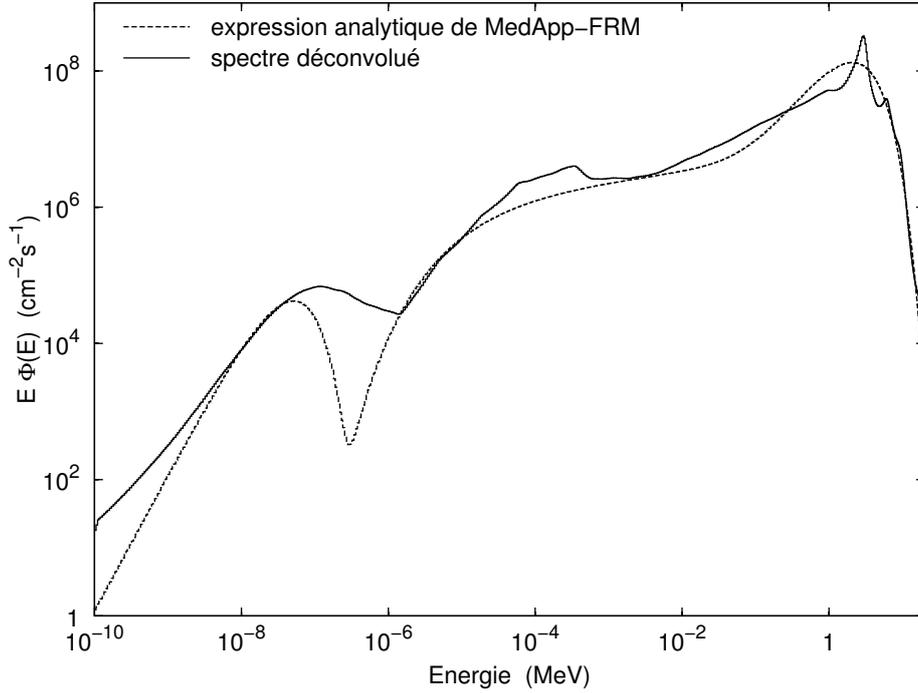


FIGURE IV.4 – Spectre déterminé sur 640 groupes par le code réalisé et distribution donnée par l’expression analytique de l’installation MEDAPP.

temps que la représentation graphique de l’expression analytique du champ neutronique rapide de MEDAPP (Medical Application facility) donnée par [90] :

$$\begin{aligned} \Phi(E) = & 1.24 \times 10^{20} e^{-E/25 \times 10^{-9}} + 5.88 \times 10^6 e^{-4.5 \times 10^{-3}/\sqrt{E}} E^{-0.88} \frac{2}{e^E + 1} \\ & + 1.34 \times 10^8 e^{-E} \sinh \sqrt{2E} \end{aligned}$$

La forme de la distribution énergétique du flux de neutrons, déterminé par la méthode Bayésienne proposée (cf. Fig. IV.4), se rapproche légèrement de la distribution donnée par l’expression analytique du champ neutronique du canal MEDAPP, sauf que la transition entre la région thermique et celle épithermique est moins prononcée pour le spectre déconvolué que pour celui calculé à partir de l’expression analytique. L’énergie moyenne calculée à partir du spectre déconvolué est de 1.92 MeV, qui est la même que celle déterminée à partir de la distribution donnée dans l’article [90], c’est à dire 1.91 MeV.

Les rapports des activités calculées et mesurées A_c/A_m sont reportés sur le tableau (IV.3) pour la distribution énergétique du flux de neutrons déterminée par déconvolution et pour celle de l'expression analytique du champ neutronique du canal MEDAPP. On constate que les activités calculées à partir du spectre déconvolué sont en bon accord avec celles mesurées, et que les rapports de six réactions (n, γ) sont très proches de l'unité, ce qui permet de conclure que le spectre déconvolué est certainement très proche du vrai spectre dans la région des neutrons thermiques et épithermiques.

TABLE IV.3 – Rapports d'activités calculées A_c sur mesurées A_m obtenus par l'expression analytique de l'installation MEDAPP et par le code de déconvolution réalisé.

Réaction	Activité de saturation (1/s)	A_c/A_m	
		Expression analytique	Code réalisé
$^{24}\text{Mg}(n, p)^{24}\text{Na}$	$(4.94 \pm 0.26) \times 10^{-19}$	0.858	1.028 ± 0.055
$^{27}\text{Al}(n, p)^{27}\text{Mg}$	$(1.04 \pm 0.06) \times 10^{-18}$	1.099	1.065 ± 0.060
$^{27}\text{Al}(n, \alpha)^{24}\text{Na}$	$(2.55 \pm 0.14) \times 10^{-19}$	0.774	0.935 ± 0.051
$^{31}\text{P}(n, p)^{31}\text{Si}$	$(9.13 \pm 0.50) \times 10^{-18}$	0.874	1.018 ± 0.056
$^{46}\text{Ti}(n, p)^{46}\text{Sc}$	$(3.27 \pm 0.34) \times 10^{-18}$	0.981	0.917 ± 0.094
$^{47}\text{Ti}(n, p)^{47}\text{Sc}$	$(5.94 \pm 0.37) \times 10^{-18}$	0.849	0.937 ± 0.058
$^{48}\text{Ti}(n, p)^{48}\text{Sc}$	$(8.49 \pm 0.56) \times 10^{-20}$	0.975	1.150 ± 0.076
$^{54}\text{Fe}(n, p)^{54}\text{Mn}$	$(2.53 \pm 0.13) \times 10^{-17}$	0.894	0.974 ± 0.052
$^{56}\text{Fe}(n, p)^{56}\text{Mn}$	$(3.86 \pm 0.20) \times 10^{-19}$	0.784	0.909 ± 0.047
$^{58}\text{Ni}(n, p)^{58}\text{Co}$	$(3.01 \pm 0.15) \times 10^{-17}$	1.005	1.077 ± 0.055
$^{58}\text{Ni}(n, 2n)^{57}\text{Ni}$	$(1.28 \pm 0.08) \times 10^{-21}$	0.662	1.030 ± 0.067
$^{60}\text{Ni}(n, p)^{60}\text{Co}$	$(6.03 \pm 0.42) \times 10^{-19}$	0.890	0.950 ± 0.066
$^{64}\text{Zn}(n, p)^{64}\text{Cu}$	$(1.29 \pm 0.07) \times 10^{-17}$	0.839	0.932 ± 0.054
$^{103}\text{Rh}(n, n')^{103m}\text{Rh}$	$(1.91 \pm 0.32) \times 10^{-16}$	1.053	0.996 ± 0.168
$^{115}\text{In}(n, n')^{115m}\text{In}$	$(5.56 \pm 0.39) \times 10^{-17}$	0.950	1.010 ± 0.072
$^{197}\text{Au}(n, 2n)^{196}\text{Au}$	$(1.11 \pm 0.08) \times 10^{-18}$	0.807	0.968 ± 0.070
$^{58}\text{Fe}(n, \gamma)^{59}\text{Fe}$	$(4.08 \pm 0.51) \times 10^{-18}$	0.562	0.999 ± 0.125
$^{63}\text{Cu}(n, \gamma)^{64}\text{Cu}$	$(1.28 \pm 0.07) \times 10^{-17}$	0.842	1.000 ± 0.057
$^{115}\text{In}(n, \gamma)^{116m}\text{In}$	$(2.04 \pm 0.11) \times 10^{-16}$	0.830	1.001 ± 0.055
$^{186}\text{W}(n, \gamma)^{187}\text{W}$	$(4.04 \pm 0.25) \times 10^{-16}$	0.727	1.000 ± 0.061
$^{197}\text{Au}(n, \gamma)^{198}\text{Au}$	$(4.84 \pm 0.25) \times 10^{-16}$	0.820	0.990 ± 0.052
$^{197}\text{Au}(n, \gamma)^{198}\text{Au} / \text{Cd}$	$(4.57 \pm 0.24) \times 10^{-16}$	0.846	1.009 ± 0.053

IV.5 Conclusion

La méthode de déconvolution bayésienne développée est basée sur un principe informationnel à minimum d'information de Fisher, destinée à résoudre les problèmes inverses rencontrés en spectrométrie par activation neutronique ou de manière similaire en spectrométrie par sphères de Bonner. La procédure de calcul mise au point est indépendante de la solution a priori, lorsque cette dernière n'est pas disponible, les calculs peuvent débuter à partir d'une solution uniforme et aboutir à un spectre neutronique typique de l'installation étudiée.

Le code de calcul développé a été validé par des activités synthétiques, afin de démontrer la capacité de la méthode bayésienne développée à restaurer le spectre original d'un réacteur nucléaire à partir duquel les activités ont été obtenues.

La distribution énergétique du flux de neutrons déconvoluée en utilisant les activités mesurées au niveau de l'installation du réacteur de puissance "Arkansas Nuclear Unit One" sont en bon accord avec la solution a priori, déterminée à l'aide d'un code de transport neutronique et qui est supposée être la meilleure estimation du spectre neutronique de l'installation considérée.

La déconvolution du spectre du champ neutronique rapide, du réacteur de recherche FRM-II, selon la structure de SAND-II étendue sur 640-groupes d'énergie et utilisant un ensemble de 22 activités sans solution a priori, démontre la grande capacité du code de calcul développé à surmonter le problème de manque d'information sur la solution a priori dans un cas sévère de problème fortement sous-déterminé.

Conclusion générale

Dans ce travail de thèse, nous nous sommes intéressés à la caractérisation des champs neutroniques selon les deux volets spatial et spectral. Les techniques de mesures des distributions spatiales des flux de neutrons et les techniques de spectrométrie neutronique se basent souvent sur des mesures indirectes, moyennant des réactions nucléaires induites par les neutrons.

La résolution d'un problème inverse par une approche bayésienne permet non seulement de prendre en compte le caractère incertain des erreurs, par l'attribution d'une loi de probabilité aux mesures, mais également de tenir compte de toute l'information disponible, en attribuant aux inconnues du problème une loi de probabilité *a priori*. La fusion de ces deux sources d'information s'effectue par la règle de Bayes, dont le résultat est la distribution de probabilité *a posteriori*. Cette dernière constitue la solution du problème inverse, puisqu'elle fournit sous forme d'une distribution de probabilité toute l'information disponible sur les inconnues.

Nous avons développé deux méthodes Monte Carlo de déconvolution basées chacune sur une méthode probabiliste d'inférence bayésienne. La première méthode permet de déterminer la distribution spatiale du flux de neutrons la plus probable, caractérisée par une entropie maximale, à partir des distributions de densités de traces sur des détecteurs solides de traces nucléaires. La seconde permet de déterminer le spectre des neutrons à l'aide de mesures effectuées par une spectrométrie par activation neutronique. Le spectre obtenu représente la solution la plus proche de la solution réelle grâce à un estimateur efficace qui est l'information de Fisher.

L'approche Bayésienne suivie dans ce travail et appliquée à la caractérisation des distributions spatiales des champs neutroniques, a été validée en utilisant un exemple de restauration de distribution spatiale tirée de l'imagerie classique. Elle a ensuite été validée dans un cas réel de caractérisation des distributions spatiales du flux de neutrons à la sortie du canal neutronographique du réacteur NUR sur une surface de $10.5 \times 21 \text{ cm}^2$. Les résultats de cette dernière validation sont comparés à ceux obtenus par les techniques classiques de mesure de flux de neutrons par activation de disques d'or.

Dans le second volet de ce travail de thèse, l'approche Bayésienne a été développée pour une application en spectrométrie des neutrons par activation neutronique.

Les mesures effectuées par la technique de spectrométrie par activation neutronique étant reliées au flux de neutrons par une relation de convolution, une multitude de codes de déconvolution ont été développés par différents laboratoires de recherche de part le

monde (SAND-II, FRUIT, MAXED,...). Chacun de ces codes présente des limitations et des inconvénients dont le plus handicapant est la nécessité d'une solution a priori. La procédure de calcul que nous avons élaborée a l'avantage d'être indépendante de la solution a priori. De plus, on montre que la méthode est robuste et efficace lors de la résolution des problèmes fortement sous-déterminés.

En effet, la méthode de déconvolution des spectres neutroniques a été validée par des activités synthétiques, afin de démontrer la capacité de la méthode bayésienne développée à déterminer le spectre original d'un réacteur nucléaire. Elle a ensuite été testée avec des mesures expérimentales du réacteur nucléaire ANO (Arkansas Nuclear Unit One) et comparée au code MAXED, afin de démontrer ses performances. La déconvolution du spectre du champ neutronique rapide du réacteur de recherche FRM-II, a démontré la capacité du code à surmonter le problème de manque d'information sur la solution a priori dans un cas sévère de problème sous-déterminé.

Bibliographie

- [1] A.B. SMITH, P.R. FIELDS et J.H. ROBERTS, “Spontaneous fission neutron spectrum of ^{252}Cf ”, *Phys. Rev.*, vol. 108, no. 2, pp. 411–413, 1957.
- [2] J. BUSSAC et P. REUSS, *Traité de Neutronique*. Paris : Hermann, 1985.
- [3] D.E. CULLEN, “PREPRO2007 : 2007 ENDF/B pre-processing codes”, Rap. Tech. IAEA-NDS-39 Rev. 13, <http://www-nds.iaea.org/ndspub/endf/prepro/>, 2007.
- [4] M. HERMAN et A. TRKOV, “ENDF-6 Formats Manual, data formats and procedures for the evaluated nuclear data file ENDF/B-VI and ENDF/B-VII”, Rap. Tech. BNL-90365, Brookhaven National Laboratory, 2009.
- [5] P. REUSS, *Précis de Neutronique*. France : EDP Sciences, 2003.
- [6] E.L. LEWIS, *Fundamentals of Nuclear Reactor Physics*. USA : Academic Press, 2008.
- [7] W.M. STACEY, *Nuclear Reactor Physics*. John Wiley & Sons INC., 2001.
- [8] B.E. WATT, “Energy spectrum of neutrons from thermal fission of ^{235}U ”, *Phys. Rev.*, vol. 87, pp. 1037–1041, 1952.
- [9] IAEA, “Neutron fluence measurements”, Rap. Tech. 107, International Atomic Energy Agency, Vienna, 1970.
- [10] J. IDIER, *Bayesian Approach to Inverse Problems*. John Wiley & Sons, Inc., 2008.
- [11] J. HADAMARD, *Lectures on Cauchy’s Problem in Linear Partial Differential Equations*. Yale University Press, 1923.
- [12] H.W. ENGL, M. HANKE et A. NEUBAUER, *Regularization of Inverse Problems*. Kluwer, Dordrecht, 1996.
- [13] V. DOSE, “Bayesian inference in physics : case studies”, *Rep. Prog. Phys.*, vol. 66, pp. 1421–1461, 2003.
- [14] G. D’AGOSTINI, “Bayesian inference in processing experimental data : principles and basic applications”, *Rep. Prog. Phys.*, vol. 66, pp. 1383–1419, 2003.

