

Mesure du rapport des sections efficaces d'absorption  
de neutrons thermiques pour l'hydrogène et le manganèse

par V.D. Huynh, L. Lafaye, C. Colas et C. Veyradier

Bureau International des Poids et Mesures, F-92310 Sèvres

Dans l'expression du calcul du taux d'émission d'une source de neutrons du type Ra-Be( $\alpha, n$ ) ou Ra-Be( $\gamma, n$ ), les valeurs des sections efficaces d'absorption de neutrons thermiques pour l'hydrogène et le manganèse apparaissent sous forme de rapport  $\sigma_H / \sigma_{Mn}$  ; aussi plusieurs laboratoires ont-ils déterminé, non les valeurs individuelles, mais directement le rapport de ces deux sections efficaces. En particulier, le NPL [1] et l'ANL [2] ont obtenu les valeurs suivantes:

$$\text{NPL} \quad \sigma_H / \sigma_{Mn} = 0,024\,95 \pm 0,000\,08$$

$$\text{ANL} \quad \sigma_H / \sigma_{Mn} = 0,025\,31 \pm 0,000\,03.$$

Or, les valeurs individuelles généralement adoptées sont:

$$\sigma_H = (0,332 \pm 0,002) \text{ b}$$

$$\sigma_{Mn} = (13,25 \pm 0,10) \text{ b},$$

soit

$$\sigma_H / \sigma_{Mn} = 0,025\,06 \pm 0,000\,25.$$

Nous avons donc décidé de déterminer ce rapport, à notre tour, pour essayer de contribuer à l'amélioration de la précision sur la détermination du taux d'émission de la source.

- 
- [1] Axton, E.J., Cross, P. and Robertson, J.C., Calibration of the NPL standard photoneutron sources by an improved manganese sulphate bath technique, *J. Nuclear Energy* 19, 1965, p. 409
- [2] De Volpi, A. and Porges, K.C., Absolute calibration of neutron sources having a wide range of emission spectra, *Metrologia* 5, 1969, p. 128

## Principe

Rappelons que, dans la méthode du bain de manganèse, le taux d'émission  $Q$  d'une source de neutrons est donné par l'expression suivante:

$$Q = Q_{Mn} \frac{1}{f} k,$$

où

- $Q_{Mn}$  est le taux de capture des neutrons par les noyaux de manganèse contenus dans la solution,
- $f$  le rapport des neutrons capturés par les noyaux de manganèse aux neutrons capturés par tous les éléments,
- $k$  un facteur de correction qui comprend:  
 $k_a$ , l'absorption des neutrons dans la source (auto-absorption),  
 $k_r$ , l'absorption des neutrons rapides par réaction  $(n,p)$  et  $(n,\alpha)$  sur l'oxygène et le soufre,  
 $k_e$ , la perte des neutrons hors du bain de manganèse.

Dans le cas d'une source de Ra-Be( $\gamma, n$ ) qui nous intéresse ici, seuls  $k_a$  et  $k_e$  interviennent.

$Q_{Mn}$  est obtenu en mesurant, d'une part, l'activité à saturation  $A$  de la solution activée par la source et, d'autre part, la constante d'étalonnage  $\mathcal{E}$  du détecteur utilisé pour mesurer cette activité:

$$Q_{Mn} = \frac{A}{\mathcal{E}}.$$

Rappelons également que

$$\frac{1}{f} = 1 + \frac{\sigma_S}{\sigma_{Mn}'} + \frac{n_H}{n_{Mn}} \cdot \frac{\sigma_H}{\sigma_{Mn}'},$$

avec  $\sigma_{Mn}' = \sigma_{Mn} (1 + G \tau s)$ ,

où

- $\sigma_H$ ,  $\sigma_{Mn}$  et  $\sigma_S$  sont les sections efficaces d'absorption de neutrons thermiques, respectivement pour l'hydrogène, le manganèse et le soufre,
- $n_H$  et  $n_{Mn}$  sont les nombres d'atomes par unité de volume d'hydrogène et de manganèse,
- $\sigma_{Mn}'$  est la section efficace d'absorption effective du manganèse qui tient compte de la correction pour la capture des neutrons par les résonances du manganèse,
- $G$  est un facteur qui représente l'effet d'écran de la solution  $MnSO_4$  à l'énergie de résonance,

$\bar{r}$  est l'indice de densité épithermique,

s est un facteur de correction par rapport à un "détecteur en  $1/v$ " pour un spectre en " $dE/E$ ".