- [15] A. TARANTOLA, *Inverse Problem Theory and Methodes for Model Parameter Estimation*. SIAM, 2005.
- [16] G. D'AGOSTINI, "Bayesian reasoning in high-energy physics : Principles and applications", Rap. Tech. CERN 99-03, 1999.
- [17] D.S. SIVIA, *Data Analysis, A Bayesian Tutorial*. Oxford University Press, 2001.
- [18] G.L. BRETTHORST, *Bayesian Spectrum Analysis and Parameter Estimation*. Lecture Notes in Statistics 48, Springer-Verlag, 1988.
- [19] G. DEMOMENT et J. IDIER, "Approche bayesienne pour la résolution des problèmes inverses en imagerie", in *Problèmes inverses : de l'expérimentation à la modélisation* (M. BONNET, éd.), vol. 22, pp. 59–77, Observatoire français des techniques avancées, Paris, Tec & Doc edition, 1999.
- [20] B.L. PHILLIPS, "A technique for the numerical solution of certain integral equations of the first kind", *J. Ass. Comput. Mach.*, vol. 9, pp. 84–97, 1962.
- [21] S. TWOMEY, "On the numerical solution of fredholm integral equations of the first kind by the inversion of the linear system produced by quadrature", *J. Ass. Comput. Mach.*, vol. 10, pp. 97–101, 1962.
- [22] A. TIKHONOV et V. ARSENINE, *Méthodes de résolution de problèmes mal posés*. Moscou, Russie : Editions MIR, 1976.
- [23] J. BERNARDO et A. SMITH, *Bayesian Theory*. New York, USA : John Wiley & Sons, 1994.
- [24] B. LECOUTRE, "Training students and researchers in bayesian methods for experimental data analysis", *Journal of Data Science*, vol. 4, pp. 207–232, 2006.
- [25] C.E. SHANNON, "A mathematical theory of communication", *Reprinted with corrections from The Bell System Technical Journal*, vol. 27, pp. 379–423, 623–656, 1948.
- [26] C.E. SHANNON et W. WEAVER, *The mathematical theory of communication*. URBANA : The university of Illinois press, 1949.
- [27] N. WIENER, *Cybernetics : or the Control and Communication in the Animal and the Machine*. Paris : Hermann & Cie, 1948.
- [28] E.T. JAYNES, "Information theory and statistical mecanics", *Phys. Rev.*, vol. 106, no. 4, pp. 620–630, 1957.
- [29] E.T. JAYNES, "On the rationale of maximum-entropy method", *Proc. of the IEEE*, vol. 70, no. 9, pp. 939–952, 1982.

- [30] E. JAYNES, “Prior information and ambiguity”, in *Inverse Problems*, vol. 14, SIAM-AMS (American Mathematical Society) Proc, 1984.
- [31] J. SKILLING, “Massive inference and maximum entropy”, in *Maximum Entropy and Bayesian Methods*, (Dordrecht), Kluwer Academic Publishers, 1998.
- [32] S.F. GULL et G.J. DANIELL, “Image reconstruction from incomplete and noisy data”, *Nature*, vol. 272, pp. 686–690, 1978.
- [33] E. JAYNES, “Monkeys kangaroos and n.”, in *Maximum Entropy and Bayesian Methods in Applied Statistics*, (University of Calgary), Fourth Annual Workshop on Bayesian/Maximum Entropy Methods, Cambridge University Press, 1986.
- [34] G. J. DANIELL, “Of maps and monkeys”, in *Maximum Entropy in Action* (B. BUCK et V.A. MACAULAY, éds), pp. 1–17, Oxford Science Publications, 1994.
- [35] R.A. FISHER, “A mathematical examination of the methods of determining the accuracy of an observation by the mean error, and by the mean square error”, *Monthly Notices of the Royal Astronomical Society*, vol. 80, pp. 758–770, 1920.
- [36] R.A. FISHER, “On the mathematical foundations of theoretical statistics”, *Philosophical Transactions of the Royal Society of London A*, vol. 222, pp. 309–368, 1921.
- [37] R.A. FISHER, “Theory of statistical estimation”, *Proceeding of the Cambridge Philosophical Society*, vol. 22, p. 1925, 700-725.
- [38] B.R. FRIEDEN, *Science From Fisher Information : A Unification*. Cambridge, UK : Cambridge University Press, seconde édition, 2004.
- [39] B.R. FRIEDEN, “Fisher information disorder and the equilibrium distributions of physics”, *Phys. Rev. A*, vol. 41, no. 8, pp. 4265–4276, 1990.
- [40] B.R. FRIEDEN et B.H. SOFFER, “Lagrangians of physics and the game of Fisher-information transfer”, *Phys. Rev. E*, vol. 52, pp. 2274–2286, 1995.
- [41] N. METROPOLIS *et al.*, “Equation of state calculations by fast computing machines”, *J. Chem. Phys.*, vol. 21, pp. 1087–1092, 1953.
- [42] S. KIRKPATRICK, C.D. GELATT et M.P. VECCHI, “Optimization by simulated annealing”, *Science*, vol. 220, pp. 671–680, 1983.
- [43] Z. MICHALEWICZ et D. B. FOGEL, *How to Solve It : Modern Heuristics*. Berlin, Heidelberg : Springer-Verlag, 2000.
- [44] M. MATSUMOTO et T. NISHIMURA, “Mersenne Twister : A 623-dimensionally equidistributed uniform pseudo-random number generator”, *ACM Transactions on Modeling and Computer Simulation*, vol. 8, no. 1, pp. 3–30, 1998.

- [45] D.A. YOUNG, “Etching of radiation damage in Lithium Fluoride”, *Nature*, vol. 182, pp. 375–377, 1958.
- [46] E.C.H. SILK et R.S. BARNES, “Examination of fission fragment tracks with an electron microscope”, *Phil. Mag.*, vol. 4, pp. 970–971, 1959.
- [47] P.B. PRICE et R.M. WALKER, “A new track detector for heavy particle studies”, *Phys. Letters*, vol. 3, pp. 113–115, 1962.
- [48] P.B. PRICE et R.M. WALKER, “Electron Microscope Observation of Etched Tracks from Spallation Recoils in Mica”, *Phys. Rev. Lett.*, vol. 8, pp. 217–219, 1962.
- [49] R.L. FLEISCHER, P.B. PRICE et R.M. WALKER, *Nuclear Tracks in Solids : Principles and applications*. University of California Press, 1975.
- [50] R. A. AKBER *et al.*, “Studies of structural changes produced by high doses of gamma rays in some plastic track detectors”, *Nucl. Instr. and Meth.*, vol. 173, pp. 217–221, 1980.
- [51] H. NAKAHARA *et al.*, “Some basic studies on the absolute determination of radon concentration in the air by a cellulose nitrate track detector”, *Nucl. Instr. and Meth.*, vol. 171, pp. 171–179, 1980.
- [52] A. PAPE *et al.*, “Quantitative α -particle detection in a homogeneous medium with LR115”, *Nucl. Instr. and Meth. B*, vol. 143, no. 4, pp. 557–560, 1998.
- [53] M.A. MISDAQ *et al.*, “A new method for evaluating uranium and thorium contents in different natural material samples by calculating the CR-39 and LR-115 type II SSNTD detection efficiencies for emitted α -particles”, *Nucl. Instr. and Meth. B*, vol. 171, pp. 350–359, 2000.
- [54] M.L. TINCKNELL, P.B. PRICE et S. PERLMUTTER, “Observation of anomalously short mean free paths of projectile fragments of 1.85 A-GeV ^{40}Ar in CR-39 etched track detector”, *Phys. Rev. Lett.*, vol. 51, no. 21, pp. 1948–1951, 1983.
- [55] D. SAMPSONIDIS *et al.*, “Fragmentation cross sections of ^{16}O , ^{24}Mg , and ^{32}S projectiles at 3.65 GeV/nucleon”, *Phys. Rev. C*, vol. 51, no. 6, pp. 3304–3308, 1995.
- [56] S.R. HASHEMI-NEZHAD *et al.*, “Determination of energetic neutron spatial distribution using neutron induced nuclear recoil events”, *Nucl. Instru. and Meth. A*, vol. 493, pp. 121–130, 2002.
- [57] L. MAKOVICKA *et al.*, “Detection of thermal neutrons by CR-39 using a boron implanted converter”, *Radiat. Prot. Dosim.*, vol. 23, no. 1-4, pp. 191–194, 1988.

- [58] R. L. FLEISCHER, P. B. PRICE et R. M. WALKER, “The ion explosion spike mechanism for formation of charged particle tracks in solids”, *J. Appl. Phys.*, vol. 36, pp. 3645–3652, 1965.
- [59] B.E. FISCHER et R. SPOHR, “Production and use of nuclear tracks : imprinting structure on solids”, *Reviews of Modern Physics*, vol. 55, no. 4, pp. 907–948, 1983.
- [60] R. L. FLEISCHER, P. B. PRICE et R. T. WOODS, “nuclear-particle-track identification in inorganic solids”, *Phys. Rev.*, vol. 188, no. 2, pp. 563–567, 1969.
- [61] G. SOMOGYI et S.A. SZALAY, “Track diameter kinetics in dielectric track detector”, *Nucl. Instr. Meth.*, vol. 109, no. 2, pp. 211–232, 1973.
- [62] A. SEGHOURE, *Dosimétrie et spectrométrie des neutrons. Recherche des conditions optimales pour le dosage du bore et applications à la boroneurothérapie*. Thèse de Doctorat, Université Louis Pasteur de Strasbourg, 1993.
- [63] A. SEGHOURE, F.Z. SEGHOURE et B. SAICHI, “Neutron distribution in a reactor exit channel by neutron-charged particle converter and CR-39”, *Nucl. Instr. and Meth. A*, vol. 589, pp. 66–71, 2008.
- [64] NUCLEAR ENERGY AGENCY, “A Java-based Nuclear Data Display Program, Janis-3.0”, *OECD/NEA Data Bank, Paris*, 2007.
- [65] S. GEMAN et D. GEMAN, “Stochastic relaxation, gibbs’ distribution and bayesian restoration of images”, *IEEE Trans. PAMI*, vol. 6, pp. 721–741, 1984.
- [66] A. SEGHOURE et F.Z. SEGHOURE, “Déconvolution des distributions spatiales des champs de rayonnements par la méthode du maximum d’entropie”, *Alg. Rev. Nucl. Sci.*, vol. 7, no. 1 & 2, pp. 1–12, 2008.
- [67] F.D. BROOKS et H. KLEIN, “Neutron spectrometry, historical review and present status”, *Nucl. Instr. and Meth. A*, vol. 476, pp. 1–11, 2002.
- [68] A.V. ALEVRA, “Neutron spectrometry”, *Radioprotection*, vol. 34, no. 3, pp. 305–333, 1999.
- [69] H. KLEIN, “Neutron spectrometry in mixed fields :NE213/BC501 a liquid scintillation spectrometers”, *Radiat. Prot. Dosim.*, vol. 107, no. 1-3, pp. 95–109, 2003.
- [70] F.G. PEREY, “Least-squares dosimetry unfolding; the program STAY’SL”, Rap. Tech. ORNL-TM-6062, ENDF-254, Oak Ridge National Laboratory, USA, 1977.
- [71] M. MATZKE, “Unfolding of pulse-height spectra : The HEPRO program system”, Rap. Tech. PTB-N-19, PTB Braunschweig, Germany, 1994.

- [72] R.L. BRAMBLETT, R.I. EWING et T.W. BONNER, “A new type of neutron spectrometer”, *Nucl. Instr. Meth.*, vol. 9, pp. 1–12, 1960.
- [73] J. SANDBERG, “Determination of particle flux spectra with multi-reaction activation detectors”, Rap. Tech. Ph-146, Acta Polytechnica Scandinavica, 1984.
- [74] L.R. GREENWOOD, “Neutron interactions and atomic recoil spectra”, Rap. Tech. PNL-SA-22813, Pacific Northwest Laboratory, Richland, Washington, 1993.
- [75] N. TSOUFANIDIS, *Measurement and Detection of Radiation*. New York : Taylor & Francis, seconde édition, 1995.
- [76] C.R. GREER, J.A. HALBLEIB et J.V. WALKER, “A technique for unfolding neutron spectra from activation detector measurements”, Rap. Tech. SC-RR-67-746, Sandia Lab., 1967.
- [77] W.N. MCELROY *et al.*, “A computer-automated iterative method for neutron flux spectra determination by foil activation”, Rap. Tech. AFWL-TR-67-41, Air Force Weapons Lab., 1967.
- [78] K. O’BRIEN et R. SANNA, “Neutron spectral unfolding using the Monte Carlo method”, *Nucl. Instr. and Meth.*, vol. 185, pp. 277–286, 1981.
- [79] R. SANNA et K. O’BRIEN, “Monte carlo unfolding of neutron spectra”, *Nucl. Instr. and Meth.*, vol. 91, pp. 573–576, 1971.
- [80] R. BEDOGNI *et al.*, “FRUIT : An operational tool for multisphere neutron spectrometry in workplaces”, *Nucl. Instr. and Meth. A*, vol. 580, pp. 1301–1309, 2007.
- [81] M. REGINATTO et P. GOLDHAGEN, “MAXED, a computer code for the deconvolution of multisphere neutron spectrometer data using the maximum entropy method”, Rap. Tech. EML-595, Environmental Measurements Laboratory, New York, 1998.
- [82] M. REGINATTO, P. GOLDHAGEN et S. NEUMANN, “Spectrum unfolding, sensitivity analysis and propagation of uncertainties with the maximum entropy deconvolution code MAXED”, *Nucl. Instr. and Meth. A*, vol. 476, pp. 242–246, 2002.
- [83] R. WILCZEK et S. DRAPATZ, “A high accuracy algorithm for maximum entropy image restoration in the case of small data sets”, *Astron. Astrophys.*, vol. 142, pp. 9–12, 1985.
- [84] A. SEGHOOR et F.Z. SEGHOOR, “Unfolding neutron energy spectra from foil activation detector measurements with the Gold algorithm”, *Nucl. Instr. Meth. A*, vol. 457, pp. 617–626, 2001.

- [85] A. SEGHOOR et F.Z. SEGHOOR, “Neutron energy spectra unfolding from foil activation detector measurements with minuit”, *Nucl. Instr. Meth. A*, vol. 555, pp. 347–355, 2005.
- [86] M. MATZKE et K. WEISE, “Neutron spectrum unfolding by the Monte Carlo method”, *Nucl. Instr. Meth. A*, vol. 234, pp. 324–330, 1985.
- [87] É. M. ZSOLNAY, E. J. SZONDI et H. J. NOLTHENIUS, “The neutron metrology file NMF-90”, Rap. Tech. IAEA-NDS-171, International Atomic Energy Agency, Vienna, 1999.
- [88] IAEA, “International reactor dosimetry file 2002 (IRDF-2002)”, Rap. Tech. 452, International Atomic Energy Agency, Vienna, 2006.
- [89] P. G. LAKY et N. TSOULFANIDIS, “Neutron fluence at the pressure vessel of a pressurized water reactor determined by the MCNP code”, *Nucl. Sci. Eng.*, vol. 121, pp. 433–447, 1995.
- [90] H. BREITKREUTZ *et al.*, “Spectral fluence rates of the fast reactor neutron beam MEDAPP at FRM II”, *Nucl. Instr. Meth. A*, vol. 593, pp. 466–471, 2008.
- [91] F. M. WAGNER *et al.*, “Fission neutron source-MEDAPP”, Rap. Tech. Annuel, Forschungs-Neutronenquelle Heinz Maier-Leibnitz (FRM II), 2007.

Table des figures

I.1	Sections efficaces types : a) de fission, b) de diffusion élastique, c) de diffusion inélastique, d) de capture et e) de transmutation.	11
I.2	Elément de volume contenant des neutrons.	12
I.3	Distribution des énergies des neutrons dans un réacteur nucléaire.	20
I.4	Réacteur cylindrique homogène et nu.	23
I.5	Distribution spatiale du flux de neutrons dans un réacteur cylindrique homogène et nu.	25
II.1	Représentation d'un système de mesure	27
III.1	Modèle d'explosion ionique de formation d'une trace dans un solide inorganique : (a) l'ionisation initiale produite par le passage de la particule, (b) déplacement des ions dans le solide créant des trous et des positions interstitielles libres, (c) déplacement des atomes voisins et formation du cœur de la trace.	49
III.2	Géométrie d'une trace nucléaire (a) Cas d'une incidence normale (b) Cas d'une incidence oblique.	52
III.3	Traces nucléaires sur un détecteur CR-39 vues au microscope électronique pour deux agrandissements différents [2400× et 10000×].	54
III.4	Schéma du réacteur NUR et du dispositif expérimental : a) section longitudinale, b) section transversale.	56
III.5	Restauration de l'image test : (a) Image originale, (b) et (c) Images aléatoirement perturbées, (d) Image restaurée.	67
III.6	Distribution spatiale de la densité des traces sur les deux détecteurs CR-39 (a) et (b).	69
III.7	Distribution spatiale du flux de neutrons du canal neutronographique du réacteur NUR.	70

III.8	Distribution spatiale du flux de neutrons du canal neutronographique du réacteur NUR obtenue par : a) activation neutronique des disques d'or, b) distribution de la figure (III.7) réduite aux mêmes points de mesure que l'activation neutronique.	72
IV.1	activité de saturation	80
IV.2	Spectres de flux de neutrons obtenus avec et sans contrainte d'une distribution semi-empirique du flux neutronique typique d'un réacteur nucléaire.	95
IV.3	Comparaison entre la solution a priori de ANO et les spectres obtenus par MAXED et par le code réalisé, les spectres sont décalés selon les facteurs indiqués.	97
IV.4	Spectre déterminé sur 640 groupes par le code réalisé et distribution donnée par l'expression analytique de l'installation MEDAPP.	100

Liste des tableaux

III.1 Taux de réaction du convertisseur et du CR-39	58
IV.1 Rapport d'activités calculées A_c sur synthétisées A_s , obtenus par déconvolution sans et avec contrainte de régularisation, d'une distribution de neutrons semi-empirique typique d'un réacteur nucléaire.	94
IV.2 Comparaison des activités calculées et mesurées du benchmark ANO obtenus par MAXED et par le code de déconvolution réalisé avec et sans solution a priori.	98
IV.3 Rapports d'activités calculées A_c sur mesurées A_m obtenus par l'expression analytique de l'installation MEDAPP et par le code de déconvolution réalisé.	101

Annexe A

Publication nationale

Article publié dans la revue
Algerian Review of Nuclear Sciences, Vol. 8, N° 1 & 2 (2010) 41-53.

Corrections des cartographies des flux de neutrons obtenues avec les détecteurs solides de traces nucléaires

F.Z. Dehimi ¹, A. Seghour ¹ et S. Abaidia ²

¹ *Centre de Recherche Nucléaire d'Alger, 02 Bd Frantz Fanon, B.P. 399, 16000 Alger, Algeria, Email : fzdehimi@crna.dz*

² *Laboratoire des Matériaux Minéraux et Composites, Université de Boumerdès, Boumerdès, Algeria*

(Received 04 November 2009)

Une méthode de correction des cartographies des flux de neutrons obtenues par les détecteurs solides de traces nucléaires (DSTN) est présentée. Cette méthode combine deux approches. La première approche consiste à réduire les erreurs expérimentales sur la détermination des densités de traces nucléaires induites par les neutrons dans un DSTN et la seconde se base sur la déconvolution des distributions spatiales des flux de neutrons et la répartition des cibles aux neutrons dans un convertisseur neutron particules chargées à partir de la distribution spatiale de la densité des traces nucléaires observées sur un DSTN. La méthode proposée est comparée aux résultats de caractérisation des distributions spatiales des flux neutrons par la méthode d'activation neutronique.

A method of neutron maps correction obtained by the solid state nuclear tracks detector (SSNTD) is presented. This method combines two approaches. The first approach consists in reducing the experimental errors on the determination of the nuclear track densities induced by the neutrons in the SSNTD and the second is based on the deconvolution of spatial distribution of the neutron flux and the distribution of the targets in a neutron charged-particles converter from the distribution of nuclear track densities observed on the SSNTD. The present method is compared with the results of spatial distribution characterization of the neutron flux obtained with neutron activation measurements.

I. INTRODUCTION

Depuis les premières observations des dommages latents produits par les fragments de fission dans les solides [1], et la démonstration que les traces latentes des particules chargées lourdes sont directement observables par microscope électronique [2], la visualisation des traces latentes dues aux passages des particules chargées dans les matériaux diélectriques a trouvé une large application dans différents domaines des sciences expérimentales.

D'un autre côté, la diversité des matériaux et substances capables de conserver intacts les dommages microscopiques sous forme de traces latentes, tels que certains types de verres et de polymères, a contribué à rapprocher des disciplines de recherche très éloignées les une

des autres. Aussi, observe-t-on le même intérêt à étudier le mécanisme de formation de traces latentes dans les solides qui est suscité en physique nucléaire des ions lourds, dans la datation par fragments de fission en géologie et dans les études des cycles thermiques en géochimie [3,4,5].

Basé sur la visualisation des traces, les détecteurs solides de traces nucléaires (DSTN) ont trouvé des applications directes en cartographie des éléments fissiles et des éléments naturels émetteurs α des échantillons géologiques ainsi que la cartographie des répartition de certains composés dans les milieux biologiques [6,7,8]. Ces applications profitent du fait que la distribution des traces latentes constitue une localisation très précise des sites émetteurs de particules chargées qui ont induit les traces latentes.

Les propriétés de détection des particules chargées à l'aide des traces latentes dans les matériaux diélectriques ont été utilisées de manière avantageuse à la détection des neutrons par l'intermédiaire d'un convertisseur dans lequel sont induites des réactions nucléaires dont les produits sont enregistrés dans le DSTN. Ce type et mode de détection a permis d'établir les distributions spatiales des flux de neutrons sur des dimensions appréciables ($10.5 \times 21 \text{ cm}^2$) grâce à la disponibilité des DSTN sous forme de feuille à dimensions variables [9,10].

La détermination des distributions spatiales des flux de neutrons à l'aide des détecteurs solides de traces nucléaires dépend ainsi de la nature du convertisseur neutron-particules chargées, de la réponse du DSTN aux particules chargées produites, des conditions d'observation et de la répartition des densités de traces latentes.

On se propose dans ce travail de comparer la contribution de chaque paramètre dans la relation reliant la distribution des traces latentes à la distribution spatiale d'un flux de neutrons.

II. DISPOSITIF EXPERIMENTAL ET METHODOLOGIE

Le dispositif expérimental de détection des neutrons est composé d'un matériau riche en bore commercialisé sous le nom BN1, Bore Naturel Type 1, jouant le rôle du convertisseur neutron-particules chargées par le biais de la réaction nucléaire $^{10}\text{B} (n, \alpha) ^7\text{Li}$ et d'un détecteur solide de traces nucléaires CR-39, pour Caronate Rubber ou parfois Columbia Resine N° 39. Une feuille de $12 \times 22 \text{ cm}^2$ de BN1 a été mise en contact avec une plaque de $10.5 \times 21 \text{ cm}^2$ de CR-39 et l'ensemble constitue un dispositif de détection des neutrons tel que représenté schématiquement en Fig. 1.

Le dispositif BN1-CR39 a été exposé aux neutrons à la sortie du canal neutronographique du réacteur nucléaire de recherche NUR pendant 5 min à la puissance nominale de 1 MW. Après irradiation aux neutrons, le DSTN CR-39 a été séparé du convertisseur BN1 et mis dans une solution chimique de NaOH diluée à 20% maintenue à une température de 60°C pendant 2 heures. Cette étape, appelée développement chimique, a pour but d'agrandir les traces latentes, induites par les particules chargées issues des réactions nucléaires dans le BN1, afin de pouvoir les observer au microscope. En effet, les traces latentes brutes sont des zones d'endommagement causées par le passage des particules chargées dans le milieu constituant le DSTN.

Fig. 1 : Dispositif de détection des neutrons installé à la sortie du canal neutronographique du réacteur NUR.

Fig. 1: Neutron detection apparatus installed at the exit of the neutronography channel of nuclear reactor NUR.

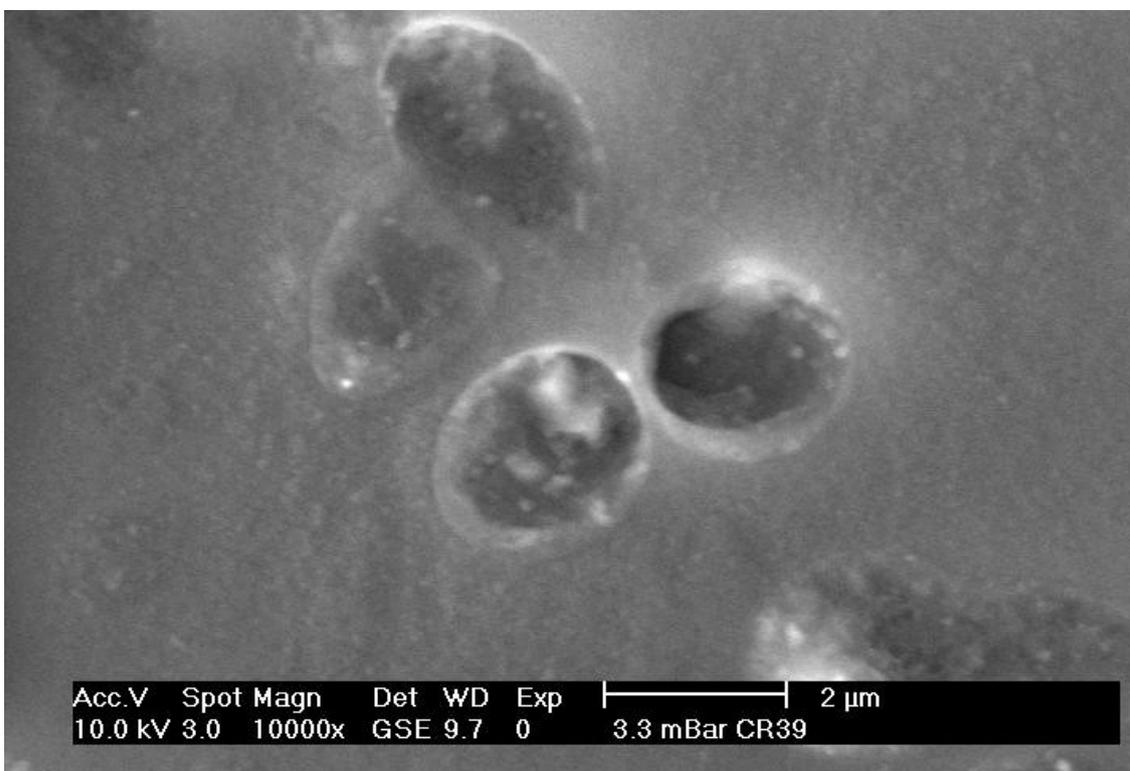
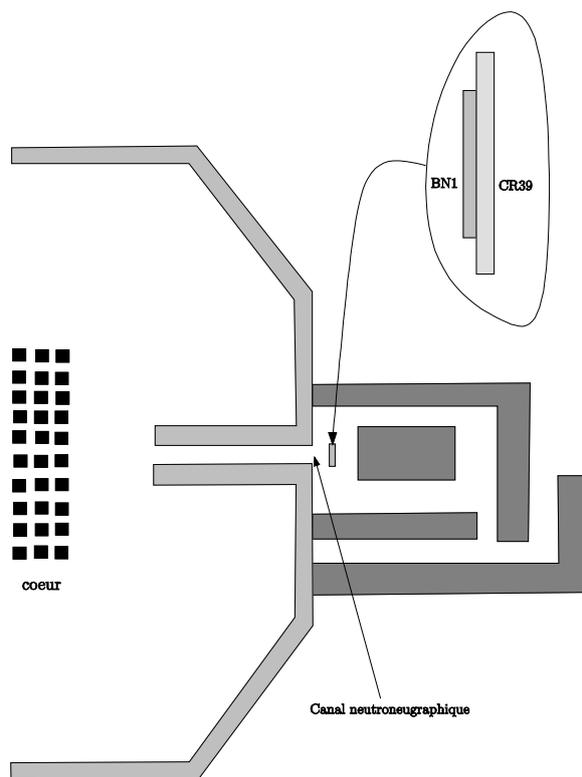


Fig. 2 : Traces révélées des particules alpha et lithium dans le DSTN CR-39.

Fig. 2: Alpha and lithium particles tracks revealed in SSNTD CR-39.

Ces zones se caractérisent par une densité élevée de rupture des liaisons moléculaires le long d'un cylindre ayant pour axe la trajectoire de la particule incidente et un rayon maximal de l'ordre de 10 Å. L'attaque chimique par l'action du NaOH, qui s'effectue sur l'ensemble du DSTN, est d'autant plus active au niveau de ces zones endommagées. Cette attaque est accentuée par l'effet de la température de la solution. A l'issu de l'opération de développement chimique, la trace latente prend généralement une forme conique qui est le résultat de l'action concurrentielle de l'attaque chimique le long de la trace, qui n'est autre que la trajectoire de la particule chargée dans le DSTN, et l'attaque chimique de la surface du DSTN. Au microscope, ces traces auront un aspect elliptique ou circulaire, selon l'angle d'incidence des particules sur la surface du DSTN, dû à la projection des formes coniques sur la surface d'observation. Un exemple de traces produites par la réaction nucléaire $^{10}\text{B}(n,\alpha)^7\text{Li}$ est donné en Fig. 2.