En remplaçant les quantités  $Q_{Mn}$  et  $1/f$  par leurs expressions, on peut écrire l'équation donnant  $Q$  sous la forme suivante:

$$\frac{\varepsilon}{A k_a k_e} = \frac{1}{Q} \cdot \frac{\sigma_H}{\sigma_{Mn}} \cdot \frac{n_H}{n_{Mn}} + \frac{1}{Q} \left( 1 + \frac{\sigma_s}{\sigma_{Mn}} \right).$$

En posant

$$y_i = \frac{\varepsilon_i}{A_i (k_a)_i (k_e)_i},$$

$$a = \frac{1}{Q} \cdot \frac{\sigma_H}{\sigma_{Mn}},$$

$$x_i = \left( \frac{n_H}{n_{Mn}} \right)_i \cdot \frac{1}{(1 + G \bar{r} s)_i}$$

et

$$b = \frac{1}{Q} \left[ 1 + \frac{\sigma_s}{\sigma_{Mn} \cdot (1 + G \bar{r} s)} \right],$$

on obtient l'équation d'une droite

$$y_i = a x_i + b.$$

Dans l'expression de  $b$ , le facteur  $\overline{(1 + G \bar{r} s)}$  est la valeur moyenne de  $(1 + G \bar{r} s)_i$ , car la variation de ce dernier terme est très faible. Ainsi, si l'on effectue une série de mesures de  $y_i$  pour différentes valeurs de  $(n_H/n_{Mn})_i$  en faisant varier la concentration de la solution de sulfate de manganèse, on peut déduire la quantité  $\sigma_H/\sigma_{Mn}$  du rapport  $a/b$  des paramètres de la droite obtenue expérimentalement.

### Expérience

Il s'agit de déterminer, pour chaque valeur de  $(n_H/n_{Mn})_i$ , les grandeurs  $\varepsilon_i$ ,  $A_i$ ,  $(k_a)_i$  et  $(k_e)_i$ .

Dans l'expérience, nous utilisons la source Ra-Be( $\gamma, n$ ) (beryllium de 4 cm de diamètre) et la méthode de circulation pour mesurer l'activité à saturation  $A_i$  de la solution.

La constante d'étalonnage  $\xi_i$  du détecteur est déterminée par l'introduction dans la petite sphère d'une petite quantité d'une solution de  $^{56}\text{Mn}$  dont l'activité massique est étalonnée par la méthode  $4\pi\beta\text{-}\gamma$ . Rappelons que, pour chaque étalonnage, un grain d'environ 2,5 mg de  $^{55}\text{Mn}$  métal est irradié dans un canal de la pile EL3 du Centre d'Etudes Nucléaires (Saclay) durant cinq minutes; le débit de fluence de neutrons thermiques dans le canal est de  $0,95 \times 10^{13} \text{ cm}^{-2} \text{ s}^{-1}$ . L'activité totale du grain à la fin de l'irradiation est de  $5,6 \times 10^7$  Bq environ. Ensuite, le grain est dissous dans  $5 \text{ cm}^3$  d'acide nitrique dilué (5N) et on y ajoute  $10 \text{ cm}^3$  d'eau distillée pour obtenir la solution de  $^{56}\text{Mn}$ .

D'autre part, à l'aide de l'une des deux chambres d'ionisation du Système international de référence, on a également mesuré le courant d'ionisation correspondant à une activité massique connue de la solution de  $^{56}\text{Mn}$ . Il n'est donc pas nécessaire de recourir chaque fois à la méthode  $4\pi\beta\text{-}\gamma$  pour déterminer l'activité massique d'une solution de  $^{56}\text{Mn}$ ; il suffit de mesurer le courant d'ionisation, ce qui simplifie énormément le travail d'étalonnage.

Pour chaque concentration de solution  $\text{MnSO}_4$ , nous effectuons toujours la mesure d'étalonnage entre deux mesures de l'activité à saturation de la solution irradiée par la source Ra-Be( $\gamma, n$ ) (soulignons que la source est placée au centre d'une cavité en polystyrène de 8,9 cm de diamètre et 1 mm d'épaisseur de paroi).

Les facteurs de correction  $(k_a)_i$  et  $(k_e)_i$  sont essentiellement obtenus par le calcul. Cependant, un long compteur du type De Pangher est placé contre la petite sphère, ce qui permet d'estimer l'importance relative de la perte des neutrons hors du bain de manganèse en fonction de la concentration de la solution.

### Résultats

Nous avons effectué les mesures pour six valeurs de  $(n_{\text{H}}/n_{\text{Mn}})$ . Le tableau 1 résume l'ensemble des résultats. Les facteurs  $(1 + G \bar{r} s)_i$ ,  $(k_a)_i$  et  $(k_e)_i$  ont été pris dans les valeurs calculées par le NPL et les incertitudes associées à ces grandeurs ont été estimées à  $\pm 0,10\%$ . La constante d'étalonnage,  $\xi_i$ , est exprimée en taux de comptage ( $\text{s}^{-1}$ ) du détecteur pour une activité de la solution de  $10^6$  Bq et l'incertitude relative sur  $\xi_i$  est de  $\pm 0,05\%$ . Toutes les activités à saturation,  $A_i$ , ont été mesurées avec à peu près la même précision (écart-type relatif de  $2,5 \times 10^{-4}$ ).