La densité de traces révélées et observées dans le DSTN CR39 est donnée par la relation :

$$N_t(\vec{x}) = \sum_{ij} \int_0^{\infty} dE \int_0^{4\pi} d\Omega \varepsilon_{ij}(E,\Omega) N_i(\vec{x}) \frac{d\sigma_{ij}(E,\Omega)}{d\Omega} \Phi(E,\vec{x}) \quad (1)$$

où :

- $N_i(\vec{x})$ est le nombre d'atomes de l'élément i dans le convertisseur BN1 et produisant des particules chargées issues des réactions nucléaires avec les neutrons;
- $\frac{d\sigma_{ij}(E,\Omega)}{d\Omega}$ est la section efficace différentielle de la réaction nucléaire de type j induite avec l'élément i ;
- $\varepsilon_{ij}(E,\Omega)$ est l'efficacité de détection d'une particule chargée issue de la réaction nucléaire de type j dans l'élément i , entrant dans le DSTN suivant un angle solide Ω ;
- $\Phi(E,\vec{x})$ est le flux de neutrons ayant une énergie E .

Cette relation prend en compte la contribution de tous les éléments présents dans le convertisseur BN1. Bien que ce matériau soit principalement composé de bore naturel, la présence d'autres éléments, entrant dans la composition du liant ou comme impureté, peuvent contribuer à la production des particules chargées sous irradiation aux neutrons. Ces contributions peuvent être estimées à l'aide du taux de réactions nucléaires induites par les

neutrons, donné par $\int N_i \sigma_i(E) \Phi(E) dE$, qui prend en compte la concentration de chaque

éléments dans le BN1 et la section efficace de réaction neutronique. Dans le Tableau 1, les taux de réactions ont été reportés en utilisant les concentrations déterminées par la technique de spectrométrie à fluorescence X (XRF) pour une distribution énergétique de neutrons thermiques et intermédiaires pour représenter la partie thermalisée et en cours de ralentissement qui prédominent au niveau du canal neutronographique du réacteur NUR.

Elément	Nucléide (abondance %)	Concentration pondérale (%)	Réaction prédominante	Taux de réaction (cm ³ s ⁻¹)
B	¹⁰ B (19.9)	86.44	¹⁰ B (n, α) ⁷ Li	2.37 × 10 ⁷
			¹⁰ B (n, p) ¹⁰ Be	4.28
O	¹⁷ O (0.038)	8.37	¹⁷ O (n, α) ¹⁴ C	1.61 × 10 ⁻¹
Si	²⁹ Si (4.68)	3.83	²⁹ Si (n, α) ²⁶ Mg	2.15 × 10 ⁻⁶

Tableau 1 : Concentrations et taux de réaction des éléments composant le convertisseur boré BN1.

Table 1: Concentrations and reaction rates of the boron converter BN1 components.

Il ressort du Tableau 1, que les contributions des éléments du liant chimique et des impuretés sont négligeables devant la contribution de l'élément bore dans la production des particules chargées dans le convertisseur BN1.

Par ailleurs, en tout point du réacteur nucléaire la distribution du flux de neutrons présente une dépendance énergétique qui reflète l'historique des interactions des neutrons entre l'endroit d'émission, en l'occurrence le cœur du réacteur, et l'endroit de la détection. Lorsque l'on s'éloigne du cœur du réacteur nucléaire, et dans des configurations où les milieux traversés sont homogènes, les neutrons sont de plus en plus ralentis et atteignent des distributions énergétiques thermiques. Ainsi, loin du cœur du réacteur nucléaire, la distribution des flux de neutrons s'exprime par le produit de sa dépendance énergétique et sa dépendance spatiale, soit $\Phi(E, \vec{x}) = \varphi(E)\Phi(\vec{x})$.

L'efficacité de détection des particules chargées dans les DSTN dépend de la nature de la particule, de son énergie, de son angle d'incidence sur la surface du DSTN ainsi que des paramètres de révélation chimique des traces qui sont la température et la concentration. On observe ainsi, un angle critique d'incidence au delà duquel les particules chargées ne peuvent être révélées dans le DSTN sous l'effet concurrentielle des attaques chimiques le long de la trajectoire et l'attaque chimique globale [11]. La densité de traces révélées peut être exprimée par la relation [12]:

$$N_t(\vec{x}) = N_B(\vec{x})\Phi(\vec{x}) \int_0^{\infty} dE \int_0^{4\pi} d\Omega \varepsilon(E, \Omega) \frac{d\sigma_B}{d\Omega} \varphi(E)$$

On peut déduire de cette expression que la distribution spatiale de la densité de traces est proportionnelle au produit de la distribution spatiales des atomes de bore $N_B(\vec{x})$ dans le convertisseur, et de la distribution spatiale du flux de neutrons $\Phi(\vec{x})$ à la sortie du canal neutronographique, soit $N_t(\vec{x}) \propto N_B(\vec{x})\Phi(\vec{x})$.

D'un autre coté, la densité de traces révélées est déterminée expérimentalement par le comptage du nombre de traces dans une surface d'observation donnée. Cette opération peut être réalisée de manière manuelle par un dénombrement visuelle des traces à l'aide d'un microscope ou en utilisant un outil informatique de reconnaissance des formes et de dénombrement par traitement d'image. Dans les deux cas, le résultat du dénombrement des traces est inévitablement accompagné d'une erreur expérimentale due principalement à la confusion possible entre certains défauts de structure dans le DSTN et les traces nucléaires. La densité de traces révélées est rigoureusement représentée par une relation générale de la forme:

$$N_t(\bar{x}) \propto N_B(\bar{x})\Phi(\bar{x}) + \Delta(N_t(\bar{x})) \quad (2)$$

où $\Delta(N_t(\bar{x}))$ représente l'erreur expérimentale sur la détermination de la densité de traces nucléaires.

Rappelons que le but recherché par ses mesures est la détermination de la distribution spatiale du flux de neutrons à partir de la distribution des densités de traces nucléaires. L'identité entre les deux distributions n'est de toute évidence réalisée que pour des dépôts uniformes du bore dans le convertisseur neutrons particules chargées. Malheureusement, l'uniformité du dépôt ne peut être garantie expérimentalement.

Il est toutefois possible d'extraire la distribution spatiale des flux de neutrons à partir de celle des densités de traces nucléaires en combinant deux approches, l'une expérimentale et l'autre théorique. L'approche théorique consiste à considérer que la répartition des atomes de bore dans le convertisseur évolue dans un intervalle fini et connu. La deuxième approche, quant à elle, consiste à réaliser une deuxième expérience dans les mêmes conditions expérimentales que la première afin de disposer de données supplémentaires en vue de réduire la contribution des erreurs expérimentales.

Dans ce travail, nous optons pour une approche théorique basée sur une méthode Bayésienne de type MAP, Maximum A Posteriori.

Le résultat final du processus d'apprentissage impliqué dans le théorème de Bayes est la distribution de probabilité *a posteriori*, laquelle fournit, sous forme d'une distribution de probabilité, toute l'information disponible sur l'objet à déterminer $\Phi(\bar{x})$.

Du fait que nous nous basons sur deux mesures indépendantes des densités de traces, N_{t1} et N_{t2} , le théorème de Bayes permet de faire une analyse séquentielle de ces données dont la distribution de probabilité est donnée par l'expression suivante [13,14]:

$$P(\Phi | N_{t2}, N_{t1}) \propto P(N_{t2} | \Phi) P(N_{t1} | \Phi) P(\Phi, N_B)$$

où $P(N_{t1}|\Phi)$ et $P(N_{t2}|\Phi)$ représentent les maximum de vraisemblance des deux distributions de densités de traces N_{t1} et N_{t2} ; $P(\Phi, N_B)$ n'est autre que l'information *a priori* sur les distributions $\Phi(\vec{x})$ et $N_B(\vec{x})$, laquelle a été construite sur un principe informationnel à "maximum d'entropie".

La solution du problème s'obtient en maximisant la probabilité à posteriori, ce qui revient à minimiser la fonction objective [15]:

$$F = \frac{1}{2}(\chi_1^2 + \chi_2^2) - \lambda H \quad (3)$$

où χ_1^2 et χ_2^2 sont les grandeurs classiques d'estimation des déviations des mesures, données par:

$$\chi_{1,2}^2 = \int \frac{(N_{t1,2}^{exp}(\vec{x}) - N_t^{th}(\vec{x}))^2}{\sigma_{1,2}^2(\vec{x})} d\vec{x}$$

H est l'entropie totale donnée par :

$$H = \alpha S_\Phi + (1 - \alpha) S_N$$

α représente un paramètre associé au degré ou au niveau de notre connaissance sur chacune des distributions, $0 < \alpha < 1$. S_Φ et S_N sont les entropies relatives associées respectivement à $\Phi(\vec{x})$ et $N_B(\vec{x})$, données par:

$$S_\Phi = - \int \Phi(\vec{x}) \log\left(\frac{\Phi(\vec{x})}{\Phi_0(\vec{x})}\right) d\vec{x}, \quad S_N = - \int N(\vec{x}) \log\left(\frac{N(\vec{x})}{N_0(\vec{x})}\right) d\vec{x}$$

Φ_0 et N_0 sont ce que l'on connaît sur les distributions du flux neutronique et la répartition des atomes de bore dans le convertisseur.

λ est un paramètre de régulation qui représente la pondération que l'on accorde à l'entropie totale.

III. RESULTATS ET DISCUSSION

Deux expériences utilisant deux détecteurs DSTN de type CR-39 et le même convertisseur neutron particules chargées de type BN1, ont été réalisées à la sortie du canal neutronographique du réacteur nucléaire NUR, dans les mêmes conditions de puissance de fonctionnement et de durée d'exposition aux neutrons. Les développements chimiques ainsi que le comptage des traces ont été réalisés dans les mêmes conditions.

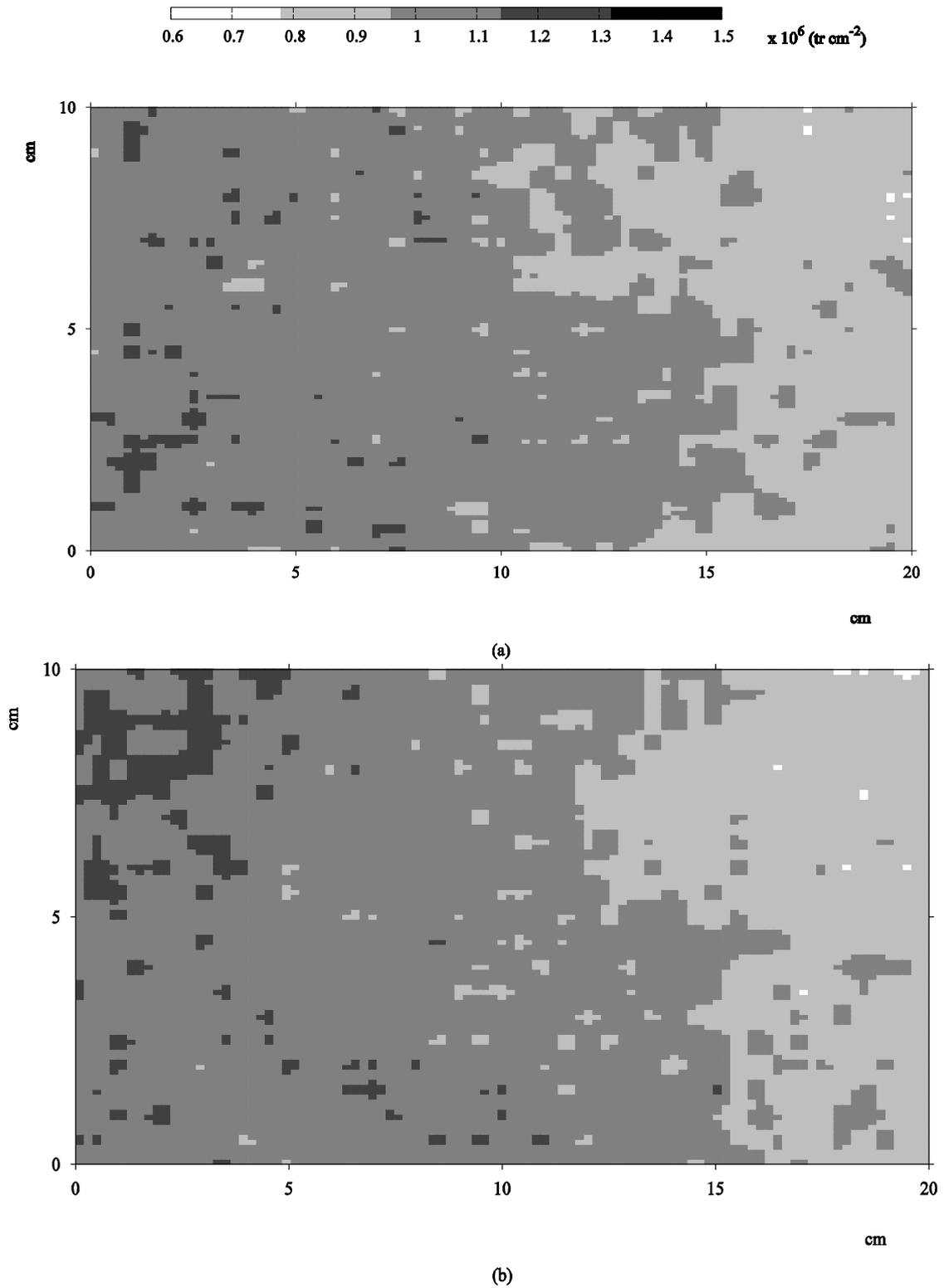


Fig. 3: Distributions de densités des traces nucléaires dans deux détecteurs solides de traces CR-39

Fig. 3: Distributions of nuclear tracks densities of the in two nuclear solid state detectors CR-39

Chaque DSTN a fourni un ensemble de 861 densités de traces réparties sur toute la surface du DSTN correspondant à des zones de comptage de surface unitaires $67 \times 10^{-6} \text{ cm}^2$ espacées de 5 mm. Les distributions spatiales des densités de traces révélées sur les deux DSTN sont représentées en Fig. 3 (a et b).

On observe que l'allure générale de ces deux distributions ne sont pas totalement identiques bien qu'elles montrent une tendance du flux de neutrons aux valeurs élevées dans la zone gauche du canal neutronographique (vue du cœur du réacteur). La détermination de la distribution du flux de neutrons à partir de ces deux distributions se base sur les informations sur le dépôt du bore dans le BN1. Ce composé est d'une densité de l'ordre de 1.42 g/cm^3 avec une estimation de la variation de l'uniformité du dépôt de 20%. Ces informations fixent le domaine de variation de la répartition du bore dans le convertisseur. Évidemment, aucune autre information n'est disponible pour la distribution spatiale du flux.

La procédure de minimisation de la fonction objective F donnée en (3), tient compte de ces estimations suivant un algorithme de recherche de la solution par sélection aléatoire des solutions aussi bien pour le flux de neutrons que pour la répartition du bore dans le convertisseur. Le résultat de cette procédure est donné en Fig. 4. On constate que la distribution du flux de neutrons présente une légère tendance d'accroissement de droite vers la gauche du canal, avec une zone de faibles valeurs à droite et en haut du canal.

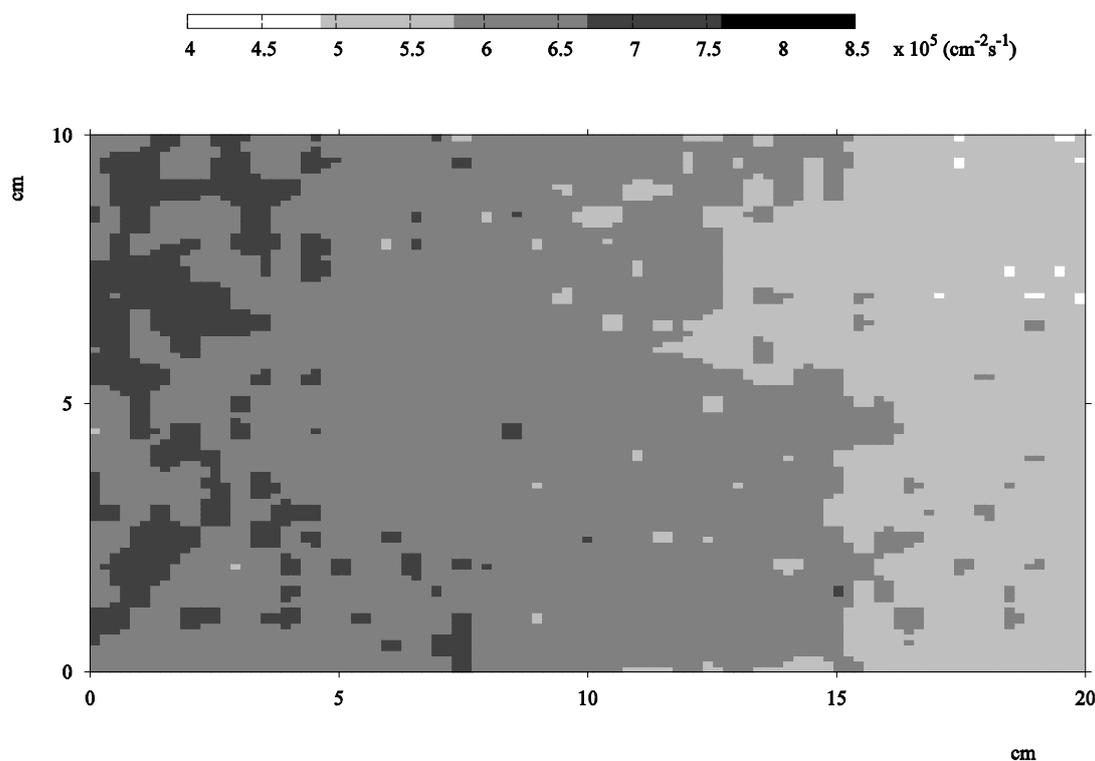


Fig. 4: Distribution spatiale du flux de neutrons du canal neutronographique du réacteur NUR déconvoluée à partir des densités de traces nucléaires.

Fig. 4: Neutrons flux spatial distribution of the neutronography channel at the nuclear reactor engine NUR unfolded from the nuclear track densities distributions.

Afin de vérifier la validité de cette méthode de détermination des distributions spatiales des flux de neutrons, nous avons procédé à l'établissement de la cartographie du flux de neutrons avec une méthode différente et indépendante. Nous avons opté pour la technique de mesures des flux par activation neutronique qui a la particularité d'avoir une précision sur les mesures inférieures à 3%. 35 disques d'or de 5 mm de diamètre et 0.5mm d'épaisseur ont été disposés sur une plaque en plexiglas suivant une géométrie rectangulaire. Chaque disque est distant de son voisin de 2.5 cm. L'ensemble des disques a été exposé aux neutrons au même endroit que pour les deux dispositifs convertisseur BN1 et CR-39 décrits précédemment. Lors de l'exposition aux neutrons les disques d'or s'activent suite aux réactions nucléaires de capture neutronique de l'or suivant la réaction $^{197}\text{Au} (n, \gamma) ^{198}\text{Au}$. L'élément ^{198}Au décroît par émission β^- vers le mercure ^{198}Hg dont la signature γ est utilisée pour la détermination du flux de neutrons par spectrométrie γ à l'aide de la relation:

$$A_{\gamma}^i = N_0^i (1 - \exp(-\lambda t_{irr})) \int_0^{\infty} dE \int_S d\bar{x} \sigma(E) \phi(E) \Phi(\bar{x}) = N_0^i (1 - \exp(-\lambda t_{irr})) \bar{\sigma} \Phi^i$$

avec:

$$\bar{\sigma} = \int_0^{\infty} \phi(E) \sigma(E) dE, \quad \Phi^i = \int_S \Phi(\bar{x}) d\bar{x}$$

où S est la surface du disque d'or.

Le flux Φ^i est donné par:

$$\Phi^i = \frac{A_{\gamma}^i}{N_0^i (1 - \exp(-\lambda t_{irr})) \bar{\sigma}} \quad (4)$$

où

- A_{γ}^i : activité induite dans le disque d'or (i) (s^{-1}) ;
- $\bar{\sigma}$: section efficace moyenne d'absorption (cm^2) ;
- Φ^i : densité moyenne du flux de neutrons en un point donné ($\text{cm}^{-2} s^{-1}$);
- N_0^i : nombre d'atomes de ^{197}Au ;
- λ : constante de décroissance radioactive de ^{198}Au (s^{-1}) ;
- t_{irr} : temps d'irradiation (s).

L'activité de chaque disque d'or est ainsi proportionnelle à la densité moyenne de flux de neutrons sur la surface du disque. La précision de cette technique de mesure du flux est évaluée à moins de 3%.

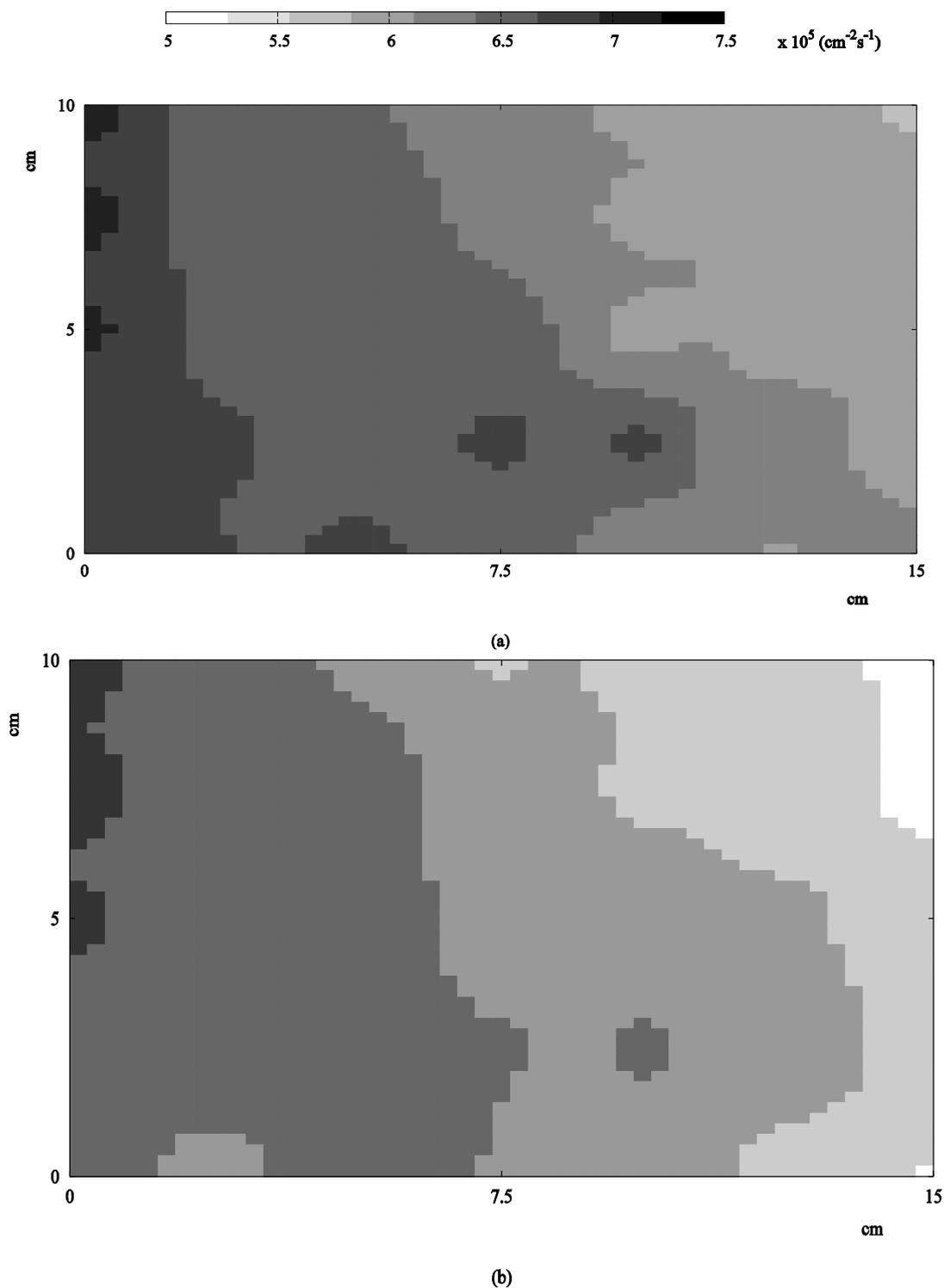


Fig. 5 : Distribution spatiale du flux de neutrons du canal neutroneugraphique du réacteur NUR obtenue par: a) activation neutronique des disques d'or, b) distribution de la figure 4 réduite aux mêmes points de mesure que l'activation neutronique.

Fig. 5: Neutrons flux spatial distribution of the neutronography channel at the nuclear reactor engine NUR obtained by: a) neutron activation of gold detectors, b) figure 4 distribution reduced to the same measurement points as for neutron activation.

Sur la Figure 5-a, la distribution du flux de neutrons, obtenue par activation neutronique des disques, est représentée. On observe une similitude entre cette distribution est celle obtenue par la déconvolution des distributions des densités de traces nucléaires dans le DSTN CR-39 telle que représentée en Fig. 4, ou en Fig. 5-b qui reprend la distribution des densités de traces de la Figure 4 rapportée aux même points de mesure que l'activation neutronique. Les zones aux flux élevés observées sont dans les deux cas localisées dans la région gauche du canal. La non homogénéité du flux peut avoir comme origine la configuration géométrique du site d'exposition aux neutrons à la sortie du canal. En effet, à l'extérieur du canal est disposé un blindage dont le but est d'éviter la présence des neutrons dans le hall du réacteur nucléaire. La configuration géométrique de ce blindage n'est pas symétrique par rapport à l'axe du canal. Ainsi, les neutrons qui diffusent vers la droite du canal ont plus de chance d'être rediffusés vers le site d'exposition (Fig. 1), ce qui a pour conséquence d'augmenter le flux de neutrons à gauche du canal.

IV. CONCLUSION

Dans ce travail, une méthode de détermination des distributions spatiales des flux de neutrons est proposée en utilisant un convertisseur neutrons particules chargées et un détecteur solide de traces nucléaires. La puissance de cette méthode réside dans la procédure d'analyse des données, en l'occurrence la densité de traces nucléaires, qui tend à minimiser les erreurs de comptage des traces dans des situations réelles d'imprécision sur la répartition du dépôt du convertisseur. La densité des traces des particules chargées déterminées dans le DSTN peut être évaluée en tout élément de surface du DSTN; ce qui permet d'établir des distributions spatiales de flux de neutrons plus détaillées.

Références

- [1] D.A. Young, Etching of radiation damage in Lithium Fluoride, *Nature* **182** (1958) 375
- [2] E.C.H. Silk and R.S. Barnes, Examination of fission fragments tracks with an electron microscope, *Phil. Mag.* **4** (1959) 970
- [3] P. B. Price, Science and technology with nuclear tracks in solids, *Rad. Meas.* **40** (2005) 146
- [4] D. Sampsonidis, E. Papanastassiou, M. Zamani, M. Debeauvais, J.C. Adloff, B.A. Kulakov, M.I. Krivopustov and V.S. Butsev, Fragmentation cross sections of ^{16}O , ^{24}Mg and ^{32}S projectiles at 3.65 GeV/nucleon, *Phys. Rev. C* **51** (1995) 3304
- [5] G. Somogyi and M. Nagy, Remarks on fission-track dating in dielectric solids, *Rad. Effects* **16** (1972) 223
- [6] M.A. da Nóbrega, J.M. Sá, F.H.R. Bezerra, J.C. Hadler Neto, P.J. Iunes, S. Guedes, C.A. Tello Saenz, P.C. Hackspacher and F.P. Lima-Filho, The use of apatite fission track thermochronology to constrain fault movements and sedimentary basin evolution in northeastern Brazil, *Rad. Meas.* **39** (2005) 627
- [7] M. A. Misdaq, H. Khajmi, F. Aitnouh, S. Berrazzouk and W. Bourzik, A new method for evaluating Uranium and Thorium in different natural material samples by calculating the CR-39 and LR-115 type II SSNTD detection efficiencies for emitted α -particles, *Nucl. Instr. and Meth. B* **171** (2000) 350

- [8] K.J. Morris and A.L. Batchelor, The location of boron-containing dust in the lung, utilising neutron-induced autoradiography techniques with a CR-39 solid state track detector, *Phys. Med. Biol.* **32** (1987) 1501
- [9] A. Seghour, S. Djeflal, J.C. Sens and A. Stampfler, Neutron flux imaging with nuclear track detectors, *Radioprotection* **30** (1995) 509
- [10] A. Seghour, F.Z. Seghour, B. Saichi, Caractérisation des Distributions Spatiales des Flux de Neutrons à l'aide des Détecteurs Solides de Traces Nucléaires, *Sciences & Technologie* **24** (2006) 46
- [11] R.L. Fleischer, P.B. Price and R.M. Walker, *Nuclear Tracks in Solids*, (University of California Press, Berkeley, 1975)
- [12] A. Seghour, F.Z. Seghour, B. Saichi, Neutron distribution in a reactor exit channel by neutron-charged particle converter and CR-39, *Nucl. Instr. and Meth. A* **589** (2008) 66
- [13] D.S. Sivia, *Data Analysis, A Bayesian Tutorial*, (Oxford Science publications, 2001)
- [14] G. D'Agostini, A multidimensional Unfolding Method Based on Bayes' Theorem, *University La Sapienza Rome, DESY 94-099* 1994
- [15] A. Seghour et F.Z. Seghour, Déconvolution des distributions spatiales des champs de rayonnements par la méthode du maximum d'entropie. *Alg. Rev. Nucl. Sci.* **7** (2008) 1-12

Annexe B

Publication principale

Article publié dans la revue
IEEE Transactions on Nuclear Science, Vol. 57, N° 2 (2010) 768-774.