Pour la détermination de a et b (et des écarts-types correspondants), on utilise les formules habituelles d'ajustement d'une ligne droite par la méthode des moindres carrés, mais en prenant comme poids statistique

$$w = (\sigma_y^2 + \sigma_x^2 a^2)^{-1} \text{ pour chaque couple de valeurs de } x \text{ et } y, \text{ où } \sigma_x \text{ et } \sigma_y$$

TABLEAU 1

Mesure du rapport des sections efficaces d'absorption de neutrons thermiques pour H et Mn

Valeurs expérimentales et facteurs auxiliaires intervenant dans l'ajustement de la droite  $y = ax + b$

date	$n_H/n_{Mn}$	$(1+G \bar{F} s)$	$\epsilon$	$A$ ( $s^{-1}$ )	$k_a$	$k_e$	$k_m^*$	$x$	$y$
27 avril 1978	39,259	1,014 7	3 457,44	1 088,04	1,004 6	1,003 4	1,001 3	38,690 $\pm 0,039$	3,148 3 $\pm 0,005 7$
10 mai	248,767	1,010 6	3 332,32	292,21	1,006 0	1,006 4	1,001 3	246,158 $\pm 0,246$	11,249 1 $\pm 0,020 6$
24	210,303	1,010 8	3 337,26	336,77	1,005 9	1,005 9	1,001 3	208,056 $\pm 0,208$	9,781 0 $\pm 0,017 9$
2 juin	164,793	1,011 1	3 342,94	411,99	1,005 8	1,005 2	1,001 3	162,984 $\pm 0,163$	8,015 3 $\pm 0,014 6$
14	122,354	1,011 6	3 360,34	521,35	1,005 5	1,004 6	1,001 3	120,951 $\pm 0,121$	6,372 6 $\pm 0,011 6$
24	73,835	1,012 7	3 388,94	747,68	1,005 1	1,003 9	1,001 3	72,912 $\pm 0,073$	4,486 3 $\pm 0,008 1$

\*  $k_m$  : facteur de correction qui tient compte de l'absorption de neutrons par l'agitateur.

sont les incertitudes sur  $x$  et  $y$ . En ce qui concerne l'incertitude du rapport  $a/b$ , on s'est servi des expressions suivantes: si l'on pose  $a/b = z$ , la variance relative de  $z$  est

$$\frac{\sigma_z^2}{z^2} = \left(\frac{\sigma_z}{z}\right)^2 = \left(\frac{s_a}{a}\right)^2 + \left(\frac{s_b}{b}\right)^2 - \frac{2}{ab} \cdot \text{cov}(a, b),$$

avec  $\text{cov}(a, b) = -\sigma_0^2 \frac{[wx]}{D}$ ,

où

$$D = [w] [w x^2] - [w x]^2$$

et

$$\sigma_0^2 = \frac{[w v^2]}{n - 2}.$$

On utilise ici la notation usuelle où  $v = y - (ax + b)$  et  $[...]$  indique une sommation sur toutes les  $n$  mesures.

Les résultats de l'ajustement donnent:

$$a = 0,039\ 123 \pm 0,000\ 035,$$

$$b = 1,635\ 2 \pm 0,003\ 4,$$

$$\frac{a}{b} = 0,023\ 926 \pm 0,000\ 069.$$

Avec nos valeurs expérimentales données dans le tableau 1, le NPL a effectué un calcul séparé en utilisant leur propre programme d'analyse. Ils obtiennent:

$$a = 0,039\ 122\ 8 \pm 0,000\ 035\ 00,$$

$$b = 1,635\ 229 \pm 0,003\ 409\ 5,$$

$$\frac{a}{b} = 0,023\ 924\ 9 \pm 0,000\ 068\ 4.$$

On peut donc conclure que les deux programmes s'accordent très bien. En prenant

$$\sigma_s = (0,52 \pm 0,02) b,$$

$$\sigma_{Mn} = (13,25 \pm 0,10) b$$

et

$$(1 + G \bar{r}_s) = 1,013 \pm 0,002,$$

on obtient finalement, pour le BIPM,

$$\frac{\sigma_H}{\sigma_{Mn}} = 0,024\ 85 \pm 0,000\ 07.$$

Après avoir effectué une correction sur sa valeur de 1965, due aux impuretés de la solution de sulfate de manganèse, le NPL obtient pour ce rapport  $\sigma_H/\sigma_{Mn}$ , en utilisant un nouveau programme de calcul, la valeur révisée suivante:

$$\frac{\sigma_H}{\sigma_{Mn}} = 0,024\ 89 \pm 0,000\ 06.$$

D'autre part, J.R. Smith de l'INEL (Idaho National Engineering Laboratory), a obtenu récemment [3]

$$\frac{\sigma_H}{\sigma_{Mn}} = 0,024\ 86 \pm (\approx 0,3\%).$$

Il semble donc qu'actuellement on ait une valeur assez précise du rapport  $\sigma_H/\sigma_{Mn}$ .

---

[3] J.R. Smith, Communication privée à E.J. Axton, 1978