Unfolding of Neutron Energy Spectra With Fisher Regularisation

Fatma Zohra Dehimi, Abdeslam Seghour, and Saddik El Hak Abaidia

Abstract—A Monte Carlo unfolding method has been developed for neutron spectrometry with foil activation measurements. It is based on minimising least squares differences between measured and calculated activities under a Fisher regularisation constraint. The performance of the unfolding procedure is first illustrated by a set of 20 foil detectors to simulate reaction rates calculated for a typical neutron reactor energy spectrum. A demonstration of the method is next made using measured reaction rates of the Arkansas Nuclear One power plant benchmark spectrum of the Neutron Metrology File (NMF-90). Results of the method are compared with those obtained by the MAXimum Entropy Deconvolution (MAXED) code using the same input data and are found to be in good agreement with the measured activities. Our procedure has an advantage in unfolding the neutron energy distribution when an a priori solution for an underdetermined unfolding problem is lacking. This is illustrated by unfolding the fast neutron beam spectrum of the MEDAPP facility at the nuclear reactor FRM-II in the SAND-II expanded 640-energy group structure, using a set of 22 experimental activation rates without a guess solution.

Index Terms—Fisher information, neutron activation spectrometry, neutron reactor spectra, unfolding.

I. INTRODUCTION

CHARACTERISATION of a neutron energy distribution is best done by combining high quality measured data, a well established neutron response function and suitable unfolding procedures [1], [2]. The measured data may be a pulse height spectrum or count rates related to the neutron energy spectrum Φ by an integral as follows:

$$N(E) = \int R(E, E')\Phi(E')dE' \quad (1)$$

where $N(E)$ represents pulse height or reaction rate, E' is the neutron energy and $R(E, E')$ the response function of the spectrometer.

The determination of $\Phi(E)$ by solving (1), which is a Fredholm-integral equation of the first kind, under the condition that $N(E)$ and $R(E, E')$ are known is not trivial and is equivalent

to the unfolding problem widely encountered in different fields of physics.

Several methods have been developed to solve the unfolding problem in neutron spectrometry [3]. A number of them adopt least-squares or iterative methods, where most often some a priori knowledge of the spectrum is implemented to obtain a solution with an acceptable physical meaning. The a priori knowledge is generally related to the shape, smoothness and non-negativity of the spectrum [4]–[7].

A semiempirical formulation of the neutron energy distribution is an alternative to solving the unfolding problem in specific cases. Such method is particularly efficient when the expression for the neutron spectrum is sustained by a phenomenological interpretation of the neutron emission and the interactions neutrons undergo with materials along their trajectories. The solution $\Phi(E)$ is expressed as a linear superposition $\sum_i P_i \phi_i(E)$ of basic functions $\phi_i(E)$ and the unfolding problem is reduced to fitting the parameters P_i according to observed data via (1). This unfolding procedure has been successfully used in high energy neutron spectrometry with a semiempirical evaporation expression for the neutron energy distribution [8], near-core nuclear reactor neutron spectrometry [9] and workplace neutron spectrometry for radiation protection purposes [10]. The parameterisation of the neutron energy distribution has been extended to a multiparametric adjustment of the neutron energy distribution [11]. Here the neutron spectrum was fully defined by a set of parameters which are the neutron flux values in a group representation.

The so-called Monte Carlo unfolding method, also known as random unfolding, has been extensively developed to derive either the distribution by random sampling of possible solutions of (1) [12]–[14] or by means of the maximum entropy principle to derive the a priori distribution [15]. Alternatively, the Bayes formalism has been used to combine the a priori information on the spectrum and experimental measurements in the Monte Carlo unfolding process [16], [17].

The most powerful method for solving a severely underdetermined unfolding problem, where the available data are much lower than the number of neutron energy groups, requires an a priori solution adjusted to best reproduce the observed data. Since the quality of the adjusted solution is influenced by the accuracy of the input solution, a well validated neutron transport code in addition to a detailed modelling of the geometry and materials of the experimental configuration should generate an unfolded solution that lies in the close vicinity of the true solution [11], [18]–[21]. However, it could happen that an efficient neutron transport code that helps to build the guess solution is not available. The unfolding of the neutron energy distribution

Manuscript received October 07, 2009; revised January 04, 2010. Current version published April 14, 2010.

F. Z. Dehimi and A. Seghour are with Centre de Recherche Nucléaire d'Alger, 16000 Algiers, Algeria (e-mail: fzdehimi@crna.dz; seghour@crna.dz).

S. E. H. Abaidia is with Laboratoire des Matériaux Minéraux and Composites, Université de Boumerdès, 35000 Boumerdès, Algeria (e-mail: abaidia2@yahoo.fr).

Digital Object Identifier 10.1109/TNS.2010.2041791

may then suffer from a lack of information on the a priori solution.

In this work, an unfolding procedure is proposed which does not use any a priori solution. It is based on minimising least squares differences between the observed and the folded data subject to the Fisher information functional as an additional regularisation constraint.

II. THE UNFOLDING PROCEDURE

Bayesian probability theory provides a self-consistent mathematical tool to exploit information from experimental data and additional constraints that may be imposed on the solution [22], [23]. Using Bayes' theorem, the probability that a neutron flux distribution Φ is the solution of the unfolding problem is conditioned by the observed set of data $\mathcal{N} = \{N_1, N_2 \dots N_m\}$ and subject to the constraint $\mathcal{C}(\Phi)$ given by:

$$\mathcal{P}(\Phi|\mathcal{N}, \mathcal{C}) \propto \exp \left[-\frac{1}{2} \sum_i^m \left(\frac{N_i - \int R_i(E)\Phi(E)dE}{\Delta N_i} \right)^2 - \lambda \mathcal{C}(\Phi) \right]$$

where λ is the relative weight parameter of the constraint \mathcal{C} .

A physically acceptable solution is the neutron flux distribution which maximises the conditional probability $\mathcal{P}(\Phi|\mathcal{N}, \mathcal{C})$, or equivalently, which minimises the function $F(\Phi)$ given by:

$$F(\Phi) = \frac{1}{2} \sum_i^m \left(\frac{N_i - \int R_i(E)\Phi(E)dE}{\Delta N_i} \right)^2 + \lambda \mathcal{C}(\Phi)$$

Various formulations of the regularisation function have been proposed. In the case where an a priori distribution is known, the shape constraint most often used seeks to minimise the deviation of the final solution from the a priori solution. When an a priori solution is not available, the smoothness condition and the positivity of the solution are used separately or can be combined together. However, although the positivity of the solution guarantees a physical meaning of the neutron energy distribution, the smoothness constraint does not always agree with the behaviour of a neutron spectra. Hence an overly smooth condition masks discontinuities and local structures of the neutron energy distribution are not revealed [7].

In the present unfolding procedure, a general property of the physical quantities derived from information theory is implemented. According to this theory [24], the mean squared error $\epsilon^2 = \langle [\Phi - \Phi_t]^2 \rangle$ in the estimated solution Φ obeys the Cramer-Rao inequality given by:

$$\epsilon^2 I(\Phi) \geq 1$$

where Φ_t is the true solution, and $I(\Phi)$ is the Fisher information given by:

$$I(\Phi) = \int \frac{1}{\Phi} \left(\frac{d\Phi}{dE} \right)^2 dE$$

The Fisher information quantity I is a quality metric of the estimation procedure [25]. The higher the mean squared error, the lower I . Since no information is available on the true solution, the error in the estimation of the solution is large and its Fisher information reaches a minimum value. Furthermore, because the Fisher information expression contains the ratio of the squared derivative $(d\Phi/dE)^2$ to the flux Φ , it guarantees the smoothness of the solution and preserves local discontinuities when they occur.

Regularisation by means of the Fisher information quantity has been recently adapted to the tomographic inversion problem [26] and to the unfolding process for JET NE213 liquid scintillator neutron spectrometry [27]. In the present work, the Fisher regularisation is further developed for the so-called few-channel unfolding problem encountered in a similar manner in neutron spectrometry with foil activation detectors or Bonner spheres.

The unfolding method tends to minimise the discrepancy between measured and calculated activation rates for a neutron energy distribution under the constraint that it minimises the Fisher information. The optimisation scheme is based on the simulated annealing algorithm with Monte Carlo sampling of successive solutions. Since the simulated annealing algorithm is well described in books on modern optimisation methods [28], only a brief description is presented here for the purpose of the present work. The simulated annealing process consists of first melting the system being optimised at a high effective temperature T , then lowering the temperature by stages until the system "freezes" and no further changes occur [29]. At each temperature, the Metropolis algorithm [30] is followed. In each step of this algorithm, the spectrum is perturbed with a small random variation and the resulting change, called the cost function ΔF is computed. If $\Delta F < 0$, the change is accepted and the configuration with the new spectrum is used as the starting point for the next step. If $\Delta F > 0$, the probability $P(\Delta F) = \exp(-\Delta F/T)$ is calculated and a uniform random number r in the interval $[0,1]$ is selected and compared with $P(\Delta F)$. If $r < P(\Delta F)$, the new spectrum is retained; if not the earlier spectrum is used to start the next step.

In the case where no information on the input solution is available, the unfolding can start with a flat distribution, i.e with $\Phi(E)$ a non-null constant over the neutron energy range. The initial temperature T_0 for the annealing process of the Metropolis algorithm is calculated as a multiple of the evaluated functional $F(\Phi_0)$. Generally, $T_0 = 10F(\Phi_0)$ ensures a high initial temperature. For a given neutron energy group value E_i , a new neutron flux value $\Phi_i^{(new)}$ is sampled according to the relation:

$$\Phi_i^{(new)} = \Phi_i^{(old)} [1 + \xi \mathcal{R}]$$

where $\Phi_i^{(old)}$ is the neutron flux value at the previous step for the neutron energy E_i , \mathcal{R} is a normal random number with mean 0 and variance 1, and ξ is a constant set at 10^{-2} which allows to check candidates in the vicinity of the previously accepted solution. A solution is obtained when no change is observed in the cost function F .

TABLE I
RATIOS OF CALCULATED A_c TO SYNTHESISED A_s ACTIVATION RATES OBTAINED BY UNCONSTRAINED AND CONSTRAINED UNFOLDING OF A SEMIEMPIRICAL DISTRIBUTION OF A TYPICAL REACTOR NEUTRON ENERGY SPECTRUM

Reaction	Saturation Activity (1/s)	A_c/A_s	
		Unconstrained	Constrained
$^{45}\text{Sc}(n, \gamma)^{46}\text{Sc}$	$(2.87 \pm 0.14) \times 10^{-15}$	1.000 ± 0.050	1.000 ± 0.050
$^{55}\text{Mn}(n, \gamma)^{56}\text{Mn}$	$(1.31 \pm 0.07) \times 10^{-15}$	1.000 ± 0.050	1.000 ± 0.050
$^{59}\text{Co}(n, \gamma)^{60}\text{Co}$	$(4.63 \pm 0.23) \times 10^{-15}$	1.000 ± 0.050	1.000 ± 0.050
$^{58}\text{Fe}(n, \gamma)^{59}\text{Fe}$	$(1.61 \pm 0.08) \times 10^{-16}$	1.000 ± 0.050	1.000 ± 0.050
$^{63}\text{Cu}(n, \gamma)^{64}\text{Cu}$	$(6.41 \pm 0.32) \times 10^{-16}$	1.000 ± 0.050	1.002 ± 0.050
$^{115}\text{In}(n, \gamma)^{116}\text{In}$	$(4.61 \pm 0.23) \times 10^{-14}$	1.000 ± 0.050	1.000 ± 0.050
$^{186}\text{W}(n, \gamma)^{187}\text{W}$	$(8.48 \pm 0.42) \times 10^{-15}$	1.000 ± 0.050	1.000 ± 0.050
$^{197}\text{Au}(n, \gamma)^{198}\text{Au}$	$(2.12 \pm 0.11) \times 10^{-14}$	1.000 ± 0.050	1.000 ± 0.050
$^{238}\text{U}(n, \gamma)^{239}\text{U}$	$(2.55 \pm 0.13) \times 10^{-15}$	1.000 ± 0.050	1.000 ± 0.050
$^{46}\text{Ti}(n, p)^{46}\text{Sc}$	$(2.27 \pm 0.11) \times 10^{-16}$	1.000 ± 0.050	1.001 ± 0.050
$^{48}\text{Ti}(n, p)^{48}\text{Sc}$	$(6.02 \pm 0.30) \times 10^{-18}$	1.000 ± 0.050	1.014 ± 0.051
$^{54}\text{Fe}(n, p)^{54}\text{Mn}$	$(1.65 \pm 0.08) \times 10^{-15}$	1.001 ± 0.050	0.999 ± 0.050
$^{58}\text{Ni}(n, p)^{58}\text{Co}$	$(2.16 \pm 0.11) \times 10^{-15}$	0.999 ± 0.050	0.999 ± 0.050
$^{60}\text{Ni}(n, p)^{60}\text{Co}$	$(5.43 \pm 0.27) \times 10^{-17}$	1.000 ± 0.050	0.998 ± 0.050
$^{27}\text{Al}(n, \alpha)^{24}\text{Na}$	$(1.98 \pm 0.10) \times 10^{-17}$	1.000 ± 0.050	0.985 ± 0.049
$^{115}\text{In}(n, n')^{115m}\text{In}$	$(4.00 \pm 0.20) \times 10^{-15}$	1.000 ± 0.050	1.001 ± 0.050
$^{197}\text{Au}(n, 2n)^{196}\text{Au}$	$(6.95 \pm 0.35) \times 10^{-17}$	1.000 ± 0.050	1.003 ± 0.050
$^{235}\text{U}(n, f)$	$(7.11 \pm 0.36) \times 10^{-14}$	1.000 ± 0.050	0.998 ± 0.050
$^{237}\text{Np}(n, f)$	$(2.78 \pm 0.14) \times 10^{-14}$	1.000 ± 0.050	0.999 ± 0.050
$^{238}\text{U}(n, f)$	$(6.24 \pm 0.31) \times 10^{-15}$	1.000 ± 0.050	1.001 ± 0.050

Since the unfolding procedure uses Monte Carlo sampling of the successive solution candidates, the mean solution and the standard deviation are obtained from the results of repeated runs [13], [16]. Ten runs were found to be enough to obtain reasonably sufficient statistics.

A. Validation by Synthesised Activation Rates

A demonstration of the unfolding procedure using synthesised activation rate data is performed with a semiempirical representation of a typical neutron reactor spectrum by combining a Maxwellian neutron energy distribution for the thermal component, a $1/E$ term for the intermediate neutron energy region and a pure fission distribution expressed by the Watt distribution [31] for the fast part of the spectrum as follows:

$$\Phi(E) = \Phi_{th} \frac{E}{(kT)^2} \exp(-E/kT) + \Phi_{epi} \frac{\Delta(E)}{E} + \Phi_f \exp(-E) \sinh \sqrt{2E} \quad (2)$$

where $\Delta(E)$ is a joining function between the thermal and epithermal regions. For the present example, parameters Φ_{th} , Φ_{epi} and Φ_f , were set at $10^{20} \text{ cm}^{-2}\text{s}^{-1}$, $10^7 \text{ cm}^{-2}\text{s}^{-1}$ and $10^{10} \text{ MeV}^{-1}\text{cm}^{-2}\text{s}^{-1}$ respectively and the expression $\Delta(E) = (1 + (5 \times 10^{-8}/E)^{1.5})^{-1}$ was chosen for the joining function.

The synthesised activation rates were calculated by numerical integration of (1) which is rewritten in discrete form as follows:

$$A_i = \sum_{j=1}^n \omega_j \sigma_i(E_j) \Phi(E_j) \quad i = \overline{1, m} \quad (3)$$

where n is the number of neutron energy groups, ω_j the integration quadratic weights, and m is the number of activation reactions. The response function is expressed by the neutron reaction cross section in neutron spectrometry with foil activation.

In order to scan the entire neutron energy range, (n, γ) reactions suitable for the intermediate and thermal regions, and the threshold reactions defined in the fast part, have been chosen. The cross sections of the nine (n, γ) , three (n, f) and eight threshold reactions listed in Table I are considered. The data are from the most recent International Reactor Dosimetry File (IRDF-2002) [32] and grouped in a 100-energy group structure with the help of the GROUPIE code [33] using a flat weighting function over the neutron energy range from 10^{-4} eV to 20 MeV on an evenly spaced logarithmic scale.

The validation of the unfolding procedure consists in its ability to find a solution consistent with the synthesised activation rates. The efficiency of the proposed unfolding method can therefore be evaluated by the deviation of the adjusted solution from the original spectrum.

To have an appraisal of the Fisher information for enhancing the quality of the unfolded spectra, the unfolding procedure was run for both the constrained and unconstrained cases. The latter case amounts to minimising $F(\Phi)$ without the additional regularisation term, i.e. $\lambda = 0$. Particular attention was paid to the

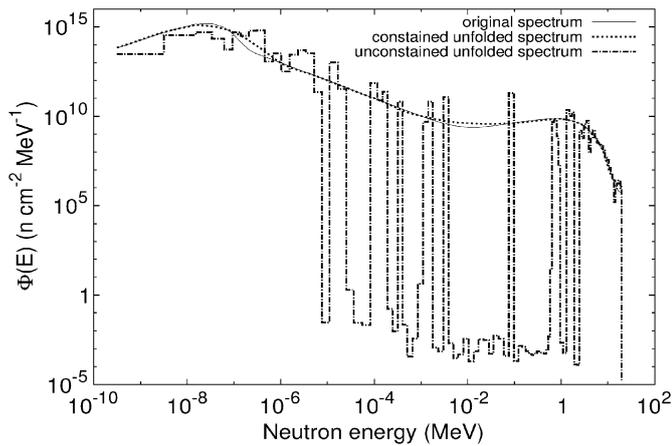


Fig. 1. Constrained and unconstrained unfolded spectra of a semiempirical reactor neutron energy distribution.

ranges covered by the neutron flux values and the neutron energy distribution which are generally spread over many decades. A proportion as high as $1 : 10^{16}$ between the lowest and the highest flux values may be observed as is the case for a pure fission neutron energy distribution for example. A convenient way to avoid huge fluctuations of the numerical evaluations, especially in the first derivatives that appear in the Fisher information expression, is to adopt logarithmic variables in the calculation of the Fisher regularisation term.

The ratios A_c/A_s of the calculated to synthesised saturation activities calculated using the unfolded and the original neutron spectra are reported in Table I for both the unconstrained and constrained cases. It can be seen that all the ratios are quite close to unity for the unconstrained unfolding case. However, the resulting spectrum plotted in Fig. 1 presents discontinuities not present in the original spectrum that is smooth over the whole neutron energy range. This example illustrates a case where exact values of the calculated activities can be reproduced with different neutron energy distributions and leads one to conclude that the goodness of the calculated to the measured activity ratios is not a sufficient criterion to appreciate the quality of the unfolded solution. The addition of the regularisation term represented by the Fisher information leads to an unfolded spectrum close to the original neutron reactor spectrum without oscillations. Furthermore, the additional Fisher regularisation term does not appreciably affect the ratios of the calculated to synthesised activities which are still close to one as reported in column 3 of Table I. The agreement between the measured and the synthesised activation rates is remarkably good for the (n, γ) reactions because the corresponding neutron cross sections are defined over the whole spectral energy range. That is not the case of the threshold reactions defined in only a few neutron energy groups in the fast region of the spectrum.

The deviation of the unfolded spectrum from the original neutron energy distribution is evaluated using the expression:

$$\frac{1}{n} \sum_i^n \left(\log \frac{\Phi_i^s}{\Phi_i^o} \right)^2$$

where Φ_i^s and Φ_i^o are respectively the unfolded and original flux at neutron energy E_i .

It is found that deviations are 358.70 and 0.12 for the unconstrained and constrained runs respectively, which reflects the good restoration ability of the unfolding procedure especially with the Fisher regularisation term.

B. Validation by Benchmarked Experimental Activation Rates

An opportunity is offered by the Neutron Metrology File (NMF-90) [34] to illustrate the proposed unfolding method for determining neutron reactor spectra from multiple foil activation measurements. This file contains input data sets on measured reaction rates together with input spectra for six different reactor benchmark neutron fields.

To demonstrate the proposed unfolding program with experimental saturated activities, we consider the Arkansas Nuclear One (ANO) power plant benchmark spectrum, from NMF-90, which constitutes a typical unfolding problem of a neutron reactor spectrum, where generally the number of detectors used is much lower than the number of neutron energy groups. The ANO benchmark contains a set of reaction rates for four threshold reactions: $^{46}\text{Ti}(n, p)^{46}\text{Sc}$, $^{54}\text{Fe}(n, p)^{54}\text{Mn}$, $^{58}\text{Ni}(n, p)^{58}\text{Co}$, $^{63}\text{Cu}(n, \alpha)^{60}\text{Co}$, and two (n, f) reactions: $^{238}\text{U}(n, f)$, and $^{237}\text{Np}(n, f)$. It also contains an input spectrum expressed in a 55-energy group structure ranging from 4.14×10^{-7} to 15 MeV, divided into one thermal group, 26 intermediate energy groups and 28 fast energy groups.

For the purpose of comparison with the results of the present unfolding procedure, the unfolding of the ANO neutron energy spectrum was also performed with the MAXED (MAXimum Entropy Deconvolution) code [35] which needs a guess spectrum as a default solution. The same reaction rates and cross sections were used as input data when running the two programs. Thus the results depend only on the unfolding procedure adopted by each code. The International Reactor Dosimetry File (IRDF-2002) [32] cross section library was used for preparing the cross section data of the reactions. The cross section values, originally expressed in SAND-II 640-energy groups from 10^{-10} to 20 MeV, were collapsed into a 55 neutron energy group structure for the input spectrum of the ANO benchmark using the MFITB utility program of the NMF-90 package. Furthermore, flat, i.e. $\Phi(E) = \text{const.}$, and guess solutions were used as inputs respectively in the two runs of the present demonstration in order to follow the behaviour of the unfolding procedure with regard to the availability or not of an a priori distribution.

Results of the ratios A_c/A_m of the calculated and measured activities are reported in Table II. One can see that the ratios from the guess solution are spread around unity, which leads to the expectation that slight adjustments would be sufficient to reach the true solution. This was observed for the unfolded spectra of MAXED and for the present work when the ANO guess solution was used as input. The results are shown in Fig. 2 where the spectra are shifted vertically by the indicated factors to avoid overlapping. One can also note that the agreement with the measured activities is better for the present unfolding procedure since all the A_c/A_m ratios are close to one (Table II). It is seen particularly in Fig. 2 that even when the present unfolding

TABLE II
COMPARISON OF THE ANO BENCHMARK CALCULATED AND MEASURED ACTIVATION RATES OBTAINED BY MAXED AND THE PRESENT UNFOLDING PROCEDURE WITH AND WITHOUT GUESS SOLUTION

Reaction	Saturation Activity (1/s)	A_c/A_m			
		Guess	MAXED	This work with guess	This work without guess
$^{63}\text{Cu}(n, \alpha)^{60}\text{Co}$	$(1.90 \pm 0.13) \times 10^{-19}$	0.795	1.030 ± 0.100	1.002 ± 0.071	1.000 ± 0.070
$^{46}\text{Ti}(n, p)^{46}\text{Sc}$	$(2.35 \pm 0.19) \times 10^{-18}$	0.949	1.028 ± 0.117	0.996 ± 0.085	1.000 ± 0.082
$^{58}\text{Ni}(n, p)^{58}\text{Co}$	$(1.73 \pm 0.14) \times 10^{-17}$	0.856	1.066 ± 0.117	1.012 ± 0.082	1.006 ± 0.082
$^{54}\text{Fe}(n, p)^{54}\text{Mn}$	$(1.26 \pm 0.10) \times 10^{-17}$	0.833	1.017 ± 0.114	0.991 ± 0.081	0.994 ± 0.081
$^{238}\text{U}(n, f)$	$(7.42 \pm 0.87) \times 10^{-17}$	0.823	1.048 ± 0.171	0.999 ± 0.122	0.998 ± 0.118
$^{237}\text{Np}(n, f)$	$(1.07 \pm 0.09) \times 10^{-15}$	1.004	0.823 ± 0.104	0.998 ± 0.082	1.000 ± 0.080

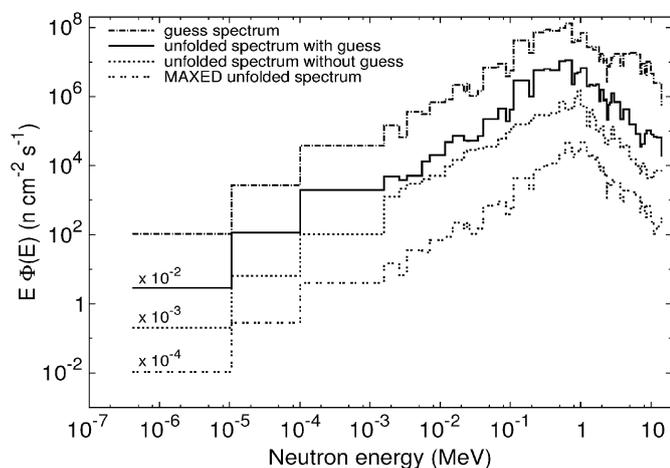


Fig. 2. Comparison of the ANO guess spectrum with the unfolded spectra obtained by MAXED and the present unfolding procedure. Spectra are shifted vertically by the indicated factors.

program does not use an a priori solution, the unfolded spectrum is in good agreement with the ANO input spectrum, which is the best estimation of the ANO true spectrum. Moreover, the unfolding procedure without the guess solution (Fig. 2) reveals the discontinuities in the vicinity of 1 and 2 MeV neutron energy reported by other authors [36] where the ANO neutron energy distributions were determined with the MCNP code.

C. Severely Underdetermined Unfolding Problem Validation

The number of foils that can reasonably be used in so-called multiple foil neutron spectrometry is usually much lower than the number of the energy points where the flux is to be determined. To make up for the underdetermination of the system of equations, i.e (3), the most common unfolding programs make use of an a priori solution that represents the best estimation of the solution which is adjusted to make it more consistent with the measured data. The goodness of the unfolding results are strongly dependent on how close the input solution is to the true distribution and on the efficiency of the adjustment procedure.

To test the ability of the procedure used here to unfold the neutron energy distribution in a highly underdetermined unfolding

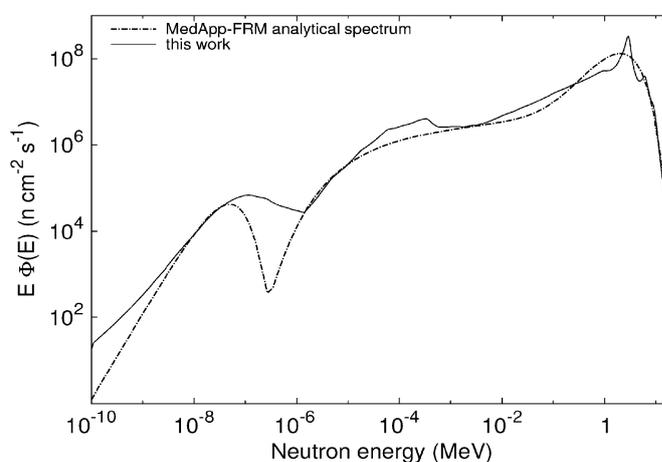


Fig. 3. The 640-group unfolded spectrum of the fast neutron beam MEDAPP and the analytical expression of the distribution.

problem, i.e $m \ll n$ in (3), we consider only a set of 22 experimental activation rates without a guess solution for characterising a neutron energy distribution expressed in the well known extended SAND-II 640-energy group structure. One takes reaction rates that have served to determine the neutron spectrum measurements of the fast neutron beam of MEDAPP at the research reactor FRM II and available in literature [37]. FRM-II is a multipurpose research reactor designed for basic research and technical applications owned by the Technische Universität München, Germany. FRM-II is a 20 MW reactor, consisting of a single cylindrical fuel element core cooled by light water in the centre of a large moderator tank of heavy water. Two fuel plates mounted in the heavy water tank at about 1 m distance from the reactor core convert thermal to fast neutrons and supply a fast neutron beam used for medical applications [38].

The set of 22 reaction rates contains 16 threshold reactions suitable for the fast part of the spectrum, five (n, γ) reactions for the thermal energy region characterisation and one (n, γ) reaction inside a cadmium box for the epithermal region. The cross sections for the reactions were extracted from IRDF-2002 expressed in the SAND-II 640-group which is the standard IRDF-2002 energy group.

TABLE III
CALCULATED A_c TO MEASURED A_m ACTIVATION RATIOS OBTAINED BY THE BEST ANALYTICAL EXPRESSION OF THE MEDAPP FACILITY SPECTRUM AND THE PRESENT UNFOLDING PROCEDURE

Reaction	Saturation Activity (1/s)	A_c/A_m	
		analytical expression	This work
$^{24}\text{Mg}(n,p)^{24}\text{Na}$	$(4.94 \pm 0.26) \times 10^{-19}$	0.858	1.028 ± 0.055
$^{27}\text{Al}(n,p)^{27}\text{Mg}$	$(1.04 \pm 0.06) \times 10^{-18}$	1.099	1.065 ± 0.060
$^{27}\text{Al}(n,\alpha)^{24}\text{Na}$	$(2.55 \pm 0.14) \times 10^{-19}$	0.774	0.935 ± 0.051
$^{31}\text{P}(n,p)^{31}\text{Si}$	$(9.13 \pm 0.50) \times 10^{-18}$	0.874	1.018 ± 0.056
$^{46}\text{Ti}(n,p)^{46}\text{Sc}$	$(3.27 \pm 0.34) \times 10^{-18}$	0.981	0.917 ± 0.094
$^{47}\text{Ti}(n,p)^{47}\text{Sc}$	$(5.94 \pm 0.37) \times 10^{-18}$	0.849	0.937 ± 0.058
$^{48}\text{Ti}(n,p)^{48}\text{Sc}$	$(8.49 \pm 0.56) \times 10^{-20}$	0.975	1.150 ± 0.076
$^{54}\text{Fe}(n,p)^{54}\text{Mn}$	$(2.53 \pm 0.13) \times 10^{-17}$	0.894	0.974 ± 0.052
$^{56}\text{Fe}(n,p)^{56}\text{Mn}$	$(3.86 \pm 0.20) \times 10^{-19}$	0.784	0.909 ± 0.047
$^{58}\text{Ni}(n,p)^{58}\text{Co}$	$(3.01 \pm 0.15) \times 10^{-17}$	1.005	1.077 ± 0.055
$^{58}\text{Ni}(n,2n)^{57}\text{Ni}$	$(1.28 \pm 0.08) \times 10^{-21}$	0.662	1.030 ± 0.067
$^{60}\text{Ni}(n,p)^{60}\text{Co}$	$(6.03 \pm 0.42) \times 10^{-19}$	0.890	0.950 ± 0.066
$^{64}\text{Zn}(n,p)^{64}\text{Cu}$	$(1.29 \pm 0.07) \times 10^{-17}$	0.839	0.932 ± 0.054
$^{103}\text{Rh}(n,n')^{103m}\text{Rh}$	$(1.91 \pm 0.32) \times 10^{-16}$	1.053	0.996 ± 0.168
$^{115}\text{In}(n,n')^{115m}\text{In}$	$(5.56 \pm 0.39) \times 10^{-17}$	0.950	1.010 ± 0.072
$^{197}\text{Au}(n,2n)^{196}\text{Au}$	$(1.11 \pm 0.08) \times 10^{-18}$	0.807	0.968 ± 0.070
$^{58}\text{Fe}(n,\gamma)^{59}\text{Fe}$	$(4.08 \pm 0.51) \times 10^{-18}$	0.562	0.999 ± 0.125
$^{63}\text{Cu}(n,\gamma)^{64}\text{Cu}$	$(1.28 \pm 0.07) \times 10^{-17}$	0.842	1.000 ± 0.057
$^{115}\text{In}(n,\gamma)^{116m}\text{In}$	$(2.04 \pm 0.11) \times 10^{-16}$	0.830	1.001 ± 0.055
$^{186}\text{W}(n,\gamma)^{187}\text{W}$	$(4.04 \pm 0.25) \times 10^{-16}$	0.727	1.000 ± 0.061
$^{197}\text{Au}(n,\gamma)^{198}\text{Au}$	$(4.84 \pm 0.25) \times 10^{-16}$	0.820	0.990 ± 0.052
$^{197}\text{Au}(n,\gamma)^{198}\text{Au}/\text{Cd}$	$(4.57 \pm 0.24) \times 10^{-16}$	0.846	1.009 ± 0.053

In Fig. 3 the unfolded spectrum is plotted together with the best analytical expression for the MEDAPP fast neutron beam given by [37], [39]:

$$\begin{aligned} \Phi(E) = & 1.24 \times 10^{20} e^{-E/25 \times 10^{-9}} \\ & + 5.88 \times 10^6 e^{-4.5 \times 10^{-3}/\sqrt{E}} E^{-0.88} \frac{2}{e^E + 1} \\ & + 1.34 \times 10^8 e^{-E} \sinh \sqrt{2E} \end{aligned}$$

It can be seen in Fig. 3 that the shape of the unfolded spectrum is fairly close to the analytical expression for the MEDAPP neutron beam spectrum. The mean energy calculated using the unfolded spectrum is 1.92 MeV which is quite the same value as for the neutron beam distribution, i.e 1.91 MeV [37]. However, the transition between the thermal and epithermal regions of the unfolded spectrum is less pronounced than in the analytical representation of the spectrum.

In Table III, ratios of the calculated and measured reaction rates A_c/A_m are reported for the unfolded and the analytical expression of the MEDAPP neutron beam. One can see that for the unfolded spectrum the calculated reaction rates are in good agreement with the measured data. The agreement with the measured activities is better for the present unfolding procedure for the six (n,γ) reactions in particular which leads one to expect a good agreement with the true spectrum in the thermal and epithermal neutron energy regions.

III. CONCLUSION

The unfolding procedure developed here has implemented the Fisher information quantity to solve the unfolding problem in

neutron spectrometry by foil activation detectors without use of an a priori solution. The procedure has been illustrated using a synthesised set of reaction rate data and experimental sets of reaction rates of a reference fission neutron energy spectrum and a typical neutron reactor energy spectrum.

Results of the demonstration using the synthesised reaction rate data show the ability of the procedure to restore with a quite good accuracy the original neutron reactor spectrum from which the reaction rate data were obtained.

The unfolded neutron energy distribution using measured reaction rates of the Arkansas Nuclear One power plant benchmark spectrum of the Neutron Metrology File (NMF-90) are in good agreement with the ANO input spectrum, which is thought to be the best estimation of the true ANO spectrum.

Furthermore, the illustration by unfolding the fast neutron beam spectrum at the MEDAPP facility in the SAND-II expanded 640-energy group structure, using a set of 22 experimental activation rates without a guess solution has shown the capability of the unfolding procedure to overcome the lack of information on the a priori solution for the severely underdetermined unfolding problem.

ACKNOWLEDGMENT

The authors would like to express their appreciation to H. Breitzkreutz for his personal communication on the analytical expression of the MEDAPP neutron beam. We are also grateful to Arthur Pape (IPHC, Strasbourg, France) for his helpful remarks.

REFERENCES

- [1] F. D. Brooks and H. Klein, "Neutron spectrometry—Historical review and present status," *Nucl. Instrum. Methods Phys. Res. A*, vol. A476, pp. 1–11, 2002.
- [2] A. V. Alevra, "Neutron spectrometry," *Radioprotect.*, vol. 34, no. 3, pp. 305–333, 1999.
- [3] M. Matzke, "Propagation of uncertainties in unfolding procedures," *Nucl. Instrum. Methods Phys. Res. A*, vol. A476, pp. 230–241, 2002.
- [4] F. G. Perey, Least-Squares Dosimetry Unfolding: The Program STAY^{SL} ORNL/TM-6062, ENDF-254, Oak Ridge, TN, 1977.
- [5] J. T. Routti and J. V. Sandberg, "General purpose unfolding program LOUHI78 with linear and nonlinear regularizations," *Comput. Phys. Commun.*, vol. 21, pp. 119–144, 1980.
- [6] W. N. McElroy, S. Berg, T. Crockett, and R. G. Hawkins, A Computer Automated Iteration Method for Neutron Spectra Determination by Foil Activation AFWL-TR-67-41, NM, 1967.
- [7] A. Seghour and F. Z. Seghour, "Unfolding neutron energy spectra from foil activation detector measurements with the Gold algorithm," *Nucl. Instrum. Methods Phys. Res. A*, vol. A457, pp. 617–626, 2001.
- [8] N. Pauwels, F. Clapier, P. Gara, M. Mirea, and J. Proust, "Experimental determination of neutron spectra produced by bombarding thick targets: Deuterons (100 MeV/u) on ^9Be , deuterons (100 MeV/u) on ^{238}U and ^{36}Ar (95 MeV/u) on ^{12}C ," *Nucl. Instrum. Methods Phys. Res. B*, vol. B160, pp. 315–327, 2000.
- [9] A. Seghour and F. Z. Seghour, "Spectrométrie des neutrons par activation neutronique près et dans les coeurs des réacteurs nucléaires," *Alg. Rev. Nucl. Sci.*, vol. 5, no. 1/2, pp. 13–23, 2003.
- [10] R. Bedogni, C. Domingo, A. Esposito, and F. Fernández, "FRUIT: An operational tool for multisphere neutron spectrometry in workplaces," *Nucl. Instrum. Methods Phys. Res. A*, vol. A580, pp. 1301–1309, 2007.
- [11] A. Seghour and F. Z. Seghour, "Neutron energy spectra unfolding from foil activation detector measurements with minuit," *Nucl. Instrum. Methods Phys. Res. A*, vol. A555, pp. 347–355, 2005.
- [12] R. Sanna and K. O'Brien, "Monte carlo unfolding of neutron spectra," *Nucl. Instrum. Methods*, vol. 91, pp. 573–576, 1971.
- [13] K. O'Brien and R. Sanna, "Neutron spectral unfolding using the monte carlo method," *Nucl. Instrum. Methods*, vol. 185, pp. 277–286, 1981.
- [14] K. Shin and M. Hamamoto, "Monte Carlo unfolding of pulse-height spectra," *Nucl. Instrum. Methods Phys. Res. A*, vol. A269, pp. 272–278, 1988.
- [15] K. Weise and M. Matzke, "A priori distributions from the principle of maximum entropy for the Monte Carlo unfolding of particle energy spectra," *Nucl. Instrum. Methods Phys. Res. A*, vol. A280, pp. 103–112, 1989.
- [16] M. Matzke and K. Weise, "Neutron spectrum unfolding by the Monte Carlo method," *Nucl. Instrum. Methods Phys. Res. A*, vol. A234, pp. 324–330, 1985.
- [17] M. Tichy, "Bayesian approach to neutron spectrum adjustment," *Nucl. Instrum. Methods Phys. Res. A*, vol. A267, pp. 502–508, 1988.
- [18] D. K. Wehe and J. Schmidt, "Method for projecting integral measured quantities," *Nucl. Sci. Eng.*, vol. 104, pp. 145–152, 1990.
- [19] S. Numata, T. Abe, and K. Shin, "Application of a maximum likelihood unfolding method to NE-213 pulse-height spectra," *Nucl. Instrum. Methods Phys. Res. A*, vol. A269, pp. 261–271, 1988.
- [20] D. K. Wehe, J. Schmidt, and S. King, "Absolute measurements of neutron spectra in high- and low-enriched uranium materials test reactor fuel," *Nucl. Sci. Eng.*, vol. 110, pp. 56–78, 1992.
- [21] R. Wölfle, A. Suhaimi, and S. M. Qaim, "Determination of the excitation function of the (n,xt) process on beryllium via activation in diverse neutron fields and unfolding code calculations," *Nucl. Sci. Eng.*, vol. 115, pp. 71–75, 1993.
- [22] G. D'Agostini, *Bayesian Reasoning in Data Analysis. A Critical Introduction*. Singapore: World Scientific, 2003.
- [23] G. D'Agostini, "A multidimensional unfolding method based on Bayes' theorem," *Nucl. Instrum. Methods Phys. Res. A*, vol. A362, pp. 487–498, 1995.
- [24] B. R. Frieden, *Science From Fisher Information: A Unification*, 2nd ed. Cambridge, U.K.: Cambridge Univ. Press, 2004.
- [25] B. R. Frieden and B. H. Soffer, "Lagrangians of physics and the game of Fisher-information transfer," *Phys. Rev. E*, vol. 52, pp. 2274–2286, 1995.
- [26] T. Craciunescu, G. Bonheure, V. Kiptily, A. Murari, I. Tiseanu, and V. Zoita, "A comparison of four reconstruction methods for JET neutron and gamma tomography," *Nucl. Instrum. Methods Phys. Res. A*, vol. A605, pp. 374–383, 2009, JET-EFDA Contributorse.
- [27] J. Mlynar, J. M. Adams, L. Bertalot, and S. Conroy, "First results of minimum fisher regularisation as unfolding method for JET NE213 liquid scintillator neutron spectrometry," *Fusion Eng. Des.*, vol. 74, pp. 781–786, 2005.
- [28] Z. Michalewicz and D. B. Fogel, *How to Solve It: Modern Heuristics*. Berlin/Heidelberg, Germany: Springer-Verlag, 2000.
- [29] S. Kirkpatrick, C. D. Gelatt, and M. P. Vecchi, "Optimization by simulated annealing," *Science*, vol. 220, pp. 671–680, 1983.
- [30] N. Metropolis, A. W. Rosenbluth, M. N. Rosenbluth, and A. H. Teller, "Equation of state calculations by fast computing machines," *J. Chem. Phys.*, vol. 21, pp. 1087–1092, 1953.
- [31] B. E. Watt, "Energy spectrum of neutrons from thermal fission of U235," *Phys. Rev.*, vol. 87, pp. 1037–1041, 1952.
- [32] IAEA, International Reactor Dosimetry File 2002 (IRDF-2002) International Atomic Energy Agency, Vienna, Austria, Tech. Repts. Series 452, 2006.
- [33] D. E. Cullen, PREPRO 2007: 2007 ENDF/B Pre-Processing Codes International Atomic Energy Agency, Vienna, Austria, Rep. IAEA-NDS-39, 2007.
- [34] É. M. Zsolnay, E. J. Szondi, and H. J. Nolthenius, The Neutron Metrology File NMF-90 International Atomic Energy Agency, Vienna, Austria, Rep. IAEA-NDS-171, 1999.
- [35] M. Reginatto, P. Goldhagen, and S. Neumann, "Spectrum unfolding, sensitivity analysis and propagation of uncertainties with the maximum entropy deconvolution code MAXED," *Nucl. Instrum. Methods Phys. Res. A*, vol. A476, pp. 242–246, 2002.
- [36] P. G. Laky and N. Tsoufanidis, "Neutron fluence at the pressure vessel of a pressurized water reactor determined by the MCNP code," *Nucl. Sci. Eng.*, vol. 121, pp. 433–447, 1995.
- [37] H. Breikreutz, F. M. Wagner, A. Rohrmoser, and W. Petry, "Spectral fluence rates of the fast reactor neutron beam MedApp at FRM II," *Nucl. Instrum. Methods Phys. Res. A*, vol. A593, pp. 466–471, 2008.
- [38] F. M. Wagner, A. Kastenmüller, H. Breikreutz, B. Loeper-Kabasakal, and J. Kummermehr, "Fission neutron source-MEDAPP," Annual Report, Forschungs-Neutronenquelle Heinz Maier-Leibnitz (FRM II) pp. 69–71, 2007.
- [39] H. Breikreutz, private communication, 2009.